

THÈSE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS 6

Spécialité

Physique

présentée par

Pascal NAIDON

pour obtenir le grade de

DOCTEUR de l'UNIVERSITÉ PARIS 6

Sujet de la thèse :

**Étude théorique de la formation de molécules diatomiques dans
un condensat par photoassociation**

Soutenance le 10 décembre 2004

devant le jury composé de :

M. Yvan CASTIN	Rapporteur
M. Philippe GRANGIER	
M. Thorsten KÖHLER	Invité
Mme Claire LHUILLIER	
Mme Françoise MASNOU-SEEUWS	Directrice de thèse
M. Pierre PILLET	
M. Gora SHLYAPNIKOV	Rapporteur

Table des matières

1	Introduction	7
1.1	Contexte général	7
1.1.1	Les gaz froids et les condensats de Bose-Einstein	7
1.1.2	Les molécules froides	7
1.1.2.1	Obtention de molécules froides	8
1.1.2.2	Intérêt des molécules froides	9
1.2	Voies couplées dans un condensat	10
1.2.1	Champ moyen et interactions de contact	10
1.2.2	L'approche des fonctions d'onde effectives	11
1.2.3	Autres approches	11
1.3	Plan de la thèse	12
2	Théorie à deux atomes	13
2.1	Théorie des collisions à deux atomes	13
2.1.1	Quelques éléments de physique moléculaire	13
2.1.1.1	Hamiltonien d'une paire d'atomes	13
2.1.1.2	Développement de la fonction d'onde et équations couplées	14
2.1.1.3	Bases diabatique et adiabatique	17
2.1.1.4	Voies ouvertes et voies fermées	18
2.1.2	Amplitudes de diffusion - longueur de diffusion	19
2.1.2.1	Équations couplées à deux voies	19
2.1.2.2	Importance de la longueur de diffusion dans les gaz froids	22
2.1.3	Interactions réalistes et effectives	22
2.1.3.1	Développement perturbatif de Born	22
2.1.3.2	Classification des interactions	23
2.1.3.3	Potentiels effectifs de contact	24
2.2	Voies couplées par photoassociation ou résonance de Feshbach	28
2.2.1	Résonance de Feshbach magnétique	28
2.2.1.1	Couplage hyperfin et effet Zeeman	28
2.2.2	Réaction de photoassociation	31
2.2.2.1	Description du couplage laser	32
2.2.2.2	Approximation de l'onde tournante	33
2.2.2.3	Émission spontanée	34
2.2.3	Analogie entre photoassociation et résonance de Feshbach magnétique	35
2.2.4	Résonance avec un état lié	35
2.2.4.1	Approximation d'une résonance isolée	36
2.2.4.2	Cas d'une résonance de Feshbach	40
2.2.4.3	Cas d'une réaction de photoassociation	41
2.2.5	Résonances à plusieurs états	45
2.2.5.1	Fortes intensités - influence d'une forte résonance	45

2.2.5.2	Utilisation de laser fortement dépendants du temps	46
3	Théories sur les condensats	49
3.1	Généralités	50
3.1.1	Quelques caractéristiques générales des condensats gazeux	50
3.1.2	Définition de la condensation	52
3.1.3	Système considéré	54
3.1.4	Conservation du nombre de particules et symétrie $U(1)$	55
3.1.4.1	Symétrie $U(1)$	55
3.1.4.2	Brisure de symétrie $U(1)$ avec la prescription de Bogolioubov	56
3.1.4.3	Brisure de symétrie $U(1)$ avec un état cohérent	57
3.1.5	Equations dynamiques générales	58
3.2	Théories standard pour des interactions douces	61
3.2.1	Approche de Hartree-Fock à $T = 0$	61
3.2.1.1	Dérivation standard	61
3.2.1.2	Dérivation avec brisure de symétrie $U(1)$	62
3.2.1.3	Équation de Gross-Pitaevskiï	63
3.2.1.4	Utilisation d'un potentiel de contact effectif	63
3.2.1.5	Applications de l'équation de Gross-Pitaevskiï	64
3.2.2	Approche de Bogolioubov	65
3.2.2.1	Diagonalisation de l'équation d'évolution	65
3.2.2.2	Diagonalisation de l'hamiltonien	68
3.2.2.3	Relation entre modes non-condensés et corrélation de paire	70
3.2.2.4	Structure des équations dynamiques des moyennes	71
3.2.2.5	Cas particulier : système uniforme dans l'état fondamental	73
3.2.2.6	Interactions de contact et paradoxe des énergies de Bogolioubov et Gross-Pitaevskiï	76
3.2.3	Approche Hartree-Fock-Bogolioubov	81
3.2.3.1	Équations Hartree-Fock-Bogolioubov	81
3.2.3.2	Relation entre les modes non-condensés et la corrélation de paire	82
3.2.3.3	Spectre dans l'approximation de Hartree-Fock-Bogolioubov et "gap" d'énergie	83
3.2.3.4	Utilisation d'un potentiel de contact effectif	84
3.2.4	Méthode des cumulants	85
3.2.4.1	Méthode standard et méthode étendue	86
3.2.4.2	Méthode des cumulants au premier ordre	87
3.2.4.3	Relation entre corrélation et modes non-condensés	88
3.2.4.4	Dérivation en terme d'énergie fonctionnelle	89
3.2.4.5	Problème de états stationnaires	89
3.2.4.6	Réécriture sous la forme d'une équation de Schrödinger non-linéaire non-markovienne	90
3.3	Théorie pour des interactions arbitrairement fortes	92
3.3.1	Méthode des fonctions d'onde effectives	92
3.3.1.1	Définition des fonctions d'onde effectives	92
3.3.1.2	Fonctions d'onde effectives dans un condensat	94
3.3.1.3	Approximation de Hartree-Fock-Bogolioubov	100
3.3.1.4	Approximation de paire	100
3.3.1.5	Approximation de paire et analogie avec Bogolioubov : prescription de l'interaction effective	102
3.3.1.6	Au-delà de l'analogie directe avec Bogolioubov	108

3.3.2	Calculs avec des interactions réalistes	108
3.3.2.1	Approximation de la paire réduite	109
3.4	Conclusion	111
3.5	Projet d'article	113
4	Voies couplées dans un condensat	115
4.1	Généralités	115
4.1.1	Effets des voies couplées dans un condensat	115
4.1.1.1	Contrôle de l'interaction	115
4.1.1.2	Formation de condensats moléculaires	116
4.1.2	Équations générales	117
4.1.2.1	Approche en termes d'opérateurs-champs	118
4.1.2.2	Hamiltonien phénoménologique	120
4.1.2.3	Expressions générales	122
4.1.2.4	Changement d'origine des énergies	122
4.1.2.5	Simplification dans le cas d'une résonance isolée	124
4.1.2.6	Formulation générale en termes de moyennes	125
4.1.2.7	Longueur de diffusion de champ-moyen	128
4.2	Théories avec des interactions effectives	129
4.2.1	Approche de Hartree-Fock à $T = 0$: équations de Gross-Pitaevskiï couplées	129
4.2.1.1	Propriétés des équations de Gross-Pitaveskiï couplées	130
4.2.1.2	Au-delà du champ moyen	131
4.2.1.3	Comparaison avec l'expérience	133
4.2.2	Approche de Hartree-Fock-Bogolioubov	134
4.2.3	Approche des cumulants au premier ordre	135
4.2.3.1	Équations dépendant du temps	135
4.2.3.2	États stationnaires	136
4.2.4	Conclusion	136
4.3	Théorie avec des interactions réalistes	137
4.3.1	Approche des fonctions d'onde effective	137
4.3.1.1	Équations générales	137
4.3.1.2	Approximation de la paire réduite	137
4.3.1.3	États stationnaires - décalage des raies par le champ moyen	138
4.3.2	Effets des corrélations à courtes distances	139
4.3.2.1	Effets quasi-stationnaires	139
4.3.2.2	Effets dynamiques	140
4.4	Article Phys. Rev. A 68, 033612 (2003)	141
5	Méthodes numériques	143
5.1	Représentation spatiale	143
5.2	Propagation en temps	144
5.2.1	Principe de la méthode	144
5.2.2	Avantages et inconvénients de la méthode	146
5.2.3	Expressions dans le cas des équations utilisées	146
5.2.3.1	Équations dans l'approximation des cumulants au 1er ordre	146
5.2.3.2	Équation dans l'approximation de la paire réduite	147
5.2.4	Implémentation numérique	148
5.2.5	Amélioration de la méthode numérique	149
5.3	Recherche d'états stationnaires	150
5.3.1	États stationnaires du problème à deux atomes - propagation en temps imaginaire	150

5.3.1.1	Principe de la méthode de propagation en temps imaginaire . . .	150
5.3.1.2	Propagation en temps imaginaire avec le schéma de Crank-Nicholson	150
5.3.1.3	Avantages et inconvénients de la propagation en temps imaginaire avec Crank-Nicholson	152
5.3.2	États stationnaires des équations des cumulants au premier ordre	152
5.3.3	États stationnaires des équations dans l'approximation de la paire réduite	153
5.4	Calcul de la longueur de diffusion	154
5.4.1	Méthode du maximum	154
5.4.2	Méthode de l'énergie	154
5.4.3	Méthode de l'amplitude de diffusion	155
6	Applications	157
6.1	Résonances de Feshbach optiques	157
6.1.1	Photoassociation du rubidium 87	157
6.1.1.1	Contexte	157
6.1.1.2	Photoassociation à forte intensité	158
6.1.2	Photoassociation du sodium 23	162
6.1.2.1	Expérience de photoassociation du NIST	163
6.1.2.2	Longueur de diffusion près de la résonance $v = 135, J = 1$	163
6.1.3	Différentes possibilités de résonances de Feshbach optiques	166
6.1.3.1	Variation de la longueur de diffusion au voisinage d'une résonance	166
6.1.3.2	Variation de la longueur de diffusion entre les résonances	166
6.2	Photassociation dans un condensat	168
6.2.1	Photoassociation d'un condensat avec un laser continu	168
6.2.1.1	Régime de Gross-Pitaevskii et apparition d'atomes non-condensés	168
6.2.1.2	Origine des atomes non-condensés	170
6.2.2	Photoassociation d'un condensat avec une rampe de fréquence	173
6.2.2.1	Rampe vers le haut	173
6.2.2.2	Rampe vers le bas	175
6.3	Projet d'article	179
7	Conclusion	181
7.1	Résultats théoriques et développement d'un modèle	181
7.2	Application à la photoassociation	183
7.3	Perspectives	183

Chapitre 1

Introduction

1.1 Contexte général

1.1.1 Les gaz froids et les condensats de Bose-Einstein

Ce travail de thèse, réalisé entre octobre 2001 et octobre 2004, s'inscrit dans le domaine général des gaz froids. Depuis le milieu des années 1980, de nombreux physiciens se consacrent à l'étude des propriétés de gaz dilués, isolés dans le vide et refroidis à de très faibles températures. Ces gaz sont généralement constitués d'atomes de la même espèce, mais il peut aussi s'agir d'atomes d'espèces différentes, d'ions, voire de molécules légères. L'intérêt de ces recherches est avant tout fondamental : comprendre le comportement de ces milieux dilués à très basses températures, allant du millikelvin jusqu'au nanokelvin (quelques milliardièmes de degré au dessus du zéro absolu). Diverses techniques ont été imaginées pour refroidir les gaz à ces températures, notamment en utilisant des lasers (le prix Nobel de physique de 1997 récompense Steven Chu, William Phillips, et Claude Cohen-Tannoudji pour le développement de ces techniques).

En descendant à de si faibles températures, on voit apparaître des effets liés à la nature quantique des corpuscules composant le gaz. En effet, en abaissant la température, on restreint la vitesse des corpuscules à un domaine très étroit, et leur position se retrouve délocalisée sur de grandes distances, conformément à la relation d'incertitude d'Heisenberg. On ne peut donc plus décrire leur mouvement classiquement : il faut faire appel à la mécanique quantique décrivant le mouvement des corpuscules de manière probabiliste à l'aide de fonctions d'onde. Les gaz froids sont donc un domaine de prédilection pour étudier le comportement quantique de la matière. Une manifestation spectaculaire de cette nature quantique est la réalisation expérimentale en 1995 de *condensats de Bose-Einstein* à partir de gaz d'atomes alcalins refroidis [Anderson1995, Davis1995]. Les condensats de Bose-Einstein sont un état particulier d'un gaz de bosons (corpuscules de spin entier, suivant la statistique de Bose-Einstein) dont les mouvements individuels sont pratiquement tous décrits par la même fonction d'onde. Cet état particulier, prédit par Albert Einstein en 1925, confère au gaz des propriétés inhabituelles comme celle de *cohérence*. L'échantillon gazeux se comporte ainsi globalement comme une onde de matière cohérente pouvant interférer avec lui-même, à la manière de la lumière d'un laser. L'observation de la condensation de Bose-Einstein dans les gaz mono-atomiques illustre donc de manière "macroscopique" les principes fondamentaux de la mécanique quantique. Les physiciens E. Cornell, C. Wieman et W. Ketterle ont été récompensés par le prix Nobel de physique 2001 pour cette découverte.

1.1.2 Les molécules froides

Le refroidissement de certains gaz atomiques et leur condensation sont aujourd'hui relativement bien maîtrisés dans les laboratoires et ont conduit à de nombreux résultats expérimentaux,

tels que la mise en évidence des propriétés de cohérence et de superfluidité des condensats atomiques. Parallèlement à ces recherches, les physiciens ont cherché à refroidir et contrôler des gaz de molécules, pour la plupart diatomiques. Les molécules sont en effet des objets plus complexes et plus riches que les atomes.

1.1.2.1 Obtention de molécules froides

Il y a quelques années, les molécules les plus froides étaient obtenues dans les jets supersoniques ou sur les gouttelettes d'hélium, pour des températures de l'ordre du kelvin. Pour descendre encore en température, on a cherché à appliquer les techniques de refroidissement laser utilisées avec succès pour les atomes. Malheureusement, les molécules possèdent beaucoup plus de niveaux d'énergie interne que les atomes, ce qui complique énormément les transitions à considérer et rend la tâche extrêmement difficile. Les physiciens se sont donc tournés vers d'autres techniques dites "non-optiques" comme la thermalisation d'un gaz de molécules "chaud" avec un autre gaz d'atomes "tampon" préalablement refroidi [Doyle1999, Peters2003], ou la décélération de jets de molécules polaires par effet Stark [Bethlem2000, Tarbutt2004]. Mais l'approche qui a connu le plus de succès jusqu'à présent est encore différente : plutôt que de refroidir directement les molécules, on cherche à les former à partir d'un gaz d'atomes froid en associant les atomes par paire. On obtient ainsi des molécules à températures inférieures au millikelvin ; on parle parfois de *molécules ultrafroides*.

Photoassociation

Une première méthode est d'utiliser un laser pour associer les paires d'atomes en collision dans un état électronique excité : on parle de *photoassociation* [Thorsheim1987, J.Weiner1999]. L'état lié ainsi formé est transitoire car en quelques dizaines de nanosecondes, il peut se désexciter par émission spontanée vers un état électronique plus stable. Par ailleurs, cet état est très faiblement lié : le mouvement relatif des atomes s'étend jusqu'à de grandes distances. En effet, à courte distance, les atomes sont fortement accélérés puis repoussés par le potentiel d'interaction. La probabilité de trouver les atomes à grande distance l'un de l'autre est donc importante. De fait, lorsque les paires se désexcitent, les atomes sont presque toujours très éloignés et se séparent à nouveau. Pour conserver la liaison entre les atomes, il faut réussir à les ralentir à courte distance. Ceci n'est possible que dans certaines circonstances dépendant crucialement des propriétés des potentiels moléculaires. Par exemple, pour les atomes de césium, un "croisement évité" dû à l'interaction spin-orbite engendre une structure en double-puit dans le potentiel excité $0_g^-(6S - 6P_{3/2})$. La barrière répulsive du puit externe a pour effet de ralentir le mouvement des atomes à courte distance, augmentant leur probabilité de présence à courte distance. Une fraction notable de paires peuvent ainsi se désexciter vers états liés du potentiel fondamental, conduisant à la formation de molécules stables. Ces molécules ont une distribution thermique des vitesses de leur centres de masse comparable à celle des atomes à partir desquels elles ont été formées. On crée ainsi un gaz de molécules froides [Bahns2000, MS2001]. Il faut cependant noter que leur énergie interne de vibration reste en général très importante.

La mise en évidence de telles molécules a été obtenue pour la première fois en 1998 au laboratoire Aimé Cotton [Fioretti1998], à partir d'un échantillon d'atomes froids de césium (non-condensés) contenu dans un piège magnéto-optique. D'autres laboratoires ont par la suite produit des molécules froides par cette technique dans le césium [Takekoshi1998], le potassium [Gabbanini2000, Fioretti2001], le rubidium [Nikolov1999, Nikolov2000] et le sodium [Fatemi2002].

L'objectif de nombreux physiciens a alors été de pouvoir former des molécules froides à partir d'un condensat atomique. L'espoir était de former un *condensat de molécules* ou *condensat moléculaire*, analogue aux condensats atomiques. Cependant, l'émission spontanée conduisant à la formation de molécules stables est un processus incohérent, ce qui compromet les chances de

maintenir les molécules formées dans le même état. Une intense activité de recherche théorique et expérimentale a alors commencé autour du problème de la formation de molécules et de condensats moléculaires. Une technique possible est l'utilisation de deux lasers de photoassociation pour créer des molécules stables par processus Raman stimulés [Wynar2000, Rom2004].

Résonances de Feshbach magnétiques

Parallèlement aux travaux sur la photoassociation, certains expérimentateurs ont porté leurs efforts sur les *résonances de Feshbach magnétiques* dans les condensats atomiques et les gaz d'atomes fermioniques. Comme nous l'expliquerons, ce phénomène est obtenu en appliquant un champ magnétique sur l'échantillon gazeux et présente des similitudes avec la photoassociation. Les résonances de Feshbach et la photoassociation relèvent toutes les deux de ce que nous appellerons le *couplage de voies moléculaires*. De fait, comme pour la photoassociation, il est possible d'associer des paires d'atomes en collision. Les molécules formées sont faiblement liées, mais stables car elles ne se désexcitent pas par émission spontanée. C'est ainsi que les premiers condensats moléculaires ont été mis en évidence en 2003, en utilisant les résonances de Feshbach magnétiques pour associer des paires d'atomes dans un condensat atomique [Donley2002, Herbig2003, Dürr2004, Xu2003] ou dans un gaz d'atomes fermioniques [Regal2003, Strecker2003, Cubizolles2003, M.Greiner2003, Jochim2003a, Zwierlein2003].

1.1.2.2 Intérêt des molécules froides

La formation de molécules à très basses températures a fait énormément progresser la physique moléculaire. La spectroscopie de photoassociation à basse température, proposée en 1987 par Thorheim *et al.* [Thorheim1987], consiste à observer les pertes d'atomes dans un gaz froid lorsqu'on varie la fréquence d'un laser de photoassociation. Cette spectroscopie est analogue à la spectroscopie classique où l'on effectue des transitions entre états liés, mais est basée sur des transitions libre-lié. En effet, la distribution thermique des énergies de collision est très faible, et conduit à un très faible élargissement des raies. Cette spectroscopie de précision a permis d'améliorer notablement notre connaissance de la structure interne des molécules, en particulier pour les états faiblement liés. Cela permet en retour d'affiner notre connaissance des interactions moléculaires à grande distance, et de déterminer les paramètres décrivant la collision entre atomes, tels que la longueur de diffusion, ou les coefficients C_n du développement multipolaire en C_n/r^n de la forme asymptotique des potentiels (r désigne ici la distance entre les atomes). La détermination de ces coefficients a des retombées en métrologie puisqu'on peut déterminer avec une précision la durée de vie radiative de l'état atomique excité [McAlexander1995, Amiot2002].

De manière générale, l'obtention de molécules froides permet un nouveau champ d'exploration en matière de collision à basse énergie. Les collisions entre atomes et molécules ou entre deux molécules à basse énergie sont particulièrement sensibles aux phénomènes de résonances et sont encore mal connues. Une tendance se dégage par ailleurs pour contrôler de plus en plus précisément les collisions entre atomes et leur photoassociation à l'aide de champs laser. On imagine déjà une "photochimie froide" où l'on pourrait contrôler précisément les réactions atome par atome à l'aide d'impulsions laser.

Enfin, la présence d'un moment dipolaire permanent dans les molécules hétéronucléaires ouvre des possibilités nouvelles par rapport aux atomes froids. D'une part, les interactions dipôle-dipôle sont anisotropes et à longue portée, ce qui les distingue des interactions habituelles entre atomes. Ces interactions pourraient par exemple être exploitées pour réaliser un système d'information quantique où le rôle des "q-bits" serait tenu par des molécules polaires alignées ou contre-alignées par rapport à un champ électrique [DeMille2002]. D'autre part, les molécules polaires froides sont actuellement produites et utilisées dans certaines expériences cherchant à mesurer un éventuel moment dipolaire de l'électron [Hudson2002, Tarbutt2004]. Le champ électrique de la molécule

polaire permet en effet d'accroître énormément la précision des mesures dans ce type d'expériences [E.A.Hinds1997] par rapport à celles utilisant des atomes. La mise en évidence d'un moment dipolaire électrique élémentaire aurait un impact considérable puisqu'elle nécessiterait de revoir le modèle standard de la physique des particules.

1.2 Voies couplées dans un condensat

Lorsque j'ai commencé ma thèse au laboratoire Aimé Cotton au sein de l'équipe théorique du groupe "Atomes, Molécules et Plasmas froids", les condensats moléculaires n'avaient pas encore été réalisés et constituaient un défi expérimental. L'objectif de mon travail était de modéliser théoriquement la photoassociation dans les condensats afin de mieux en comprendre les caractéristiques et les possibilités. Jusque là, l'équipe théorique n'avait traité la photoassociation que dans le cadre de la physique moléculaire à deux atomes. Les effets intervenant dans le cas des condensats restaient à découvrir.

1.2.1 Champ moyen et interactions de contact

Le modèle théorique alors en cours pour décrire les résonances entre voies couplées dans les condensats correspondait aux *équations de Gross-Pitaevskiï couplées* [Timmermans1999] : il s'agit d'une théorie de champ moyen traduisant les couplages et les interactions à l'aide de *potentiels de contact effectifs*. L'utilisation de potentiels de contact effectifs¹ est une approche très concise et élégante tirant parti des conditions particulières dans les gaz froids. En effet, à très basse température, la longueur d'onde de de Broglie associée au mouvement relatif des atomes est très grande devant l'échelle caractéristique des potentiels d'interaction et de la physique moléculaire. Les détails des interactions sont donc "noyés" à l'échelle macroscopique d'un condensat, et ne s'expriment à cette échelle qu'à travers un nombre limité de paramètres, dont la *longueur de diffusion*. On s'arrange donc pour construire une théorie à N corps effective à grande échelle ne résolvant pas le détail microscopique des interactions : celles-ci sont remplacées par des interactions effectives n'agissant que lorsque les corpuscules (atomes, molécules) se situent au même point, les paramètres de couplages étant ajustés pour tenir compte des effets à grandes distances des interactions réelles. Ces paramètres de couplage, tels que la longueur de diffusion, peuvent être par ailleurs calculés précisément dans le cadre de la physique moléculaire.

Malgré l'élégance de cette approche, on s'est posé la question de sa pertinence dans le cas où l'on couple des voies moléculaires dans un système (par photoassociation ou résonance de Feshbach), en particulier dans les situations dépendant du temps. La dynamique des paires est en général complexe et requiert la connaissance précise des potentiels réels d'interaction, car les réactions de photoassociation ou les résonances de Feshbach se produisent précisément aux courtes distances relevant de la physique moléculaire. La photoassociation dépendant du temps était déjà un thème de recherche de l'équipe théorique du laboratoire [Vala2001, Vatasescu2001] et a continué à se développer avec l'étude de la photoassociation à l'aide de pulses laser "chirpés" (c'est-à-dire à dérive de fréquence) [Vatasescu2002, LK2004a]. Dans ce type de réaction, un grand nombre d'états liés entrent en jeu, et le remplacement par une interaction de contact effective paraît impossible. Par ailleurs, un certain nombre d'articles ont fait allusion à l'absence de dynamique des paires dans le modèle de champ-moyen [vA1999] ou aux limitations du potentiel de contact [Leggett2001].

Cela m'a ainsi amené à chercher un modèle pouvant tenir compte explicitement de la physique moléculaire. Un des enjeux était aussi de comprendre comment la théorie de champ moyen pouvait se dériver à partir de la physique moléculaire, autrement que par le postulat des interactions effectives de contact. Je me suis donc intéressé aux modèles à N corps les plus simples tenant

¹connus aussi sous le nom de "potentiels de portée nulle"

compte des corrélations entre paires d'atomes. Il s'agit des modèles de *Bogolioubov* et *Hartree-Fock-Bogolioubov*. L'étude de ces modèles m'a confronté à certains problèmes, dont le paradoxe de l'énergie fondamentale de Bogolioubov et de Gross-Pitaevskiï. En approfondissant la question, je me suis aperçu que ces problèmes étaient liés à l'utilisation de potentiels de contact. Cela m'a conforté dans l'idée qu'une compréhension du problème à N corps au-delà de l'interaction de contact était nécessaire sur le plan théorique.

1.2.2 L'approche des fonctions d'onde effectives

Mes premières tentatives d'utilisation de potentiels réalistes dans les modèles de Bogolioubov ou Hartree-Fock-Bogolioubov n'ont pas abouti. J'ai alors réalisé que le problème venait de ce que ces modèles correspondent à des traitements perturbatifs du potentiel d'interaction. Or, les potentiels réalistes ne peuvent pas être traités perturbativement, du fait de leur mur fortement répulsif à très courtes distances. Le traitement perturbatif de ces potentiels conduit en effet à des divergences. J'ai donc cherché un formalisme à N corps incluant les corrélations entre les paires d'atomes et traitant correctement les potentiels d'interaction. La découverte des travaux d'A. Yu Cherny et A. A. Shanenko m'a beaucoup éclairé [Cherny1998, Cherny2000]. Ils font partie des rares travaux à traiter directement du problème des condensats sans passer par le remplacement du potentiel d'interaction par un potentiel effectif. Ils correspondaient précisément à la voie dans laquelle je m'étais engagé. J'ai donc suivi leur approche, que j'appellerai l'*approche des fonctions d'onde effectives* dans cette thèse. J'ai ainsi pu généraliser une partie de cette approche au cas non-uniforme dépendant du temps, ainsi qu'au cas d'un système de voies couplées correspondant à mon problème initial. Cette généralisation m'a permis de comprendre l'origine de la théorie de champ moyen à partir d'une vision microscopique ne reposant pas sur l'utilisation de potentiel de contact, comme je l'ai détaillé dans l'article [Naidon2003]. Les équations de Gross-Pitaevskiï couplées correspondent ainsi à la limite des équations sur les fonctions d'onde effectives lorsque la dynamique de paire peut-être éliminée. Dans cette perspective, l'approche des fonctions d'onde effectives m'est apparu comme le moyen adéquat pour traiter le problème des voies couplées dans un condensat au-delà du champ moyen.

1.2.3 Autres approches

Entre temps, d'autres méthodes ont été construites pour aller au-delà de la théorie de champ moyen. Les deux approches principales que nous avons considérées sont le modèle Hartree-Fock-Bogolioubov développé par le groupe de M. J. Holland au JILA et l'approche des cumulants développée par T. Köhler dans le groupe de K. Burnett à Oxford. La première approche utilise des potentiels de contact effectifs pour décrire le couplage des voies, alors que la seconde utilise des potentiels séparables effectifs. Ces deux modèles ont pu interpréter quantitativement [Kokkelmans2002a, Köhler2003a] l'observation expérimentale d'oscillations entre atomes et molécules dans un condensat [Donley2002], que la théorie de champ moyen ne décrit pas correctement. Elles ont également pu décrire (de manière moins concluante) les expériences dites de "Bosenova" [Stenger1998, Cornish2000, Donley2001]. Ces travaux ont ainsi confirmé l'importance de la corrélation de paire entre atomes et le rôle joué par le condensat moléculaire lors d'une résonance de Feshbach. Par ailleurs, le fait que les expériences ont pu être décrites uniquement à l'aide d'interactions effectives a modéré l'idée que les potentiels moléculaires devaient être traités explicitement. Néanmoins, la compréhension de la structure des corrélations à courte distance et du rôle qu'elles peuvent avoir reste un problème ouvert.

1.3 Plan de la thèse

Nous effectuerons tout d'abord un rappel de la physique moléculaire et de la théorie des collisions à basse énergie au chapitre 2, avec pour objectif de décrire les résonances de Feshbach et la photoassociation. Dans le chapitre 3, nous étudierons dans un premier temps différents modèles théoriques auxquels nous nous sommes intéressés pour décrire les condensats atomiques, en précisant les difficultés que nous avons rencontrées par rapport à l'utilisation de potentiels de contact dans les modèles de Bogolioubov et Hartree-Fock-Bogolioubov. Dans un second temps, je présenterai mon travail sur le développement d'un modèle théorique pour traiter les interactions réalistes à travers l'approche des fonctions d'onde effectives.

Le chapitre 4 constituera une synthèse des deux premiers chapitres : on donnera la généralisation des différents modèles théoriques sur les condensats dans le cas où l'interaction entre atomes est décrite par un système de voies moléculaires couplées. Je présenterai ainsi les modèles élaborés par certains auteurs pour décrire les voies couplées dans les condensats et la formation de condensats moléculaires, en particulier ceux de M. J. Holland et T. Köhler. Je donnerai enfin la généralisation de l'approche des fonctions d'onde effectives à plusieurs voies couplées.

Nous verrons ensuite les différentes applications numériques réalisées au cours de ce travail de thèse. Je donnerai tout d'abord au chapitre 5 le détail des méthodes numériques utilisées, et les applications proprement dites seront exposées au chapitre suivant. Les premiers calculs concernent le rubidium 87 et le sodium 23 et ont pour objet de calculer les modifications de la longueur de diffusion par photoassociation (résonance de Feshbach optique) dans le cadre de la théorie à deux atomes. La seconde partie traite de la photoassociation dans les condensats, en se basant sur deux approximations des théories à N corps dérivées des chapitres 3 et 4 : l'*approximation des cumulants au premier ordre* et l'*approximation de la paire réduite*. Cette comparaison numérique constitue un premier pas dans la compréhension du rôle des corrélations à courtes distances.

Chapitre 2

Théorie à deux atomes

Ce chapitre se divise en deux parties. Dans un premier temps, nous donnerons les bases de physique moléculaire permettant de décrire l'interaction entre deux atomes [Joachain1975, LB2004]. La présentation sera inspirée du cours de Physique moléculaire et collision de Christian Jungen et de la thèse de Daniel Comparat [Comparat1999]. Cette description nous permet d'introduire les notions de potentiel d'interaction et de longueur de diffusion. Nous classerons ensuite les interactions de manière très générale en deux grandes catégories : les interactions "douces" et les interactions "fortes". Dans un second temps, nous verrons comment la physique moléculaire donne la possibilité de "coupler certaines voies de collision" par résonance de Feshbach magnétique ou par photoassociation. Nous étudierons les effets de ces couplages dans un condensat de Bose-Einstein au chapitre 4.

2.1 Théorie des collisions à deux atomes

2.1.1 Quelques éléments de physique moléculaire

2.1.1.1 Hamiltonien d'une paire d'atomes

Une paire d'atomes en interaction est un système de deux noyaux atomiques entouré d'un nuage électronique. On peut décrire la dynamique de ce système par les coordonnées de chacune des particules dans un repère fixe. Appelons \mathbf{x}_a et \mathbf{x}_b les coordonnées des noyaux des deux atomes dans ce repère et \mathbf{x}_i la coordonnée du i ème électron du nuage électronique. Le système est alors décrit de manière quantique non-relativiste par une fonction d'onde $\Phi(\mathbf{x}_a, \mathbf{x}_b, \mathbf{x}_i \dots)$, où $\mathbf{x}_i \dots$ représente l'ensemble des coordonnées électroniques \mathbf{x}_i . Pour simplifier la description, on se place dans un repère dit "moléculaire" centré sur le centre de masse des noyaux (par exemple) et orienté dans la direction de la droite joignant les deux noyaux (axe moléculaire) - voir la figure 2.1. Après ce changement de coordonnées, le système est décrit par une fonction d'onde $\Phi(\mathbf{R}, \mathbf{r}, \dots \mathbf{r}_i \dots)$, où \mathbf{R} est la position du centre de masse dans le repère fixe, $\mathbf{r} = \mathbf{r}_a - \mathbf{r}_b$ est la position relative des deux noyaux, et $\mathbf{r}_i = \mathbf{x}_i - \mathbf{R}$ sont les coordonnées des électrons dans le nouveau repère.

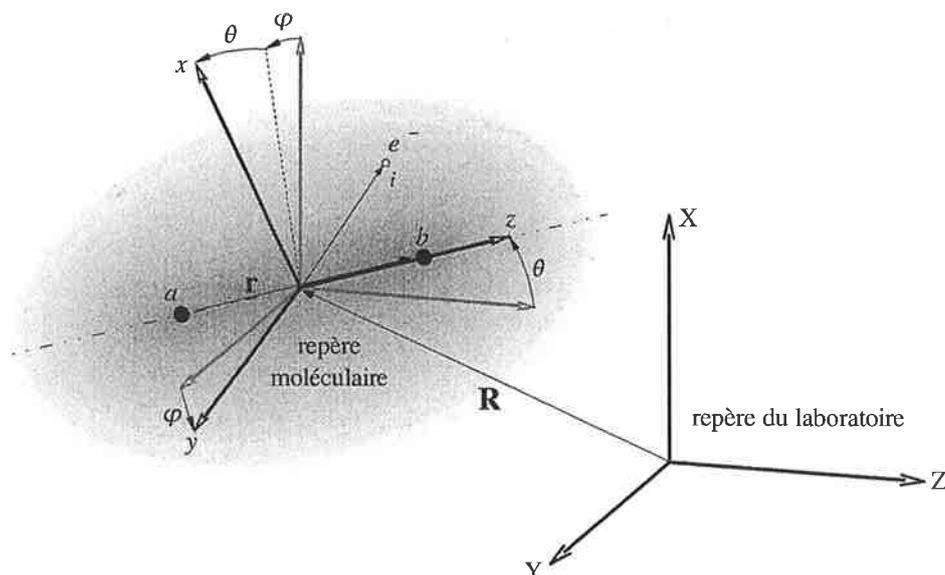


FIG. 2.1 – Passage du repère du laboratoire au repère moléculaire.

L'hamiltonien du système s'écrit avec ce jeu de coordonnées¹ [Comparat1999] :

$$\hat{H} = \underbrace{-\frac{\hbar^2}{2(m_a + m_b)} \nabla_{\mathbf{R}}^2}_{\hat{H}_{cdm}} \underbrace{-\frac{\hbar^2}{2\mu} \nabla_{\mathbf{r}}^2}_{\hat{H}_{noy}} \underbrace{-\frac{\hbar^2}{2m_e} \sum_i \nabla_{\mathbf{r}_i}^2 + V(r, \mathbf{r}_i)}_{\hat{H}_{el}} \underbrace{-\frac{\hbar^2}{2(m_a + m_b)} \left(\sum_{i,j} \nabla_{\mathbf{r}_i} \cdot \nabla_{\mathbf{r}_j} - 2\nabla_{\mathbf{R}} \cdot \sum_i \nabla_{\mathbf{r}_i} \right)}_{\hat{H}'_{el}}$$

où m_a et m_b sont les masses des deux noyaux, $\mu = \frac{m_a m_b}{m_a + m_b}$ leur masse réduite, et m_e la masse d'un électron. Le potentiel V traduit les interactions électrostatiques entre toutes les particules, et ne dépend de \mathbf{r} que par l'intermédiaire de son module r . Nous n'avons pas explicité les degrés de liberté de spin des noyaux et des électrons. Si l'on tient compte des effets relativistes, ces spins se couplent entre eux et avec le mouvement de rotation des atomes. Au premier ordre, cela a pour effet de rajouter des termes d'interaction qu'on peut inclure soit dans le terme \hat{H}_{el} , soit dans les terme \hat{H}'_{el} .

La résolution de ce système à plusieurs corps est *a priori* très complexe. Néanmoins, on sait que les protons et les neutrons composant les noyaux sont environ 1800 fois plus lourds que les électrons. On s'attend donc à ce que les électrons soient beaucoup plus rapides et forment un nuage s'adaptant en permanence au mouvement plus lent des noyaux. Cette image permet de simplifier grandement le problème, et est à la base de l'approche standard introduite par Born et Oppenheimer en 1936.

2.1.1.2 Développement de la fonction d'onde et équations couplées

Le mouvement de centre de masse se couple *a priori* au mouvement des électrons par l'intermédiaire du terme \hat{H}'_{el} . Comme les électrons sont plus légers que les noyaux, on s'attend à

¹Nous écrivons les termes d'énergie cinétique sous une forme synthétique avec des opérateurs *nabla*. C'est une notation vectorielle intrinsèque, qui a la commodité de ne pas dépendre de l'orientation du repère choisi. Néanmoins, pour plus d'exactitude, il convient d'écrire explicitement ces opérateurs *nabla* en termes d'opérateurs différentiels sur les coordonnées des vecteurs, qui elles dépendent de l'orientation du repère. En particulier, dans le repère moléculaire, l'opérateur $\nabla_{\mathbf{r}}$ s'écrit en fonction de $|\mathbf{r}|$, des angles d'orientation du repère θ et ϕ , mais aussi des coordonnées \mathbf{r}_i des électrons dans le repère moléculaire. Il faut donc prendre la notation $\nabla_{\mathbf{r}}$ avec prudence. Néanmoins, nous n'entrerons pas dans ces subtilités.

ce qu'ils perturbent peu le mouvement d'ensemble. En négligeant ce couplage, le mouvement de centre de masse est uniquement déterminé par le terme d'énergie cinétique \hat{H}_{cdm} , ce qui signifie qu'il s'agit d'un mouvement libre. Les états propres de l'hamiltonien s'écrivent donc sous la forme factorisée :

$$\phi(\mathbf{R}, \mathbf{r}, \mathbf{r}_i \dots) = \phi^{cdm}(\mathbf{R}) \cdot \phi^{noy+el}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_i \dots)$$

où ϕ^{cdm} est une onde plane traduisant le mouvement de translation du système. On se débarasse ainsi du mouvement de centre de masse.

L'idée suivante est de considérer que les électrons tournent rapidement autour des noyaux et s'adaptent à chaque instant à leur mouvement. On cherche alors les vecteurs et les valeurs propres de l'hamiltonien électronique \hat{H}_{el} pour chaque valeur de la distance interatomique r :

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2m_e} \sum_i \nabla_{\mathbf{r}_i}^2 + V(r, \mathbf{r}_i) \right) \phi^{el}(\mathbf{r}_i; r) = U(r) \phi^{el}(\mathbf{r}_i; r)$$

On indice ces énergies et fonctions propres avec les nombres quantiques associés aux symétries de l'hamiltonien électronique : projection Λ du moment cinétique électronique sur l'axe moléculaire (associée à la symétrie de rotation autour de l'axe), Cela conduit à une classification des différents états électroniques moléculaires possibles.

Par commodité, nous les indiquons ici simplement par une seule lettre n . Les énergies propres obtenues U_n dépendent de la distance r . Elles forment donc différentes courbes d'énergie potentielle que ressentent les noyaux lorsqu'ils se déplacent l'un par rapport à l'autre. La forme de ces courbes est très différente d'un état à l'autre. Néanmoins, elles présentent toujours les mêmes caractéristiques à grande et courte distances. À la *limite de dissociation*, c'est-à-dire pour les grandes séparations internucleaires ($r \rightarrow \infty$), on se retrouve avec deux atomes isolés et l'énergie U_n correspondante est la somme des énergies électronique de deux atomes. À courtes distances (de l'ordre de quelques rayons de Bohr), les nuages électroniques de deux atomes se repoussent fortement ; l'énergie potentielle U_n devient très grande et forme une barrière répulsive quasi-impénétrable.

Une fois que l'on a déterminé tous les états électroniques moléculaires possibles, on peut décomposer la fonction d'onde ϕ^{noy+el} sur cette base :

$$\phi^{noy+el}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_i \dots) = \sum_n \phi_n^{noy}(\mathbf{r}; \mathbf{r}_i) \phi_n^{el}(\mathbf{r}_i \dots; r)$$

Les fonctions d'onde ϕ_n^{noy} décrivent le mouvement relatif des noyaux dans chacun des états électroniques moléculaires. Le nuage électronique de la paire d'atomes pouvant être dans une superposition quantique de plusieurs états propres électroniques ϕ_n^{el} , le mouvement relatif des noyaux peut être une superposition de différents états représentés par les composantes ϕ_n^{noy} . On peut en outre décomposer ces fonctions d'onde des noyaux sur les états propres angulaires de l'opérateur cinétique $-\frac{\hbar^2}{2\mu} \nabla_{\mathbf{r}}^2$. On montre que ces états propres sont des matrices de rotation de Wigner $\sqrt{\frac{2J+1}{4\pi}} D_{M_J, m_J}^{J*}(\theta, \varphi, 0)$, où θ et φ sont les angles qui repèrent l'orientation de l'axe moléculaire par rapport à un axe fixe du laboratoire. Ces états propres dépendent du moment cinétique total de la molécule J , et de ses projections M_J et m_J sur l'axe fixe du laboratoire et sur l'axe moléculaire respectivement. On peut donc écrire :

$$\phi_n^{noy}(\mathbf{r}; \mathbf{r}_i) = \sum_{J, M_J, m_J} \sqrt{\frac{2J+1}{4\pi}} D_{M_J, m_J}^{J*}(\theta, \varphi, 0) \frac{F_{n, J, M_J, m_J}(r)}{r}$$

La fonction d'onde $F_{n, J, M_J, m_J}(r)$ décrit alors le mouvement relatif radial des deux noyaux dans un état propre du nuage électronique ϕ_n^{el} , et dans un état propre de rotation de la molécule

D_{M_J, m_J}^{J*} . La fonction d'onde totale de la paire d'atomes s'écrit donc au final :

$$\phi(\mathbf{R}, r, \theta, \phi, \mathbf{r}_i \dots) = \phi^{cdm}(\mathbf{R}) \cdot \sum_{n, J, M_J, m_J} \sqrt{\frac{2J+1}{4\pi}} D_{M_J, m_J}^{J*}(\theta, \varphi, 0) \frac{F_{n, J, M_J, m_J}(r)}{r} \phi_n^{el}(\mathbf{r}_i \dots; r)$$

Une *voie de collision* correspond par définition à un certain état électronique moléculaire ϕ_n^{el} et un certain état de rotation de la molécule D_{M_J, m_J}^{J*} . Il lui est associé le mouvement radial décrit par la fonction d'onde $F_{n, J, M_J, m_J}(r)$. Par commodité, nous utiliserons aussi le terme de *voie (électronique)* pour parler d'un état électronique moléculaire, indépendamment de l'état de rotation. À une voie électronique est associée un mouvement relatif des noyaux décrit par la fonction d'onde $\phi_n^{noy}(\mathbf{r}; \mathbf{r}_i)$.

En projetant l'équation de Schrödinger indépendante du temps $\hat{H}\Psi = E\Psi$ sur un état électronique moléculaire ϕ_n^{el} , on obtient l'équation de Schrödinger pour la composante ϕ_n^{noy} :

$$\begin{aligned} \left(-\frac{\hbar^2}{2\mu} \nabla_{\mathbf{r}}^2 + U_n(r) + \underbrace{\langle \phi_n^{el} | -\frac{\hbar^2}{2\mu} \nabla_{\mathbf{r}}^2 + \hat{H}'_{el} | \phi_n^{el} \rangle - E}_{\text{terme diagonal}} \right) \phi_n^{noy}(\mathbf{r}; \mathbf{r}_i) \\ + \sum_{p \neq n} \underbrace{\langle \phi_n^{el} | -\frac{\hbar^2}{2\mu} \nabla_{\mathbf{r}}^2 + \hat{H}'_{el} | \phi_p^{el} \rangle}_{\text{termes non-diagonaux}} \phi_p^{noy}(\mathbf{r}; \mathbf{r}_i) \\ + \sum_{p, n} \underbrace{\langle \phi_n^{el} | -\frac{\hbar^2}{\mu} \vec{\nabla}_{\mathbf{r}} | \phi_p^{el} \rangle \cdot \vec{\nabla}_{\mathbf{r}}}_{\text{couplages rotationnels et radiaux}} \phi_p^{noy}(\mathbf{r}; \mathbf{r}_i) = 0 \end{aligned} \quad (2.1)$$

avec $\langle \phi_n^{el} | -\frac{\hbar^2}{2\mu} \nabla_{\mathbf{r}}^2 + \hat{H}'_{el} | \phi_p^{el} \rangle = \int d^3\mathbf{r}_i \dots \phi_n^{el*}(\mathbf{r}_i \dots; r) \left[-\frac{\hbar^2}{2\mu} \nabla_{\mathbf{r}}^2 + \hat{H}'_{el} \right] \phi_p^{el}(\mathbf{r}_i \dots; r)$. On constate que la composante dans l'état n se couple *a priori* avec les autres composantes, à cause du terme de couplage \hat{H}'_{el} d'une part, et du fait que les états électroniques sont sensibles à l'opérateur cinétique $-\frac{\hbar^2}{2\mu} \nabla_{\mathbf{r}}^2$ (ce qu'on appelle les couplages radiaux et rotationnels). On peut écrire l'ensemble des équations couplées sous forme matricielle :

$$\left\{ -\frac{\hbar^2}{2\mu} \nabla_{\mathbf{r}}^2 + \begin{bmatrix} \vec{R}_{11} & \vec{R}_{21}^* & \dots & \vec{R}_{n1}^* \\ \vec{R}_{21} & \vec{R}_{22} & \dots & \vec{R}_{n2}^* \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \vec{R}_{n1} & \vec{R}_{n2} & \dots & \vec{R}_{nn} \end{bmatrix} \cdot \vec{\nabla}_{\mathbf{r}} + \begin{bmatrix} U'_1 & H_{21}^* & \dots & H_{n1}^* \\ H_{21} & U'_2 & \dots & H_{n2}^* \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ H_{n1} & H_{n2} & \dots & U'_n \end{bmatrix} - E \right\} \begin{bmatrix} \phi_1^{noy}(\mathbf{r}; \mathbf{r}_i) \\ \phi_2^{noy}(\mathbf{r}; \mathbf{r}_i) \\ \vdots \\ \phi_n^{noy}(\mathbf{r}; \mathbf{r}_i) \end{bmatrix} = 0 \quad (2.2)$$

où $\vec{R}_{n,p}(r) = \langle \phi_n^{el} | -\frac{\hbar^2}{\mu} \vec{\nabla}_{\mathbf{r}} | \phi_p^{el} \rangle$, et les termes diagonaux $U'_n(r) = U_n(r) + \langle \phi_n^{el} | -\frac{\hbar^2}{2\mu} \nabla_{\mathbf{r}}^2 + \hat{H}'_{el} | \phi_n^{el} \rangle$ et non-diagonaux $H_{np} = \langle \phi_n^{el} | -\frac{\hbar^2}{2\mu} \nabla_{\mathbf{r}}^2 + \hat{H}'_{el} | \phi_p^{el} \rangle$ forment un potentiel "multivoies" en notation matricielle. De même, en projetant les équations sur les différents états de rotation de la molécule, on obtient les équations couplées sur les fonctions radiales $F_{n, J, M_J, m_J}(r)$.

En diagonalisant l'ensemble de ces équations, on obtient l'ensemble des états propres de l'hamiltonien total \hat{H} . Chacun de ces états propres a une composante sur chaque voie. Certains de ces états sont confinés dans un domaine radial, traduisant l'existence de molécules diatomiques (états liés). Ils forment un spectre discret d'états. Les autres états s'étendent jusqu'à l'infini, et correspondent à des états de diffusion de la paire d'atomes (états libres). Ils forment un spectre continu se superposant au spectre discret. Ce spectre continu admet un *seuil*, c'est-à-dire une énergie propre minimale correspondant à l'état de diffusion à énergie cinétique nulle. Comme nous le verrons, il est important de connaître ce seuil lorsqu'on considère un système à N corps.

En négligeant les termes non-diagonaux et radiaux/rotationnels responsables du couplage entre les différentes voies, on effectue l'*approximation adiabatique*. Dans ce cas, chaque composante ϕ_n^{noy} est découplée et évolue librement sous l'influence du potentiel U_n et du terme diagonal supplémentaire $\langle \phi_n^{el} | -\frac{\hbar^2}{2\mu} \nabla_r^2 + \hat{H}'_{el} | \phi_n^{el} \rangle$. Ce terme traduit le fait que les électrons suivent adiabatiquement le mouvement des noyaux, ce qui induit un accroissement de leur énergie cinétique qui vient s'ajouter à l'énergie électronique U_n . Si l'on néglige en outre ce terme, on effectue ce qu'on appelle l'*approximation de Born-Oppenheimer*. Dans les deux approximations, on n'a plus besoin de connaître explicitement les fonctions d'onde électronique pour résoudre le problème. Seule la connaissance des courbes de potentiels U_n ou U'_n est nécessaire. Les états propres obtenus n'ont qu'une seule composante non-nulle, et correspondent à des états non-perturbés (par les couplages entre voies).

En général, les couplages ne sont présents qu'entre certaines voies. Il existe en effet des règles de sélection liées aux symétries des différents états électroniques qui interdisent les couplages entre certaines voies. Si les couplages restants ne sont pas trop forts, les états non-perturbés "mono-voies" (calculés dans l'approximation adiabatique ou de Born-Oppenheimer) donnent une première image approchée des différents états du système "multi-voies". On peut en général indiquer les différents états non-perturbés d'une voie donnée à l'aide du moment cinétique total J et d'un indice ν correspondant au niveau de vibration.

2.1.1.3 Bases diabatique et adiabatique

Nous avons dit que nous pouvions inclure les effets relativistes (spin-orbite, hyperfin, etc) soit dans \hat{H}_{el} , soit dans \hat{H}'_{el} . Le choix que l'on fait conduit à des bases d'états électroniques différentes [LB2004]. Choisissons tout d'abord de rejeter ces termes dans \hat{H}'_{el} . Dans ce cas, les valeurs propres de l'hamiltonien électronique \hat{H}_{el} sont plus simples à calculer et conduisent à des courbes de potentiels $U_n(r)$ ayant une dépendance radiale assez douce. Mais comme on ne tient pas compte de toutes les interactions, la levée de dégénérescence entre ces valeurs propres n'est que partielle : les courbes peuvent donc se superposer ou se croiser à certaines distances r (voir figure 2.2). Par ailleurs, les fonctions d'onde électroniques $\phi_n^{el}(\mathbf{r}_i, \dots; r)$, états propre de l'hamiltonien électronique \hat{H}_{el} pour chaque distance r , ont aussi une dépendance assez douce vis-à-vis de r . Les couplages radiaux sont alors assez faibles et on peut, en première approximation, les négliger. En revanche, les termes diagonaux provenant de \hat{H}'_{el} (donc traduisant les couplages relativistes) peuvent être importants, et leurs effets se font sentir notablement aux endroits où les courbes de potentiels se croisent. En effet, on peut dire de manière intuitive qu'à l'endroit du croisement entre deux voies, la paire d'atomes a tendance à rester dans sa voie d'origine si son mouvement radial est suffisamment rapide lors du passage du croisement ; en revanche, elle peut bifurquer de voie (changer d'état électronique) grâce aux couplage entre les deux voies si son mouvement radial est assez lent. On est dans le cas d'une base de fonctions d'onde électroniques dite *diabatique*, où les éléments essentiels du système d'équations couplées (2.2) sont les courbes de potentiel U_n (dites diabatiques) et les couplages non-diagonaux H_{np} entre ces courbes.

On peut au contraire choisir d'inclure les effets relativistes dans l'hamiltonien électronique \hat{H}_{el} . Dans ce cas, les potentiels obtenus ont comportement plus violent à certains endroits, car les effets relativistes maintenant présents dans \hat{H}_{el} entraînent une levée de dégénérescence à l'endroit où les courbes diabatiques se croisaient : on parle de croisement évité (voir figure 2.2). Les termes diagonaux provenant de \hat{H}'_{el} (ne contenant plus que des couplages cinétiques entre électrons) sont maintenant relativement faibles, et on peut les négliger en première approximation. Les courbes de potentiels ne sont donc plus couplées par des termes diagonaux. En revanche, les couplages radiaux sont maintenant importants, en particulier près des croisements évités. Intuitivement, on peut dire que la paire d'atome a tendance à rester dans sa voie d'origine lorsqu'elle passe suffisamment lentement au voisinage du croisement évité ; en revanche, si elle y passe plus

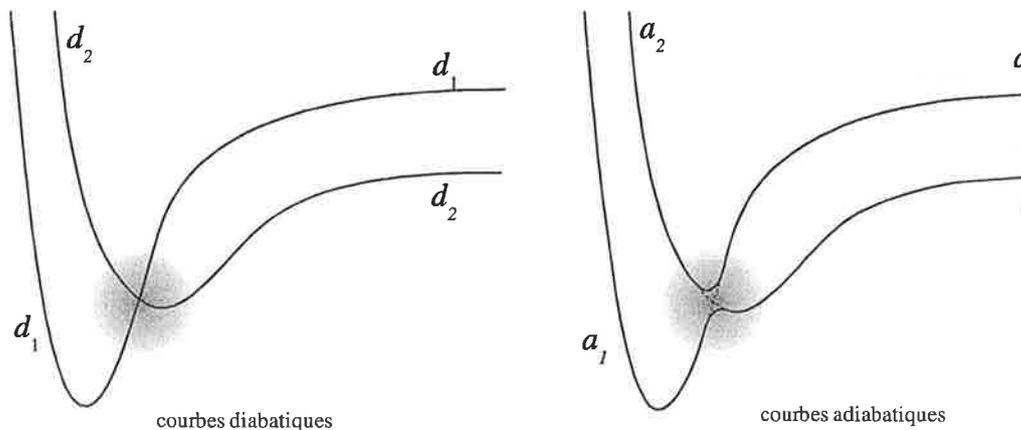


FIG. 2.2 – Représentation de deux potentiels diabatiques dans une certaine base de fonctions d’onde électronique, et adiabatiques dans une autre base. Les courbes diabatiques présentent un croisement qui par levée de dégénérescence devient un croisement évité pour les potentiels adiabatiques. Au voisinage de ce croisement, les voies diabatiques sont principalement couplées par des potentiels non diagonaux dans la base diabatique, alors que les voies adiabatiques sont principalement couplées par des couplages radiaux.

rapidement, elle peut “sauter” d’une voie à l’autre du fait des couplages radiaux entre ces deux voies. On est dans le cas d’une base de fonctions d’onde électroniques dite *adiabatiques*, où les éléments essentiels du système d’équations couplées (2.2) sont les courbes de potentiel U_n (dites adiabatiques) et les couplages radiaux \vec{R}_{np} entre ces courbes.

Bien sûr, les bases adiabatique et diabatique sont deux représentations équivalentes du même problème. On se convaincra que la situation est la même, notamment à l’aide des figures 2.2. On passe simplement d’une représentation à l’autre à l’aide de la matrice de passage entre les deux bases, qu’on obtient en pratique en diagonalisant le potentiel multivoie diabatique. Notons que cette matrice de passage, doit être calculée, comme les fonctions d’onde électronique, pour chaque distance r . C’est précisément cette dépendance en r qui introduit de nouveaux couplages radiaux lorsqu’on passe de la base diabatique à la base adiabatique.

Il faut enfin préciser qu’on utilise couramment les termes “diabatique” et “adiabatique” vis-à-vis d’un terme d’interaction bien précis (comme l’interaction spin-orbite, l’interaction hyperfine, mais aussi d’autres couplages comme celui que nous introduirons au paragraphe 2.2.2.1 pour la photoassociation). Si la base électronique choisie diagonalise ce terme d’interaction (c’est-à-dire qu’on l’a inclut dans l’hamiltonien électronique \hat{H}_{el}), on parle de base adiabatique (pour cette interaction) et si la base ne le diagonalise pas (on a préféré l’inclure dans \hat{H}'_{el}), alors on parle de base diabatique (pour cette interaction).

2.1.1.4 Voies ouvertes et voies fermées

Plaçons dans une base de fonctions d’onde électroniques où les couplages sont nuls à grandes distances interatomiques (par exemple, dans le cas d’une base adiabatique). Pour une énergie donnée E , on dira qu’une voie est ouverte si le seuil du potentiel associé à cette voie (l’énergie asymptotique à grande distance) est au-dessous de E . On s’attend à ce que la composante sur cette voie de l’état propre d’énergie E corresponde à un état de diffusion. On dira qu’une voie est fermée si le seuil du potentiel associé à cette voie est au-dessus de E . On s’attend à ce que la composante sur cette voie de l’état propre d’énergie E corresponde à un état lié.

2.1.2 Amplitudes de diffusion - longueur de diffusion

2.1.2.1 Équations couplées à deux voies

Afin de décrire la réaction de photoassociation ou de résonance de Feshbach discutées plus loin, nous allons considérer pour simplifier un système à deux voies électroniques : une voie électronique fondamentale correspondant à l'état de collision non-perturbé, qu'on appellera "voie (1)", et une seconde voie électronique admettant des états liés, qu'on appellera "voie (2)". À ces voies sont associées des courbes de potentiels (diabatiques) qu'on notera respectivement $U_1(\mathbf{r})$ et $U_2(\mathbf{r})$. Le système est décrit par des fonctions d'onde ϕ_1 et ϕ_2 associées au mouvement relatif des noyaux dans chacune des voies électroniques.

Cherchons un état stationnaire de diffusion, c'est-à-dire un état propre de l'hamiltonien du système pour une valeur propre E supérieure à l'énergie de seuil E_{seuil} du système couplé. Le but ici est d'étudier les modifications que l'interaction multivoie apporte à cet état stationnaire par rapport à un état "libre" (en absence d'interaction). En négligeant les couplages rotationnels et radiaux, les équations couplées (2.1) s'écrivent dans la base diabatique :

$$\begin{cases} \left(-\frac{\hbar^2}{2\mu}\nabla_{\mathbf{r}}^2 + U_1(r) - E \right) \phi_1(\mathbf{r}) + H_{21}^*(\mathbf{r})\phi_2(\mathbf{r}) = 0 \\ \left(-\frac{\hbar^2}{2\mu}\nabla_{\mathbf{r}}^2 + U_2(r) - E \right) \phi_2(\mathbf{r}) + H_{21}(\mathbf{r})\phi_1(\mathbf{r}) = 0 \end{cases} \quad (2.3)$$

L'énergie cinétique $E_k = \frac{\hbar^2 k^2}{2\mu}$ de cet état de diffusion est donné par $E_k = E - E_{\text{seuil}}$. L'énergie de seuil E_{seuil} correspond à la valeur propre la plus basse du potentiel multivoie à grande distance. On peut aussi voir ce seuil comme la limite asymptotique du potentiel adiabatique fondamental. Si l'on considère que les potentiels U_1 et U_2 tendent asymptotiquement vers les énergies de dissociation E_1 et E_2 , on a :

$$E_{\text{seuil}} = \frac{E_1 + E_2}{2} - \sqrt{\left(\frac{E_1 - E_2}{2}\right)^2 + (H_{21}(r \rightarrow \infty))^2}$$

Si le terme de couplage H_{12} s'annule à l'infini, l'énergie de seuil est alors simplement l'énergie de seuil E_1 de la voie ouverte non-perturbée (en d'autres termes, le seuil de collision n'est pas déplacé par le couplage entre voies).

On peut réécrire l'équation aux valeurs propres :

$$\left(-\frac{\hbar^2 \nabla_{\mathbf{r}}^2}{2\mu} + \begin{bmatrix} U_1'(\mathbf{r}) & H_{21}^*(\mathbf{r}) \\ H_{21}(\mathbf{r}) & U_2'(\mathbf{r}) \end{bmatrix} \right) \cdot \begin{bmatrix} \phi_1^{(k)}(\mathbf{r}) \\ \phi_2^{(k)}(\mathbf{r}) \end{bmatrix} = E_k \begin{bmatrix} \phi_1^{(k)}(\mathbf{r}) \\ \phi_2^{(k)}(\mathbf{r}) \end{bmatrix} \quad (2.4)$$

où l'on a ramené l'origine des énergies potentielles au niveau du seuil de collision : $U_i'(r) = U_i(r) - E_{\text{seuil}}$. On a alors l'équation :

$$(\nabla_{\mathbf{r}}^2 + k^2) \begin{bmatrix} \phi_1^{(k)}(\mathbf{r}) \\ \phi_2^{(k)}(\mathbf{r}) \end{bmatrix} = \frac{2\mu}{\hbar^2} \begin{bmatrix} U_1'(\mathbf{r}) & H_{21}^*(\mathbf{r}) \\ H_{21}(\mathbf{r}) & U_2'(\mathbf{r}) \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} \phi_1^{(k)}(\mathbf{r}) \\ \phi_2^{(k)}(\mathbf{r}) \end{bmatrix}$$

que l'on peut intégrer de la manière suivante :

$$\begin{bmatrix} \phi_1^{(k)}(\mathbf{r}) \\ \phi_2^{(k)}(\mathbf{r}) \end{bmatrix} = \underbrace{\mathcal{N} \begin{bmatrix} e^{i\mathbf{k}\mathbf{n}\cdot\mathbf{r}} \\ 0 \end{bmatrix}}_{\text{solution de l'éq. homogène : onde plane incidente}} + \underbrace{\frac{2\mu}{\hbar^2} \int d^3\mathbf{r}' G_k(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \begin{bmatrix} U_1'(\mathbf{r}) & H_{21}^*(\mathbf{r}) \\ H_{21}(\mathbf{r}) & U_2'(\mathbf{r}) \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} \phi_1^{(k)}(\mathbf{r}') \\ \phi_2^{(k)}(\mathbf{r}') \end{bmatrix}}_{\text{solution particulière : onde diffusée}} \quad (2.5)$$

où \mathcal{N} est un facteur dépendant du choix de la normalisation de $\phi_1^{(k)}$ et $\phi_2^{(k)}$, et $G^{(k)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = -\frac{e^{ik|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|}}{4\pi|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|}$ est la fonction de Green (retardée) de l'opérateur $\nabla_{\mathbf{r}}^2 + k^2$ vérifiant l'équation :

$$(\nabla_{\mathbf{r}}^2 + k^2) G^{(k)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \delta^3(\mathbf{r} - \mathbf{r}')$$

On a choisi la solution de l'équation homogène de sorte qu'elle corresponde à l'onde incidente "libre" du problème de collision dans la voie électronique du bas : une onde plane stationnaire d'impulsion $\hbar\mathbf{k}$ et se propageant dans la direction \mathbf{n} . La solution particulière correspond à l'onde diffusée, c'est-à-dire la modification induite par l'interaction.

Normalisations possibles

Plusieurs valeurs du facteur de normalisation asymptotique \mathcal{N} sont possibles selon la manière dont on normalise l'onde de diffusion libre $\bar{\phi}^{(k)}(\mathbf{r}) = \mathcal{N}e^{ik\mathbf{n}\cdot\mathbf{r}}$.

* *Normalisation en énergie :*

On peut choisir de normaliser l'onde libre en énergie, c'est-à-dire : $\langle \bar{\phi}^{(k)} | \bar{\phi}^{(k')} \rangle = \delta(E_k - E_{k'})$.

Dans ce cas, on a $\mathcal{N} = \sqrt{\frac{2\mu k}{4\pi^2 \hbar^2}}$.

* *Normalisation en volume (ou "normalisation à 1") :*

Bien que la fonction s'étende jusqu'à l'infini, on peut aussi la normaliser sur un volume V fini arbitrairement grand : $\int_V d^3\mathbf{r} |\bar{\phi}^{(k)}|^2 = 1$. Dans ce cas, on obtient : $\mathcal{N} = V^{-1/2}$.

* *Normalisation asymptotique à l'unité :*

Enfin, on peut choisir de prendre simplement $\mathcal{N} = 1$. Dans ce cas, on dit que les fonctions résultantes $\phi_1^{(k)}$ et $\phi_2^{(k)}$ sont normalisées asymptotiquement à 1, et on les note $\varphi_1^{(k)}$ et $\varphi_2^{(k)}$ pour souligner la normalisation particulière. Cette notation sera reprise lorsque nous introduirons les fonctions de paire réduites dans le problème à N corps au chapitre 3. Quelle que soit la normalisation choisie, on peut toujours écrire $\phi_i^{(k)} = \mathcal{N}\varphi_i^{(k)}$.

Comportement aux grandes distances $|\mathbf{r}| \gg b$

L'intégration sur \mathbf{r}' se trouve en général limitée à un volume d'extension finie b , reliée à la portée du potentiel d'interaction multi-voie. Pour une distance $|\mathbf{r}| \gg b \geq |\mathbf{r}'|$, on a :

$$|\mathbf{r} - \mathbf{r}'| = \sqrt{(\mathbf{r} - \mathbf{r}')^2} = |\mathbf{r}| \sqrt{1 + \frac{|\mathbf{r}'|^2}{|\mathbf{r}|^2} + 2\frac{\mathbf{r} \cdot \mathbf{r}'}{|\mathbf{r}|^2}} \approx |\mathbf{r}| + \mathbf{r}' \cdot \frac{\mathbf{r}}{|\mathbf{r}|} + O\left(\frac{1}{|\mathbf{r}|}\right)$$

de sorte que la forme asymptotique de la fonction d'onde multi-voie s'écrit :

$$\begin{bmatrix} \phi_1^{(k)}(\mathbf{r}) \\ \phi_2^{(k)}(\mathbf{r}) \end{bmatrix} \xrightarrow{|\mathbf{r}| \rightarrow \infty} \mathcal{N} \begin{bmatrix} e^{ik\mathbf{n}\cdot\mathbf{r}} \\ 0 \end{bmatrix} - \left(\frac{2\mu}{4\pi\hbar^2} \int d^3\mathbf{r}' e^{ik\mathbf{r}' \cdot \frac{\mathbf{r}}{|\mathbf{r}|}} \begin{bmatrix} U_1'(\mathbf{r}') & H_{21}^*(\mathbf{r}') \\ H_{21}(\mathbf{r}') & U_2'(\mathbf{r}') \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} \phi_1^{(k)}(\mathbf{r}') \\ \phi_2^{(k)}(\mathbf{r}') \end{bmatrix} \right) \frac{e^{ik|\mathbf{r}|}}{|\mathbf{r}|}$$

La forme asymptotique de la composante ϕ_1 dans la voie (1) est donc de la forme :

$$\phi_1(\mathbf{r}) \underset{r \rightarrow \infty}{\sim} \mathcal{N} \left(e^{ik\mathbf{n}\cdot\mathbf{r}} + f^{(k)}(\theta, \varphi) \frac{e^{ik|\mathbf{r}|}}{|\mathbf{r}|} \right) \quad (2.6)$$

où les angles θ et φ repèrent la direction du vecteur \mathbf{r} par rapport à celle du vecteur \mathbf{n} de l'onde incidente. L'onde diffusée est donc sphérique (anisotrope) à grandes distances, avec une amplitude (anisotrope) donnée par le facteur :

$$f^{(k)}(\theta, \varphi) = -\frac{1}{\mathcal{N}} \frac{2\mu}{4\pi\hbar^2} \int d^3\mathbf{r}' e^{ik\mathbf{r}' \cdot \frac{\mathbf{r}}{|\mathbf{r}|}} \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} U_1'(\mathbf{r}') & H_{21}^*(\mathbf{r}') \\ H_{21}(\mathbf{r}') & U_2'(\mathbf{r}') \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} \phi_1^{(k)}(\mathbf{r}') \\ \phi_2^{(k)}(\mathbf{r}') \end{bmatrix}$$

Ce facteur est l'*amplitude de diffusion* à l'impulsion $\hbar k$.

Limites de faible énergie de collision $1/k \gg b$

On s'intéresse à des gaz d'atomes froids, donc à de très faibles énergies de collision. Pour de très faibles impulsions de collision $k \rightarrow 0$, telles que la longueur de l'onde incidente $\frac{2\pi}{k}$ soit très grande devant la portée b du potentiel d'interaction multivoie, l'amplitude de diffusion tend vers une limite indépendante de la direction (θ, φ) :

$$f^{(k)}(\theta, \varphi) \xrightarrow[k \rightarrow 0]{} -a \equiv -\frac{1}{\mathcal{N}} \frac{2\mu}{4\pi\hbar^2} \int d^3\mathbf{r}' \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} U_1'(\mathbf{r}') & H_{21}^*(\mathbf{r}') \\ H_{21}(\mathbf{r}') & U_2'(\mathbf{r}') \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} \phi_1^{(0)}(\mathbf{r}') \\ \phi_2^{(0)}(\mathbf{r}') \end{bmatrix} \quad (2.7)$$

L'opposé de cette limite, homogène à une longueur, est notée a et appelée *longueur de diffusion*. Elle n'existe que si le potentiel d'interaction multivoie tend vers zéro plus rapidement que $1/r^3$ aux grandes distances interatomiques [Landau1967]. Si ce n'est pas le cas, la longueur de diffusion vaut formellement $-\infty$. Cela signifie que la limite à énergie strictement nulle ne peut pas être considérée, ce qui n'est pas un problème en soi puisque cette limite n'est jamais atteinte exactement en pratique.

Dans tous les cas, pour des énergies de collision suffisamment faibles, l'onde diffusée devient sphérique isotrope à grande distance. En d'autres termes, à grande distance, seule la composante de moment cinétique nul $\ell = 0$ de l'onde incidente est affectée par la collision : on a une collision effective à moment cinétique nul. Cela peut se comprendre de la manière suivante : les composantes radiales de moment cinétique non-nul de la fonction d'onde ressentent un potentiel centrifuge répulsif $\frac{\hbar^2 \ell(\ell+1)}{2\mu r}$. À très faible énergie, pratiquement aucune de ces composantes radiales n'atteint la région d'interaction. Seule la composante de moment cinétique nul, pour laquelle le potentiel centrifuge est nul, est donc affectée par l'interaction.

Pour une énergie quelconque, on peut écrire cette composante (dite aussi onde s) à grande distance de la manière suivante :

$$\begin{aligned} \left[\phi_1^{(k)}(\mathbf{r}) \right]_s \underset{r \rightarrow \infty}{\sim} & \mathcal{N} \left(\left[e^{ik\mathbf{n} \cdot \mathbf{r}} \right]_s + \left[f^{(k)} \right]_s \frac{e^{ik|\mathbf{r}|}}{|\mathbf{r}|} \right) \\ & \mathcal{N} \left(\frac{\sin kr}{kr} + \left[f^{(k)} \right]_s \frac{e^{ikr}}{r} \right) \\ & \frac{\mathcal{N}}{2ik} \left(-\frac{e^{-ikr}}{r} + S_{11}^{(k)} \cdot \frac{e^{ikr}}{r} \right) \end{aligned} \quad (2.8)$$

Il s'agit donc de la somme d'une onde sphérique isotrope entrante, et d'une onde sphérique isotrope sortante multipliée par le coefficient $S_{11}^{(k)} = 1 + 2ik [f^{(k)}]_s$, qui est un élément de la *matrice de diffusion* S . Le coefficient $S_{11}^{(k)}$ peut être mis sous la forme $S_{11}^{(k)} = e^{2i\delta_k}$, ce qui définit le déphasage :

$$\delta_k = \arctan \frac{k [f^{(k)}]_s}{1 + ik [f^{(k)}]_s} \quad (2.9)$$

On peut alors écrire :

$$\left[\phi_1^{(k)}(\mathbf{r}) \right]_s \underset{r \rightarrow \infty}{\sim} \mathcal{N} e^{i\delta_k} \frac{\sin(kr + \delta_k)}{kr} \quad (2.10)$$

À grande distance, l'onde s est donc déphasée de δ_k par rapport à une onde libre, en absence d'interaction. À très faible énergie de collision, pour une interaction tendant vers zéro plus vite que $1/r^3$, ce déphasage tend vers zéro de la manière suivante :

$$\delta_k \underset{k \rightarrow 0}{\sim} -ka$$

La fonction d'onde devient alors purement de type s , et les expressions (2.6) et (2.8) conduisent toutes les deux à :

$$\phi_1^{(0)}(\mathbf{r}) \underset{r \rightarrow \infty}{\sim} \mathcal{N} \left(1 - \frac{a}{r}\right)$$

Notons que la longueur de diffusion a peut-être positive ou négative, selon que l'onde sphérique diffusée est avancée ou retardée par rapport à l'onde sphérique libre.

2.1.2.2 Importance de la longueur de diffusion dans les gaz froids

La longueur de diffusion a définie par (2.7) lorsqu'elle existe, peut s'écrire avec les fonctions $\varphi_1^{(k)}$ et $\varphi_2^{(k)}$ normalisées asymptotiquement à l'unité :

$$a = \frac{2\mu}{4\pi\hbar^2} \int d^3\mathbf{r} (U_1(\mathbf{r}) \cdot \varphi_1^{(0)}(\mathbf{r}) + H_{21}(\mathbf{r}) \cdot \varphi_2^{(0)}(\mathbf{r})) \quad (2.11)$$

Dans le cas d'un système à une voie, décrite par un seul potentiel U , cette expression se réduit à :

$$a(U) = \frac{2\mu}{4\pi\hbar^2} \int d^3\mathbf{r} U(\mathbf{r}) \cdot \varphi^{(0)}(\mathbf{r}) \quad (2.12)$$

La longueur de diffusion est une grandeur très importante en collision froide. Bien souvent, elle suffisante pour décrire la collision d'atomes froids. En effet, aux faibles énergies de collision, la longueur d'onde de de Broglie, c'est-à-dire l'étendue spatiale de la fonction d'onde décrivant le mouvement relatif des atomes, devient très grande (typiquement de l'ordre de quelques centaines de nanomètres). Par conséquent, la structure interne du potentiel (à des échelles de l'ordre du nanomètre) n'est pas "résolue" par cette onde lors de la collision. Au cours de son cheminement dans le potentiel, l'onde accumule une certaine phase, ce qui génère la partie diffusée de l'onde - voir l'équation (2.5). À grande distance, la forme de cette onde diffusée ne dépend que d'une seule grandeur, la longueur de diffusion. Par conséquent, si l'on ne s'intéresse qu'aux effets du potentiel à grande distance interatomique, on peut décrire le potentiel uniquement par sa longueur de diffusion. De fait, dans un gaz froid en interaction, un grand nombre de propriétés peuvent être décrites uniquement en termes de la longueur de diffusion du potentiel d'interaction. Cette constatation, faite notamment par L. Landau, a amené les théoriciens à substituer dans les calculs le potentiel réel par des potentiels effectifs ayant la même longueur de diffusion, mais une structure mathématique plus simple, permettant d'être traitée analytiquement.

2.1.3 Interactions réalistes et effectives

2.1.3.1 Développement perturbatif de Born

Reprenons la solution formelle (2.5). Pour simplifier, nous considérons une énergie de collision nulle dans le cas d'une seule voie :

$$\varphi(\mathbf{r}) = 1 - \frac{2\mu}{4\pi\hbar^2} \int d^3\mathbf{r}' \frac{U(\mathbf{r}')\varphi(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} \quad (2.13)$$

On peut aussi écrire cette équation en représentation impulsion, par transformation de Fourier (en supposant que le potentiel U admet une transformée de Fourier) :

$$\tilde{\varphi}(\mathbf{p}) = (2\pi)^3 \delta^3(\mathbf{p}) - \int \frac{d^3 \mathbf{q}}{(2\pi)^3} \frac{\tilde{U}(\mathbf{p}-\mathbf{q}) \tilde{\varphi}(\mathbf{q})}{\frac{\hbar^2}{2\mu} p^2} \quad (2.14)$$

Ces solutions formelles sont implicites, dans le sens où l'on exprime la solution φ en fonction d'elle-même. Ce type de relation implicite permet de résoudre le problème de manière perturbative, c'est-à-dire si la solution est faiblement perturbée par l'interaction, et diffère peu de l'onde incidente. On peut en effet écrire de manière récursive :

$$\begin{aligned} \varphi(\mathbf{r}) &= 1 - \frac{2\mu}{4\pi\hbar^2} \int d^3 \mathbf{r}' \frac{U(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} + \left(\frac{2\mu}{4\pi\hbar^2} \right)^2 \int d^3 \mathbf{r}' d^3 \mathbf{r}'' \frac{U(\mathbf{r}')U(\mathbf{r}'')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'||\mathbf{r}' - \mathbf{r}''|} - \dots \\ \tilde{\varphi}(\mathbf{p}) &= (2\pi)^3 \delta^3(\mathbf{p}) - \frac{\tilde{U}(\mathbf{p})}{\frac{\hbar^2}{2\mu} p^2} + \int \frac{d^3 \mathbf{q}}{(2\pi)^3} \frac{\tilde{U}(\mathbf{p}-\mathbf{q}) \tilde{U}(\mathbf{q})}{\frac{\hbar^2}{2\mu} p^2 \frac{\hbar^2}{2\mu} q^2} - \int \frac{d^3 \mathbf{q}}{(2\pi)^3} \frac{d^3 \mathbf{q}'}{(2\pi)^3} \frac{\tilde{U}(\mathbf{p}-\mathbf{q}) \tilde{U}(\mathbf{q}-\mathbf{q}') \tilde{U}(\mathbf{q}')}{\frac{\hbar^2}{2\mu} p^2 \frac{\hbar^2}{2\mu} q^2 \frac{\hbar^2}{2\mu} q'^2} + \dots \end{aligned} \quad (2.15)$$

Ce développement s'appelle le développement de Born [Landau1967, Joachain1975]. Il donne explicitement la solution sous la forme d'une série infinie. Si la solution est faiblement perturbée par l'interaction, il s'agit d'une série convergente où chaque terme apporte une correction petite devant le terme précédent. En utilisant ce développement, on peut réécrire la longueur de diffusion (2.12) de la manière suivante :

$$\begin{aligned} a(U) &= \underbrace{\frac{2\mu}{4\pi\hbar^2} \int d^3 \mathbf{r} U(\mathbf{r})}_{a_0(U)} - \underbrace{\left(\frac{2\mu}{4\pi\hbar^2} \right)^2 \int d^3 \mathbf{r} d^3 \mathbf{r}' \frac{U(\mathbf{r})U(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|}}_{a_1(U)} + \underbrace{\left(\frac{2\mu}{4\pi\hbar^2} \right)^3 \int d^3 \mathbf{r} d^3 \mathbf{r}' d^3 \mathbf{r}'' \frac{U(\mathbf{r})U(\mathbf{r}')U(\mathbf{r}'')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'||\mathbf{r}' - \mathbf{r}''|}}_{a_2(U)} \\ &= \frac{2\mu}{4\pi\hbar^2} \tilde{U}(0) - \frac{2\mu}{4\pi\hbar^2} \int \frac{d^3 \mathbf{q}}{(2\pi)^3} \frac{\tilde{U}(-\mathbf{q}) \tilde{U}(\mathbf{q})}{\frac{\hbar^2}{2\mu} q^2} + \frac{2\mu}{4\pi\hbar^2} \int \frac{d^3 \mathbf{q}}{(2\pi)^3} \frac{d^3 \mathbf{q}'}{(2\pi)^3} \frac{\tilde{U}(-\mathbf{q}) \tilde{U}(\mathbf{q}-\mathbf{q}') \tilde{U}(\mathbf{q}')}{\frac{\hbar^2}{2\mu} q^2 \frac{\hbar^2}{2\mu} q'^2} + \dots \end{aligned} \quad (2.16)$$

Au premier ordre du développement (appelé *approximation de Born*), la fonction d'onde ϕ intervenant dans le calcul de la longueur de diffusion (2.12) est assimilée à l'onde incidente (non-diffusée) et la longueur de diffusion se réduit à :

Approximation de Born

$$a(U) \approx a_0(U) = \frac{2\mu}{4\pi\hbar^2} \int d^3 \mathbf{r} U(\mathbf{r}) = \frac{2\mu}{4\pi\hbar^2} \tilde{U}(0) \quad (2.17)$$

De même, en remplaçant la fonction φ multipliant le potentiel dans l'équation de Schrödinger par l'onde non-diffusée 1, on obtient l'équation de Schrödinger dans l'approximation de Born :

$$-\frac{\hbar^2 \nabla_r^2}{2\mu} \varphi(\mathbf{r}) + U(\mathbf{r}) = 0 \quad (2.18)$$

Cette équation a pour solution les 2 premiers termes de la série (2.15). Notons que le potentiel apparaît comme un terme source dans cette approximation.

2.1.3.2 Classification des interactions

Pour une espèce de particules donnée (plus précisément, étant donnée leur masse), le développement de Born permet de classer les interactions en deux grandes catégories [Cherny2000].

On a d'une part les interactions pour lesquelles l'approximation de Born (2.17) est vérifiée. On parlera alors de "potentiels doux" (A. Yu Cherny et A. A. Shanenko parlent de "potentiels à

faible couplage”, ce qui peut porter à confusion dans notre contexte où il existe également des couplages entre voies). Comme exemple de potentiels doux, on peut citer les potentiels de type coulombien $U(r) = \pm \frac{\alpha}{r}$. Il est par exemple possible traiter la diffusion d’un électron sur particule chargée (un noyau, par exemple) dans l’approximation de Born.

On a d’autre part les interactions ne vérifiant pas l’approximation de Born (2.17). On parlera alors de “potentiel forts” (“à fort couplage” dans la terminologie de Cherny-Shanenko). Beaucoup d’interactions physiques sont de ce type, en particulier lorsqu’elles possèdent une “barrière répulsive” à courte distance. Prenons l’exemple du potentiel modèle de type “puits carré”, positivement infini à distance nulle, négatif pour les distances inférieures à une certaine distance b , et nul au-delà. Ce potentiel ne satisfait pas l’approximation de Born en général. On montre qu’il ne la satisfait que lorsque l’énergie de confinement $\frac{\hbar^2}{2\mu b^2}$ est très grande devant la profondeur du puits; cela exclue toute possibilité d’états liés. La présence d’une barrière répulsive rend souvent la convergence de la série de Born (2.16) difficile.

Pour certaines interactions, la barrière est tellement abrupte que le potentiel n’est plus intégrable ou transformable de Fourier. C’est le cas dès que $U(r) \gtrsim \frac{\alpha}{r^m}$ à courte distance r , avec $m > 3$. La série de Born n’est alors plus définie (chaque terme devient formellement infini). Certains potentiels-modèles sont de cette forme, comme le potentiel de sphère dure, souvent utilisé en calcul de type Monte-Carlo, ou encore le potentiel de Lennard-Jones. Nous parlons dans ce cas de potentiels “singuliers”.

De manière fondamentale, les “vrais” potentiels d’interaction entre atomes ne sont pas singuliers : à très courte distance, la répulsion coulombienne entre les noyaux domine, et cette répulsion n’est pas singulière. En toute rigueur, d’ailleurs, aux très faibles distances internucléaires il faut tenir compte de la nature composite des noyaux, c’est-à-dire de l’interaction forte entre nucléons. Bien évidemment, notre propos se situe à des ordres de grandeur de cette situation. Dans les gaz d’atomes froids, l’énergie de collision des atomes ne fait qu’effleurer la base du mur répulsif du potentiel, à des distances de l’ordre de quelques unités atomiques. À ces distances, le mur répulsif est principalement dû à la répulsion des nuages électroniques des atomes par “interaction d’échange”. La forme du potentiel est localement décrite par une variation exponentielle.

Bien que n’étant pas singuliers sur le plan mathématique, les “vrais” potentiels sont toujours fortement répulsifs et il est illusoire d’utiliser le traitement perturbatif de Born pour ces potentiels. Ces potentiels induisent en effet de très fortes perturbations de la fonction d’onde incidente, induisant une forte corrélation à courte distance entre les deux atomes. Ces corrélations se traduisent d’une part par la présence de noeuds dans la fonctions d’onde relative des atomes : il est impossible pour les atomes de se retrouver à certaines distances l’un de l’autre. D’autre part, l’amplitude de la fonction d’onde est fortement diminuée à courte distance. Cela traduit une baisse locale de la probabilité de présence, car les atomes sont accélérés par le potentiel et passent très vite dans cette région.

Les théoriciens des collisions, qui cherchent à déterminer les potentiels les plus réalistes possibles pour décrire la collision des atomes, doivent donc nécessairement résoudre l’équation de Schrödinger complète, et non de manière perturbative.

2.1.3.3 Potentiels effectifs de contact

Le traitement complet de l’équation de Schrödinger avec un potentiel réaliste peut s’avérer assez lourd, et requiert souvent des calculs numériques. Néanmoins, on peut obtenir certains résultats généraux de manière analytique sans passer par l’utilisation d’un potentiel réaliste. Nous avons dit que dans le cas des gaz froids, les propriétés du système sont déterminées en grande partie par la longueur de diffusion. Dans certains problèmes, on peut donc espérer obtenir des résultats indépendants du type de potentiel d’interaction, à condition que la longueur de diffusion soit la même. C’est pourquoi les physiciens ont très tôt introduit des potentiels effectifs, à une époque où les calculs sur ordinateur n’étaient pas encore disponibles ou peu répandus. Un

potentiel effectif est un substitut au potentiel réel permettant de faire des calculs analytiques. Il n'a pas nécessairement de structure correspondant à une situation physique, mais il simule certaines propriétés désirées du potentiel, comme la longueur de diffusion.

Potentiel de contact

Le potentiel effectif le plus simple est le potentiel de contact, aussi appelé potentiel "delta" car il se définit à l'aide d'une fonction delta de Dirac :

$$\begin{aligned} U_\delta(\mathbf{r}) &\equiv g\delta^3(\mathbf{r}) \\ \tilde{U}_\delta(\mathbf{r}) &= g \end{aligned}$$

Mathématiquement, il s'agit en réalité d'une distribution, mais on peut voir ce potentiel comme une fonction nulle pour toutes les distances r , sauf en zéro où "elle vaut $+\infty$ ". Cela signifie que les particules n'interagissent à aucune distance, sauf lorsqu'elles sont au même point, c'est-à-dire en contact l'une avec l'autre, où elles se repoussent infiniment. La force globale de cette interaction est donnée par la constante de couplage g . Cette vision correspond à la limite d'un potentiel de portée finie "vu de loin".

Cependant, le potentiel de contact ne correspond pas à un problème de diffusion bien défini. Si l'on utilise le potentiel U_δ dans l'expression intégrale (2.13), on obtient :

$$\varphi(\mathbf{r}) = 1 - \frac{2\mu}{4\pi\hbar^2} \frac{g\varphi(0)}{r} = 1 - \frac{a(U_\delta)}{r} \quad (2.19)$$

On a la forme générique asymptotique (2.6) pour toutes les distances r , ce qui est cohérent avec l'idée que la diffusion s'effectue à distance nulle. Mais d'après cette même équation $\varphi(0) = 1 - \frac{2\mu}{4\pi\hbar^2} g\varphi(0) \left(\frac{1}{r}\right)_{r \rightarrow 0}$. La longueur de diffusion $a(U_\delta)$ de la solution (2.21) est donc donnée par :

$$a(U_\delta) = \frac{2\mu}{4\pi\hbar^2} g\varphi(0) = \frac{\frac{2\mu}{4\pi\hbar^2} g}{1 + \frac{2\mu}{4\pi\hbar^2} g \left(\frac{1}{r}\right)_{r \rightarrow 0}} \rightarrow 0 \quad \forall g \quad (2.20)$$

La partie diffusée de l'expression (2.19) est en fait nulle! Il n'y aurait donc pas de diffusion avec un potentiel delta. En inspectant l'équation (2.19), on aboutit en fait à une contradiction car on obtient à la fois $\varphi(0) = 0$ et $\varphi(0) = 1$. Le problème de diffusion avec un potentiel de contact n'est donc pas bien défini.

Néanmoins, si l'on se restreint maintenant à l'approximation de Born, la solution φ de (2.18) devient :

$$\varphi(\mathbf{r}) = 1 - \frac{2\mu}{4\pi\hbar^2} \frac{g}{r} \quad (2.21)$$

On a alors une longueur de diffusion (à l'approximation de Born) donnée par $a_0 = \frac{2\mu g}{4\pi\hbar^2}$. Il est donc possible de simuler le comportement physique correct de l'onde diffusée à grande distance (2.6) en utilisant un potentiel de contact dans l'approximation de Born avec la constante de couplage suivante :

$$g = \frac{4\pi\hbar^2 a(U)}{2\mu} \quad (2.22)$$

où $a(U)$ est la longueur de diffusion de la véritable interaction U . Ce résultat est très intéressant, notamment lorsqu'on aborde le problème à plusieurs corps, car il suggère qu'on peut se contenter de traiter le système au premier ordre de perturbation avec un potentiel de contact normalisé selon (2.22), et néanmoins obtenir des résultats corrects, tant que ceux-ci ne dépendent que de la longueur de diffusion $a(U)$ de l'interaction réelle.

Potentiel de contact renormalisé

Lorsqu'on veut résoudre le problème au-delà de l'approximation de Born, c'est-à-dire au-delà du premier ordre de perturbation, le potentiel de contact ne semble plus adapté, puisque le problème de diffusion associé est mal défini. Néanmoins, l'équation (2.20) montre que si l'on arrive faire varier la constante de couplage g de manière proportionnelle à r , on peut obtenir une valeur finie de $a(U_\delta)$ et donc ajuster la longueur de diffusion à la valeur réelle. Pour obtenir une telle dépendance de la constante g , les théoriciens ont imaginé une procédure dite de *renormalisation* (perturbative). C'est une procédure assez générale de la théorie des perturbations, qui a été introduite dans la première moitié du 20ième siècle pour traiter les interactions de contact entre particules élémentaires [Weinberg1995].

De manière générale, une interaction de contact conduit à des quantités divergentes. Par exemple, le terme $\left(\frac{1}{r}\right)_{r \rightarrow 0}$ apparaissant dans (2.20) est divergent. Si l'on traite le potentiel de manière perturbative, on trouve aussi des quantités divergentes dès le second ordre de la série de Born (2.16) :

$$\begin{aligned} a_1(U_\delta) &= - \left(\frac{2\mu g}{4\pi\hbar^2} \right)^2 \int d^3\mathbf{r} \frac{\delta^3(\mathbf{r})}{r} = a^2 \left(\frac{1}{\varepsilon} \right)_{\varepsilon \rightarrow 0} \\ &= - \left(\frac{2\mu g}{4\pi\hbar^2} \right)^2 \int \frac{d^3\mathbf{q}}{(2\pi)^3} \frac{4\pi}{q^2} = a^2 \left(\frac{2}{\pi} K \right)_{K \rightarrow +\infty} \end{aligned}$$

En théorie des perturbations, on peut considérer chaque terme de la série perturbative comme un processus de diffusion multiple, l'ordre correspondant au nombre de diffusions élémentaires (c'est-à-dire où le potentiel "nu" U intervient). On explique les divergences obtenues avec un potentiel de contact U_δ par le fait que les particules peuvent diffuser indéfiniment jusqu'à des distances arbitrairement petites, ce qui n'est pas le cas avec un potentiel réaliste. On parle de "divergence ultraviolettes" pour souligner le fait que les divergences viennent des petites distances ($\varepsilon \rightarrow 0$, $K \rightarrow \infty$).

La méthode de renormalisation consiste à régulariser momentanément les divergences, en imposant artificiellement une échelle minimale ε dans l'espace, ou de manière équivalente, une échelle maximale $K = \frac{\pi}{2}\varepsilon^{-1}$ dans l'espace des impulsions (on parle de *coupure*, ou *cut-off*). On néglige donc toutes les quantités intervenant à des échelles spatiales plus petite que ε (ou à des échelles en impulsion plus grande que K). L'idée est alors de redéfinir les paramètres de l'hamiltonien du système en fonction de la coupure ε (ou K), de manière à ce que les quantités physique obtenues n'en dépendent pas et correspondent aux valeurs physiques attendues.

Dans le cas de la diffusion de deux atomes avec un potentiel de contact, on peut redéfinir la constante de couplage de la manière suivante :

$$\begin{aligned} g &\rightarrow g'(\varepsilon) = \frac{g}{1 - a(U)/\varepsilon} \\ &\rightarrow g'(K) = \frac{g}{1 - \frac{2}{\pi}K \cdot a(U)} \end{aligned} \quad (2.23)$$

où g est toujours donnée par (2.22). Cela définit un potentiel renormalisé U'_δ ayant la bonne longueur de diffusion. On vérifie en effet qu'en remplaçant g par la constante renormalisée g' dans l'expression (2.20), on retrouve bien la longueur de diffusion physique $a(U)$, indépendante de la coupure choisie. On peut alors sans risque prendre la limite $\varepsilon \rightarrow 0$ ($K \rightarrow \infty$) pour revenir au problème initial dans un espace continu. Il faut cependant faire attention de ne prendre cette limite qu'à la fin de tous les calculs.

Potentiel de contact régularisé (pseudo-potentiel)

Un autre potentiel de contact ayant la longueur de diffusion physique $a(U)$ est le pseudo-potentiel introduit par Fermi [Fermi1934], et développé par Kerson Huang et ses collaborateurs [Lee1957a, Huang1987] :

$$U_{reg}(\mathbf{r}) = g\delta^3(\mathbf{r})\frac{\partial}{\partial r}(r\cdot)$$

Ce potentiel a été initialement dérivé pour se substituer au potentiel de sphères dures de rayon $a(U)$. La formule ci-dessus correspond au cas où l'on se restreint aux ondes de diffusion isotropes (ondes s), c'est-à-dire de moment cinétique nul. Le terme de dérivation $\frac{\partial}{\partial r}(r\cdot)$ correspond à une condition aux limites sur la fonction d'onde en $r = a$, se substituant à celle imposée par le potentiel de sphère dure. Pour des distances supérieures à a , la fonction d'onde diffusée par le pseudo-potentiel a donc exactement la même forme que celle diffusée par le potentiel de sphères dures :

$$\varphi(r) = 1 - \frac{a(U)}{r}$$

qui correspond à la forme asymptotique générale (2.6) pour n'importe quel potentiel de longueur de diffusion $a(U)$. En revanche, cette expression reste valable jusqu'à $r = 0$ pour le pseudo-potentiel, alors que la fonction d'onde diffusée par un potentiel de sphères dures est nulle pour $r < a$ (les sphères sont impénétrables). La raison est que le pseudo-potentiel est un potentiel de contact (du fait de la fonction delta), permettant aux particules de s'approcher à des distances arbitrairement petites. À petites distances r , la fonction d'onde $\varphi(r)$ diverge en $1/r$, comme dans le cas d'un potentiel de contact. En revanche, cela ne conduit plus à des divergences ultraviolettes dans les quantités physiques, car les divergences en $1/r$ sont maintenant "régularisées" par le terme de dérivation $\frac{\partial}{\partial r}(r\cdot)$.

Une caractéristique étonnante du pseudo-potentiel est qu'il satisfait exactement l'approximation de Born. On peut vérifier que :

$$\begin{aligned} a_0(U_{reg}) &= a(U) \\ a_1(U_{reg}) &= 0 \\ a_2(U_{reg}) &= 0 \\ &\vdots \end{aligned} \tag{2.24}$$

On s'attend donc à pouvoir utiliser le pseudo-potentiel aussi bien dans le cas perturbatif que non-perturbatif. Il est à noter cependant que la présence de la partie régularisante rend ce potentiel non-hermétique, car $\langle \varphi_1 | \frac{\partial}{\partial r}(r\cdot \varphi_2) \rangle \neq \langle \frac{\partial}{\partial r}(r\cdot \varphi_1) | \varphi_2 \rangle$. Enfin, contrairement au potentiel delta qui n'engendre que des états de diffusion, le pseudo-potentiel admet un état lié, d'énergie $-\frac{\hbar^2}{ma^2(U)}$, dont la fonction d'onde est :

$$\phi_{li}(r) = \frac{e^{-r/a(U)}}{r}$$

Renormalisation et régularisation

On dit parfois que le potentiel de contact renormalisé et le pseudo-potentiel sont équivalents pour le traitement des divergences ultraviolettes. Ce n'est pas tout-à-fait exact. Une preuve évidente est que le potentiel de contact renormalisé ne satisfait pas l'approximation de Born, contrairement au pseudo-potentiel, puisque :

$$a_0(U'_\delta) = g'(\varepsilon) = \frac{g}{1 - a(U)/\varepsilon} \rightarrow 0$$

De manière générale, si l'on considère une fonction d'onde de la forme $u(r) + \frac{v(r)}{r}$, où u et v sont des fonctions finies en $r = 0$, l'action des potentiels de contact renormalisé et régularisé est la suivante :

$$\begin{aligned} U'_\delta(r) \left(u(r) + \frac{v(r)}{r} \right) &= 0 - \frac{v(0)}{a} \\ U_{reg}(r) \left(u(r) + \frac{v(r)}{r} \right) &= u(0) + v'(0) \end{aligned}$$

On n'a donc d'équivalence que lorsque $u(0) = 1$ et $v(r) = -a$, ce qui est précisément le cas pour l'onde stationnaire de diffusion à énergie nulle.

2.2 Voies couplées par photoassociation ou résonance de Feshbach

Dans un échantillon d'atomes froids n'ayant pas subi d'excitation de leurs nuages électroniques, les collisions entre deux atomes se font dans un état électronique moléculaire correspondant à la limite de dissociation à deux atomes dans leur état fondamental. Les propriétés d'interaction du gaz sont donc déterminées par la courbe de potentiel U correspondant à cet état électronique moléculaire fondamental. Dans le chapitre décrivant les modèles de condensat atomique, nous prendront comme point de départ ce potentiel U traduisant l'interaction entre les atomes.

Mais il est possible d'altérer cette interaction en induisant volontairement un couplage avec d'autres voies électroniques. Cela peut se faire soit par *résonance de Feshbach magnétique*, soit par *photoassociation*. Les deux situations se décrivent formellement comme un couplage entre deux ou plusieurs états électroniques moléculaires, c'est-à-dire par des équations de la forme (2.2). Dans les deux cas, le couplage avec un état lié donne la possibilité de former des molécules diatomiques. Néanmoins la nature du couplage et les états électroniques impliqués sont différents.

2.2.1 Résonance de Feshbach magnétique

Une résonance de Feshbach est de manière générale, un phénomène observé lorsqu'un état du continuum (état libre) dans une voie se couple avec un état lié du système multivoie. Ce couplage a des conséquences sur certaines quantités physiques comme la longueur de diffusion, qui est amenée à diverger lorsque l'état du continuum est strictement à résonance avec l'état lié. Ces effets ont été décrits par H. Feshbach en 1958 [Feshbach1958], dans le contexte de la physique nucléaire.

Dans les atomes froids, de telles résonances de Feshbach peuvent être obtenues en déplaçant les niveaux électroniques moléculaires à l'aide d'un champ magnétique externe par effet Zeeman, de manière à faire coïncider l'énergie de l'état initial de collision avec l'énergie d'un état lié présentant un couplage naturel important par interaction hyperfine. On parle alors de résonance de Feshbach magnétique. Ces résonances ont été envisagées dès le milieu des années 70 [Stwalley1976], mais les premières réalisations expérimentales de ces résonances dans les atomes froids ont eu lieu en 1998 au MIT [Inouye1998], JILA [Roberts1998], à l'université du Texas [Courteille1998], ainsi qu'à Stanford [Vuletić1999]. Elle se sont révélées très utiles pour modifier les interactions dans un gaz d'atomes froids.

2.2.1.1 Couplage hyperfin et effet Zeeman

Dans un atome, le spin des électrons est naturellement couplé au spin du noyau du fait de l'interaction hyperfine. Par ailleurs, lorsqu'on applique un champ magnétique externe \mathbf{B} , ces deux

2.2. VOIES COUPLÉES PAR PHOTOASSOCIATION OU RÉSONANCE DE FESHBACH29

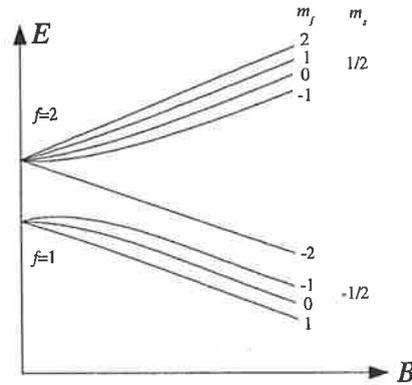


FIG. 2.3 – Représentation schématique des premiers niveaux d'énergie interne d'un atome de sodium soumis à un champ magnétique B (d'après [Mies2000]). On a indiqué pour chaque niveau les projections m_f du spin total et m_s du spin électronique sur l'axe du champ magnétique.

spins se couplent également à ce champ par effet Zeeman. Ces couplages peuvent être décrits par l'hamiltonien atomique suivant :

$$\hat{H}_{hfZ} = \frac{a_{hf}}{\hbar^2} \mathbf{s} \cdot \mathbf{i} + \mathbf{B} \cdot \frac{1}{\hbar} (2\mu_e \mathbf{s} - \mu_N \mathbf{i})$$

où :

- \mathbf{i} est le spin du noyau
- \mathbf{s} est le spin des électrons
- μ_e est le moment magnétique électronique
- μ_N est le moment magnétique du noyau

À champ magnétique nul $\mathbf{B} = 0$, seul le couplage hyperfin intervient. Les états propres électroniques de l'atome sont les états hyperfin, indicés par les nombres quantiques f associés au spin total $\mathbf{f} = \mathbf{s} + \mathbf{i}$. En champ suffisamment fort $B \gg a_{hf}/(\mu_e \hbar)$, l'effet Zeeman est dominant sur le couplage hyperfin, et aligne les spins nucléaire et électronique parallèlement au champ magnétique. Les nombres quantiques principaux s et i sont donc adaptés pour indiquer les états propres électroniques. À champ intermédiaire, les états propres électroniques sont des combinaisons linéaires d'états de différents s et i . Les énergies des différents états sont illustrées sur la figure 2.3.

Lorsqu'on considère une paire de deux atomes, à grande distance, chaque énergie propre du nuage électronique est simplement la somme de deux énergies propres électroniques d'un atome. À plus courtes distances, il faut diagonaliser l'hamiltonien suivant :

$$\begin{aligned} \hat{H}_{hfZ} &= \frac{a_{hf}}{\hbar^2} (\mathbf{s}_1 \cdot \mathbf{i}_1 + \mathbf{s}_2 \cdot \mathbf{i}_2) + \mathbf{B} \cdot \frac{1}{\hbar} (2\mu_e (\mathbf{s}_1 + \mathbf{s}_2) - \mu_N (\mathbf{i}_1 + \mathbf{i}_2)) \\ &= \underbrace{\frac{a_{hf}}{\hbar^2} \mathbf{S} \cdot \mathbf{I} + \mathbf{B} \cdot \frac{1}{\hbar} (2\mu_e \mathbf{S} - \mu_N \mathbf{I})}_{\hat{H}_{hfZ}^{(1)}} + \underbrace{\frac{a_{hf}}{\hbar^2} \mathbf{S}_d \cdot \mathbf{I}_d}_{\hat{H}_{hfZ}^{(2)}} \end{aligned}$$

où :

- $\mathbf{S} = \mathbf{s}_1 + \mathbf{s}_2$ est le spin total électronique de la paire d'atomes
- $\mathbf{I} = \mathbf{i}_1 + \mathbf{i}_2$ est le spin total nucléaire de la paire d'atomes
- $\mathbf{S}_d = \mathbf{s}_1 - \mathbf{s}_2$ est la différence de spin électronique entre les deux atomes
- $\mathbf{I}_d = \mathbf{i}_1 - \mathbf{i}_2$ est la différence de spin nucléaire entre les deux atomes

On peut choisir la représentation "adiabatique" suivante : on inclut le terme $\hat{H}_{hfZ}^{(1)}$ dans l'hamiltonien électronique \hat{H}_{el} (on pose $\hat{H}_{el} = \hat{H}_{el}^{(0)} + \hat{H}_{hfZ}^{(1)}$), et on rejette le terme $\hat{H}_{hfZ}^{(2)}$ dans le terme de couplage \hat{H}'_{el} .

Les premiers états électroniques moléculaires sont de états Σ , c'est-à-dire ayant un moment cinétique des électrons $\mathbf{L} = 0$. On montre alors que la partie $\hat{H}_{el}^{(0)}$ de l'hamiltonien électronique ne dépend que du spin \mathbf{S} des électrons et peut s'écrire sous la forme $\sum_S U_S(r)|S\rangle\langle S|$. On distingue ainsi le potentiel $U_{S=0}$ de l'état triplet, et le potentiel $U_{S=1}$ de l'état singulet. La différence entre ces deux potentiels est due à l'interaction d'échange entre les fonctions d'onde électroniques atomiques. Quand les électrons de valence sont arrangés dans l'état singulet $S = 0$ (antisymétrique), leur fonction d'onde orbitale doit être symétrique : le recouvrement est important et permet aux électrons de s'approcher. Quand les électrons sont arrangés dans un état triplet $S = 1$ (symétrique), leur fonction d'onde doit être antisymétrique : le recouvrement est moindre et les électrons ont tendance à se repousser. En conséquence, le potentiel singulet $U_{S=0}$ est plus profond que le potentiel triplet $U_{S=1}$. À grande distance, le terme d'échange disparaît et les deux potentiels se confondent.

En champ fort, on peut négliger l'interaction hyperfine $\frac{a_{hf}}{\hbar^2}\mathbf{S}\cdot\mathbf{I}$. Les spins \mathbf{S} et \mathbf{I} s'alignent alors tous les deux parallèlement au champ magnétique, et l'hamiltonien $\hat{H}_{hfZ}^{(1)}$ est diagonal dans une base d'états propres de \mathbf{S} et \mathbf{I} . Par conséquent, les états propres de l'hamiltonien électronique \hat{H}_{el} sont états propres de \mathbf{S} : les potentiels obtenus sont des potentiels singulets ou triplets décalés par le terme Zeeman. En champ intermédiaire, S et I ne sont plus de bons nombres quantiques, et les potentiels obtenus en diagonalisant \hat{H}_{el} sont en général des combinaisons linéaires du potentiel singulet et du potentiel triplet.

Néanmoins, les potentiels obtenus sont adiabatiques et peuvent se croiser à certains endroits. Ces croisements sont d'autant plus probables que les courbes peuvent être déplacées les unes par rapport aux autres lorsqu'on change l'intensité du champ magnétique. Les potentiels non-diagonaux $H_{np}(r)$ sont par ailleurs non-négligeables en raison des termes $\langle\phi_n^{el}|\hat{H}_{hfZ}^{(1)}|\phi_p^{el}\rangle$ qu'ils contiennent. Ces termes sont proportionnels à l'énergie d'échange (la moitié de la différence entre le potentiel triplet et le potentiel singulet) et sont présents entre deux états électroniques dont le spin électronique et le spin nucléaire diffèrent d'une unité. Ils peuvent donc avoir un effet sensible au niveau des croisements entre les courbes de potentiels associées à de tels états. On a alors des croisements évités : si les noyaux se déplacent suffisamment lentement près d'un de ces croisements, les spins électroniques et nucléaires peuvent se réarranger, permettant de passer d'un état électronique à l'autre (donc de changer de courbe adiabatique).

En partant d'une voie de collision, le problème peut se restreindre à un nombre limité de voies auxquelles se couple la voie initiale. En négligeant les couplages radiaux, les équations couplées approchées pour le mouvement des noyaux s'écrivent :

$$\left\{ -\frac{\hbar^2}{2\mu}\nabla_{\mathbf{r}}^2 + \begin{bmatrix} U_1 & H_{21}^* & \cdots & H_{n1}^* \\ H_{21} & U_2 & \cdots & H_{n2}^* \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ H_{n1} & H_{n2} & \cdots & U_n \end{bmatrix} - E \right\} \begin{bmatrix} \phi_1^{noy}(\mathbf{r}; \mathbf{r}_i) \\ \phi_2^{noy}(\mathbf{r}; \mathbf{r}_i) \\ \vdots \\ \phi_n^{noy}(\mathbf{r}; \mathbf{r}_i) \end{bmatrix} = 0$$

où les $U_i(r)$ sont les potentiels adiabatiques (dépendant du champ magnétique), et les potentiels diagonaux sont donnés par $H_{np} = \langle\phi_n^{el}|\frac{a_{hf}}{\hbar^2}\mathbf{S}_d\cdot\mathbf{I}_d|\phi_p^{el}\rangle$. On peut aussi formuler le problème de manière équivalente en représentation adiabatique. Dans la base adiabatique, le potentiel multi-voie est alors diagonal pour toutes les distances, mais le changement de base fait apparaître des couplages radiaux qui viennent coupler les voies adiabatiques.

Quelle que soit la représentation choisie, on peut calculer les états propres multivoies de ce système pour une valeur donnée du champ magnétique. On observe alors que certains états du

2.2. VOIES COUPLÉES PAR PHOTOASSOCIATION OU RÉSONANCE DE FESHBACH31

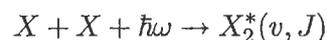
continuum ont un caractère prononcé d'état lié, bien qu'il s'agissent d'états libres. Cela peut se manifester par la présence d'une forte composante liée sur l'une des voies pour cette état.

On peut souvent comprendre ce phénomène comme une résonance entre un état lié non-perturbé dans une voie se couplant avec des états non-perturbés du continuum d'une autre voie. En effet, si le couplage n'est pas trop fort entre les voies, un état lié non-perturbé dans une voie est en général transformé en un état multivoie ayant une composante prépondérante sur cette voie et ayant sensiblement la même énergie. Mais si cet état lié non-perturbé a une énergie proche de celle d'un état non-perturbé d'une autre voie, alors le couplage va mélanger ces états pour former un nouvel état multivoies ayant une composante importante sur chacune des deux voies. En déplaçant les deux voies l'une par rapport à l'autre à l'aide du champ magnétique, on peut donc amener l'énergie de cet état lié non-perturbé près du seuil de l'autre voie. Les états du continuum au-dessus de ce seuil (diffusant à faible énergie de collision) sont alors fortement perturbés. En particulier, la longueur de diffusion du système est altérée.

Expérimentalement, on peut ainsi contrôler la valeur de la longueur de diffusion des atomes du gaz en ajustant l'intensité du champ magnétique. Dans le paragraphe 2.2.4, nous expliquons précisément comment la longueur de diffusion est modifiée dans le cas simplifié d'un système couplé à deux voies décrit par l'équation (2.4). Un tel système à deux voies reproduit en effet très bien le comportement de la plupart des résonances observées [Mies2000]. En revanche, pour calculer précisément les paramètres des résonances à partir des courbes de potentiels, il faut résoudre le système complet d'équations couplées à plusieurs voies.

2.2.2 Réaction de photoassociation

Une réaction de photoassociation s'obtient en appliquant un champ laser réglé de telle manière que le nuage électronique d'une paire d'atomes en collision peut absorber un photon de ce laser et passer à un état excité [J.Weiner1999]. On effectue ainsi un couplage entre l'état électronique moléculaire fondamental et un état électronique moléculaire excité. La paire d'atome se retrouve alors dans un état lié (v, J) de la voie excitée, et forme une molécule. On peut résumer cette réaction par la formule :



où $\hbar\omega$ désigne le photon absorbé lors de la photoassociation. Cette réaction a été proposée pour les atomes froids en 1987 [Thorsheim1987] afin de réaliser une spectroscopie des états liés (v, J) photoassociés dans la voie excitée. Cette spectroscopie est en principe très précise du fait des faibles énergies de collision dans les gaz froids (nous donnons plus bas l'expression du profil de raie).

Les premières expériences de photoassociation dans les gaz d'atomes froids ont eu lieu en 1993 avec des échantillons de sodium [Lett1993], et de rubidium [Miller1993]. La photoassociation a depuis été généralisée à un grand nombre d'espèces (lithium, potassium, césium, hydrogène, hélium métastable), ainsi que pour des paires d'atomes d'espèces différentes (photoassociation hétéronucléaire). Elle a non seulement permis la spectroscopie précise des états de la voie excités, mais également conduit à la création de molécules froides stables [Fioretti1998].

Par ailleurs, la possibilité d'altérer la longueur de diffusion par photoassociation, à la manière d'une résonance de Feshbach, a été proposée par certains auteurs [Fedichev1996, Bohn1997, Kokouline2001]. On parle parfois de *résonance de Feshbach optique*. Récemment, la variation de la longueur de diffusion par résonance de Feshbach optique a été démontrée avec le sodium au NIST dans l'équipe de Paul D. Lett [Fatemi2000], et plus clairement avec le rubidium par les expérimentateurs de l'université d'Innsbruck [Theis2004, Thalhammer2004]. Cette technique suscite un intérêt croissant pour l'application à certaines expériences, comme celle menée par Philippe Grangier à l'Institut d'Optique à Orsay dont nous parlerons au paragraphe 6.1.1.

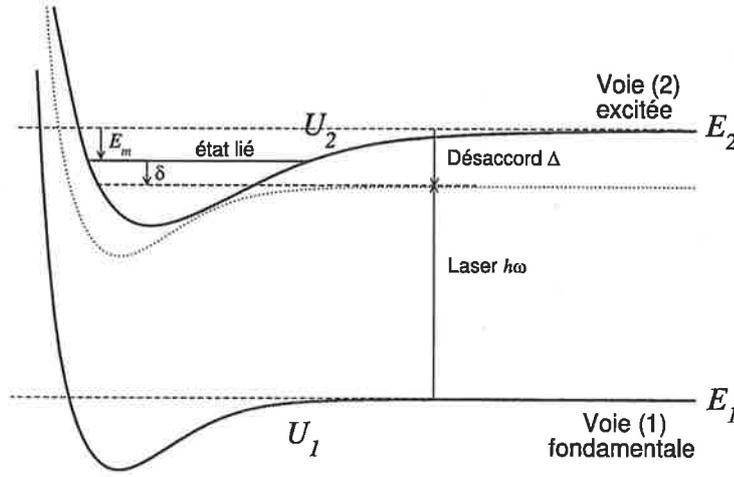


FIG. 2.4 – Représentation des courbes de potentiel U_1 et U_2 pour la voie fondamentale (1) et la voie excitée (2) dans une réaction de photoassociation. On couple les deux voies à l'aide d'un laser de photoassociation de fréquence ω . Dans la représentation de l'onde tournante, le potentiel fondamental est "habillé" par le laser, c'est-à-dire déplacé de $\hbar\omega$. Le potentiel habillé est représenté en pointillé sur cette figure.

2.2.2.1 Description du couplage laser

On considère un état électronique fondamental et un état électronique excité d'une paire d'atomes (voir Figure 2.4). En présence d'un champ laser, on couple ces voies par l'interaction entre les électrons de la paire d'atomes et la lumière du laser. Le laser sera décrit de manière classique par une onde électromagnétique (plane monochromatique progressive polarisée) correspondant aux champs électrique et magnétique :

$$\begin{aligned}\mathbf{E}(\mathbf{x}, t) &= \mathbf{n}E_0 \cos(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{x}) \\ \mathbf{B}(\mathbf{x}, t) &= \frac{\mathbf{k} \wedge \mathbf{n}}{\omega} E_0 \cos(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{x})\end{aligned}$$

où \mathbf{n} est la direction de polarisation du laser, et l'amplitude E_0 est reliée à l'intensité I du laser par la formule :

$$I = \frac{1}{2} c \epsilon_0 E_0^2$$

La longueur d'onde du laser $\frac{2\pi}{k}$ (plusieurs centaines de nanomètres) est en général très grande devant la taille d'une paire d'atomes (de un à quelques dizaines de nanomètres), tant que l'on considère des états excités suffisamment liés. Dans la jauge de Göppert-Mayer, l'interaction entre la paire d'atomes et le champ laser est alors donnée par l'hamiltonien dans l'approximation dipolaire :

$$\hat{H}_{PA} \approx -\mathbf{E}(\mathbf{R}, t) \cdot \hat{\mathbf{d}}$$

où $\hat{\mathbf{d}}$ est le moment dipolaire électronique de la paire d'atomes, et \mathbf{R} est le centre de masse de la paire d'atomes. Le couplage entre deux voies électroniques $|\phi_n^{el}\rangle$ et $|\phi_p^{el}\rangle$ est donc donné par :

$$\begin{aligned}H_{np}(r, t) &= \langle \phi_n^{el} | -\mathbf{E}(\mathbf{R}, t) \cdot \hat{\mathbf{d}} | \phi_p^{el} \rangle \\ &= -\sqrt{\frac{2I}{c\epsilon_0}} \langle \phi_n^{el} | \mathbf{n} \cdot \hat{\mathbf{d}} | \phi_p^{el} \rangle \cos(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{R})\end{aligned}\quad (2.25)$$

2.2. VOIES COUPLÉES PAR PHOTOASSOCIATION OU RÉSONANCE DE FESHBACH33

On voit que l'intensité du couplage est proportionnelle à la racine carrée de l'intensité du laser, ainsi qu'à l'élément de matrice $\langle \phi_n^{el} | \mathbf{n} \cdot \hat{\mathbf{d}} | \phi_p^{el} \rangle$ du moment dipolaire projeté sur la direction du champ électrique. On peut exprimer le produit scalaire $\mathbf{n} \cdot \hat{\mathbf{d}}$ contenu dans ce dernier à l'aide des composantes n_q et d_q des tenseurs irréductibles d'ordre 1 associés aux vecteurs \mathbf{n} et $\hat{\mathbf{d}}$:

$$\mathbf{n} \cdot \hat{\mathbf{d}} = n_Z \hat{d}_Z + n_Y \hat{d}_Y + n_X \hat{d}_X = \sum_{k=-1,0,1} (-1)^p n_{-k} \hat{d}_k$$

où $d_0 = d_Z$ et $d_{\pm 1} = \frac{-id_Y \pm d_X}{\sqrt{2}}$. Du fait des symétries électroniques, il est plus naturel de calculer les éléments matrices des composantes du tenseur \hat{d} dans le repère moléculaire, aussi est-on amené à effectuer une rotation du repère du laboratoire vers le repère moléculaire. On a donc :

$$\langle \phi_n^{el} | \mathbf{n} \cdot \hat{\mathbf{d}} | \phi_p^{el} \rangle = \sum_{k,q=-1,0,1} (-1)^k n_{-k} D_{kq}^{1*}(\theta, \varphi, 0) \underbrace{\langle \phi_n^{el} | \hat{d}_q | \phi_p^{el} \rangle}_{d_q^{np}(r)} \quad (2.26)$$

où D_{kq}^{1*} est la matrice de rotation de Wigner pour les tenseurs d'ordre 1, et $d_q^{np}(r)$ est le moment dipolaire électronique, qui dépend de la distance interatomique par l'intermédiaire des fonctions d'onde électroniques. La présence de la matrice de rotation D_{kq}^{1*} dans le couplage induit des règles de sélection sur les états rotationnels : seuls certaines paires d'états rotationnels de la molécule sont couplées par le champ laser. Ces règles de sélection dépendent *a priori* de la base de fonctions d'onde électroniques choisie pour traiter le problème.

Le centre de masse \mathbf{R} n'induit qu'une phase constante dans l'expression du couplage (2.25), on peut donc définir l'origine des temps pour l'éliminer de l'expression. On a alors :

$$H_{np}(r, t) = - \underbrace{\sqrt{\frac{2I}{c\epsilon_0}} \langle \phi_n^{el} | \mathbf{n} \cdot \hat{\mathbf{d}} | \phi_p^{el} \rangle}_{\Omega(r, t)} \cos \omega t$$

Le nuage de la paire d'atomes voit ainsi le champ électrique osciller rapidement dans le temps à la fréquence ω (typiquement de l'ordre de 10^5 GHz). Il faut noter que l'enveloppe $\Omega(r, t)$ peut aussi dépendre du temps si l'on varie l'intensité du laser. C'est le cas par exemple au moment du branchement ou de la coupure d'un laser continu. La plupart du temps, on pourra considérer la variation temporelle de l'intensité comme lente, avec des temps caractéristiques supérieurs à la dizaine de nanoseconde. Néanmoins, lorsqu'on utilise des "pulses" laser, les temps caractéristiques de variation de l'intensité peuvent descendre jusqu'à la picoseconde, voire la femtoseconde. De même la fréquence ω peut également être variée dans le temps ; on parle alors de lasers façonnés en fréquence. De manière générale, on a donc affaire à un problème dépendant du temps, et il faut considérer les équations de Schrödinger couplées dépendant du temps.

2.2.2.2 Approximation de l'onde tournante

Nous allons ici considérer que toutes les variations temporelles sont lentes par rapport à l'oscillation du champ laser à la fréquence ω . Cette oscillation a pour effet de coupler certains états électroniques de manière résonante. Pour simplifier, nous n'allons considérer que deux voies électroniques, par exemple la voie fondamentale $^3\Sigma_u^+$ et la voie excitée 0_g^- . Le système est alors décrit par la version dépendant du temps des équations (2.3) :

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \phi_1(\mathbf{r}, t) &= \left(-\frac{\hbar^2}{2\mu} \nabla_{\mathbf{r}}^2 + U_1(r) \right) \phi_1(\mathbf{r}, t) + \Omega^*(r, t) \frac{e^{-i\omega t} + e^{i\omega t}}{2} \phi_2(\mathbf{r}, t) \\ i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \phi_2(\mathbf{r}, t) &= \left(-\frac{\hbar^2}{2\mu} \nabla_{\mathbf{r}}^2 + U_2(r) \right) \phi_2(\mathbf{r}, t) + \Omega(r, t) \frac{e^{-i\omega t} + e^{i\omega t}}{2} \phi_1(\mathbf{r}, t) \end{aligned} \quad (2.27)$$

L'oscillation du champ laser peut induire des transitions stimulées par absorption ou émission d'un photon d'énergie $\hbar\omega$ par la paire d'atomes. Le processus résonant qui nous intéresse est

l'absorption d'un photon pour passer à un état excité (ou l'émission d'un photon pour revenir à l'état fondamental). On définit alors la fonction d'onde "tournante" suivante :

$$\tilde{\phi}_1(\mathbf{r}, t) = \phi_1(\mathbf{r}, t)e^{-i\omega t}$$

Les équations deviennent :

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \tilde{\phi}_1(\mathbf{r}, t) &= \left(-\frac{\hbar^2}{2\mu} \nabla_{\mathbf{r}}^2 + U_1(r) + \hbar\omega \right) \tilde{\phi}_1(\mathbf{r}, t) + \Omega^*(r, t) \frac{e^{-2i\omega t} + 1}{2} \phi_2(\mathbf{r}, t) \\ i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \phi_2(\mathbf{r}, t) &= \left(-\frac{\hbar^2}{2\mu} \nabla_{\mathbf{r}}^2 + U_2(r) \right) \phi_2(\mathbf{r}, t) + \Omega(r, t) \frac{1 + e^{i2\omega t}}{2} \tilde{\phi}_1(\mathbf{r}, t) \end{aligned} \quad (2.28)$$

L'énergie potentielle U_1 se retrouve alors augmentée de l'énergie $\hbar\omega$ d'un photon du laser, comme s'il était potentiellement absorbé par la paire d'atome dans la voie (1). On parle parfois de potentiel habillé² (par le photon) $U_1' = U_1 + \hbar\omega$. Les oscillations restantes aux fréquences 2ω et -2ω correspondent à des absorption ou émission de photons *a priori* hors résonance. L'*approximation de l'onde tournante* consiste à négliger ces transitions en omettant les termes exponentiels oscillants dans l'équation (2.28).

Si l'on fait abstraction des autres variations lentes en temps dans le problème, on peut alors se ramener à un problème stationnaire. Dans l'approximation de l'onde tournante, les équations sont formellement similaires aux équations couplées (2.4) avec les remplacements :

$$\begin{aligned} E_1 &\rightarrow E_1 + \hbar\omega \\ H_{21}(r, t) &\rightarrow \frac{1}{2} \Omega(r, t) = -\frac{1}{2} \sqrt{\frac{2I}{c\epsilon_0}} \langle \phi_2^{el} | \mathbf{n} \cdot \hat{\mathbf{d}} | \phi_1^{el} \rangle \end{aligned} \quad (2.29)$$

Le laser de photoassociation permet en quelque sorte de "déplacer" le potentiel fondamental par rapport au potentiel excité, à la manière du champ magnétique par effet Zeeman. L'intensité du laser permet en outre de créer un couplage entre les deux voies, à la manière des couplages naturellement présents entre certaines voies, comme l'interaction hyperfine.

2.2.2.3 Émission spontanée

Nous avons dit que la photoassociation pouvait se modéliser par un système à deux voies couplées. Ce n'est pas tout-à-fait exact, car l'état électronique excité associé à la voie (2) a une durée de vie limitée τ , de l'ordre de la dizaine de nanoseconde. Il peut en effet se désexciter par émission spontanée vers d'autres états, notamment l'état fondamental de départ. Pour prendre en compte correctement cette émission spontanée, il faudrait considérer un hamiltonien plus large traitant le champ électromagnétique du laser comme un champ quantique et tenant compte de tous les états possibles vers lesquels les atomes photoassociés se désexcitent. Mais on peut plus simplement voir cette émission spontanée comme un effet de perte au niveau de la voie excitée. On montre (Weisskopf & Wigner) qu'on peut traiter ces pertes dans le cadre du système à deux voies en rajoutant au potentiel excité un terme imaginaire :

$$U_2 \rightarrow U_2 - i\frac{\gamma}{2}$$

La quantité γ est correspond à la "largeur" de l'état électronique excité, qui est associée à la durée de vie de l'état par une relation de type incertitude temps/énergie :

$$\gamma = \frac{\hbar}{\tau}$$

L'hamiltonien obtenu est alors non-hermétique : il correspond à l'hamiltonien effectif d'un système ouvert, où la population totale des états (la norme de la fonction d'onde) n'est plus conservée. On se limitera à ce traitement dans nos calculs.

²La notion de potentiel ou d'état habillé se définit de manière plus générale dans un traitement quantique de la lumière.

2.2.3 Analogie entre photoassociation et résonance de Feshbach magnétique

Dans le cadre des approximations introduites dans les paragraphes 2.2.1 et 2.2.2, on a une équivalence formelle entre les résonances de Feshbach magnétiques et la réaction de photoassociation : les deux phénomènes peuvent être décrits au moyen d'équations couplées, où les potentiels peuvent être déplacés par un champ magnétique dans le premier cas, ou par la fréquence d'un laser dans le second cas. Il existe cependant trois différences majeures.

La première différence est l'émission spontanée de l'état excité dans le cas de la photoassociation. Elle limite l'analogie entre la photoassociation et les résonances magnétique à des temps *a priori* inférieurs à la nanoseconde. Lorsqu'on cherche à utiliser la photoassociation pour induire une résonance de Feshbach optique modifiant la longueur de diffusion, on est en général gêné par cette émission spontanée. On cherche donc à l'éviter en ajustant le laser de manière à ne pas trop peupler la voie excitée responsable des pertes. L'émission spontanée se révèle en revanche utile pour la création de molécules froides stables dans la voie fondamentale.

La seconde différence porte sur le comportement du couplage à grande distance. Dans le cas d'une résonance magnétique, le couplage hyperfin est proportionnel à l'interaction d'échange qui décroît exponentiellement à grande distance. En revanche, le couplage du laser s'applique en principe jusqu'à de très grandes distances. Le laser agit en effet même sur des atomes complètement séparés. Ce point a son importance pour les résonances de Feshbach optiques, ainsi que pour la formulation du problème à N corps. Néanmoins, à partir d'une certaine distance, il faut revenir sur les approximations que nous avons faites pour déterminer ce couplage : on doit tenir compte de la variation spatiale du laser, ainsi que des effets de retard dus à la vitesse finie de la lumière.

Le troisième différence porte sur le contrôle du couplage. Dans le cas des résonances magnétiques, le couplage est donné par l'interaction hyperfine, sur lequel on n'a pas de prise directe. On est donc tributaire des résonances naturelles qui existent pour certaines valeurs du champ magnétique selon l'espèce d'atomes considérée. Le seul paramètre de contrôle est donc l'ajustement du champ magnétique au voisinage d'une résonance. Cela peut poser des problèmes pratiques pour certaines espèces comme le Rubidium 87, où l'on doit utiliser des champs magnétiques assez forts pour pouvoir approcher une résonance de Feshbach. En revanche, la photoassociation offre beaucoup plus de souplesse sur le contrôle du couplage car celui-ci n'est pas préexistant mais créé par le laser. On peut déplacer les courbes de potentiels avec la fréquence du laser, mais on contrôle également la force du couplage avec l'intensité du laser. Malgré les règles de sélection, les résonances avec des états liés sont très nombreuses et on a souvent plusieurs centaines de choix possibles. D'un point de vue expérimental, le contrôle temporel de la fréquence et de l'intensité d'un laser est souvent plus aisé, ou demande moins d'effort que celui d'un champ magnétique. L'utilisation de laser pulsés ou façonnés en fréquence ouvrent des possibilités de contrôle que ne permettent pas les résonances de Feshbach magnétiques.

2.2.4 Résonance avec un état lié

La théorie d'un système à deux atomes au voisinage d'une résonance a été décrite dans plusieurs ouvrages et articles [Friedrich1991, Bohn1999, Timmermans1999]. Les travaux de Mies et al. [Mies2000] ont montré qu'on pouvait modéliser la plupart des résonances magnétiques par un système à deux voies couplées, et nous avons vu que c'est aussi le cas pour la photoassociation, à condition de modéliser l'émission spontanée par un terme de perte imaginaire dans l'hamiltonien. Nous allons donc donner ici les éléments essentiels de cette théorie dans le cadre d'un système à deux voies, décrit par l'équation de Schrödinger (2.4). Avec les notations condensées de Dirac,

cette équation s'écrit :

$$\begin{aligned} \left(-\frac{\hbar^2 \nabla^2}{2\mu} + U_1' - E_k\right) |\phi_1^{(k)}\rangle + H_{12}^* |\phi_2^{(k)}\rangle &= 0 \\ \left(-\frac{\hbar^2 \nabla^2}{2\mu} + U_2' - i\frac{\gamma}{2} - E_k\right) |\phi_2^{(k)}\rangle + H_{21} |\phi_1^{(k)}\rangle &= 0 \end{aligned} \quad (2.30)$$

Pour introduire la longueur de diffusion, nous avons considéré que le potentiel multivoie consistait une perturbation par rapport au mouvement libre des atomes *dans l'espace*. Nous avons donc intégré l'équation de Schrödinger avec une fonction de Green de l'hamiltonien libre des atomes. Nous allons maintenant considérer le couplage entre voies H_{12} comme une perturbation du mouvement découplé des atomes *dans les potentiels* U_1 et U_2 associés à chaque voie. Introduisons la fonction de Green retardée $\hat{G}_1^{(k)+} = \left(-\frac{\hbar^2 \nabla^2}{2\mu} + U_1' - E_k - i\eta\right)^{-1}$ associée au mouvement non-perturbé dans la voie (1), et la fonction de Green $\hat{G}_2^{(k)} = \left(-\frac{\hbar^2 \nabla^2}{2\mu} + U_2' - i\frac{\gamma}{2} - E_k\right)^{-1}$ associée au mouvement non-perturbé dans la voie (2). En choisissant les mêmes conditions aux limites que précédemment, on peut alors intégrer l'équation (2.30) de la manière suivante :

$$|\phi_1^{(k)}\rangle = |\bar{\phi}_1^{(k)}\rangle - \hat{G}_1^{(k)+} H_{21}^* |\phi_2^{(k)}\rangle \quad (2.31)$$

$$|\phi_2^{(k)}\rangle = 0 - \hat{G}_2^{(k)} H_{21} |\phi_1^{(k)}\rangle \quad (2.32)$$

où $\bar{\phi}_1^{(k)}(\mathbf{r})$ l'état non-perturbé de la voie (1), c'est-à-dire la solution du problème de diffusion dans la voie (1) en l'absence de couplage :

$$\left(-\frac{\hbar^2 \nabla_{\mathbf{r}}^2}{2\mu} + U_1'(\mathbf{r}) - E_k\right) \bar{\phi}_1^{(k)}(\mathbf{r}) = 0$$

vérifiant la condition aux limites sur sa composante s :

$$\left[\bar{\phi}_1^{(k)}(\mathbf{r})\right]_s \xrightarrow{r \rightarrow \infty} \mathcal{N} e^{i\bar{\delta}_k} \frac{\sin(kr + \bar{\delta}_k)}{kr} = \frac{\mathcal{N}}{2ik} \left(-\frac{e^{-ikr}}{r} + e^{i2\bar{\delta}_k} \cdot \frac{e^{ikr}}{r}\right)$$

où $\bar{\delta}_k$ est le déphasage de l'onde s à grande distance par diffusion dans le potentiel U_1' , et \mathcal{N} est un facteur qui dépend du choix de normalisation de $\bar{\phi}_1^{(k)}$. Il faut noter que si l'on se fixe un choix de \mathcal{N} , la norme totale $\sqrt{\langle \phi_1^{(k)} | \phi_1^{(k)} \rangle + \langle \phi_2^{(k)} | \phi_2^{(k)} \rangle}$ de l'état multivoie n'est pas constante lorsqu'on fait varier les paramètres de la résonances (écart entre les limites asymptotiques de potentiels, ou couplages) dans l'équation (2.30). En revanche, la composante $\phi_1^{(k)}$ a toujours la même normalisation asymptotique.

2.2.4.1 Approximation d'une résonance isolée

La fonction de Green de l'hamiltonien non-perturbé associé à la voie (2) peut s'écrire dans la base des fonctions propres de cet hamiltonien (nous ne considérons ici que le spectre discret des états liés, pour simplifier) :

$$\hat{G}_2^{(k)} = \sum_{\nu} \frac{|\bar{\phi}_2^{(\nu)}\rangle \langle \bar{\phi}_2^{(\nu)}|}{\bar{E}_{\nu} - E_k} \quad (2.33)$$

où les \bar{E}_{ν} sont les énergies des différents états liés non-perturbés $|\bar{\phi}_2^{(\nu)}\rangle$ de la voie (2), mesurées à partir du seuil du système couplé. Notons bien que ces états non-perturbés sont ici *normalisés en volume* :

$$\langle \bar{\phi}_2^{(\nu)} | \bar{\phi}_2^{(\nu)} \rangle = 1$$

2.2. VOIES COUPLÉES PAR PHOTOASSOCIATION OU RÉSONANCE DE FESHBACH 37

Dans les résonances de Feshbach ou la photoassociation, la différence des énergies asymptotiques des potentiels est ajustée pour que l'état de diffusion non-perturbé de la voie (1) ait une énergie proche d'un certain état lié non-perturbé $|\bar{\phi}_2^{(m)}\rangle$ de la voie (2) avec lequel il entre en résonance. Cet état a donc une énergie \bar{E}_m très proche de l'énergie de collision E_k , et correspond par conséquent au dénominateur le plus petit dans l'expression (2.33). Si l'on suppose que les énergies des autres états ont une énergie de liaison suffisamment différentes de E_k , l'état résonant $|\bar{\phi}_2^{(m)}\rangle$ apporte une contribution prépondérante à l'expression (2.33) et on peut faire l'approximation :

$$\hat{G}_2 \approx \frac{|\bar{\phi}_2^{(m)}\rangle\langle\bar{\phi}_2^{(m)}|}{\bar{E}_m - E_k}$$

Cette approximation est valable tant que le couplage H_{21} reste petit devant l'écart entre les niveaux E_ν . Quand le couplage est suffisamment fort (par exemple pour de fortes intensités de photoassociation), on ne peut plus faire l'approximation de la résonance isolée. Ceci sera illustré dans la suite.

Dans l'approximation de la résonance isolée, les expressions des états des voies (1) et (2) deviennent :

$$|\phi_1^{(k)}\rangle = |\bar{\phi}_1^{(k)}\rangle + \frac{\hat{G}_1^{(k)+} H_{21}^* |\bar{\phi}_2^{(m)}\rangle\langle\bar{\phi}_2^{(m)}| H_{21} |\phi_1^{(k)}\rangle}{\bar{E}_m - E_k} \quad (2.34)$$

$$|\phi_2^{(k)}\rangle = -\frac{|\bar{\phi}_2^{(m)}\rangle\langle\bar{\phi}_2^{(m)}| H_{21} |\phi_1^{(k)}\rangle}{\bar{E}_m - E_k} \quad (2.35)$$

En multipliant la première expression à gauche par $\langle\bar{\phi}_2^{(m)}| H_{21}$, il vient :

$$\langle\bar{\phi}_2^{(m)}| H_{21} |\phi_1^{(k)}\rangle = \frac{\langle\bar{\phi}_2^{(m)}| H_{21} |\bar{\phi}_1^{(k)}\rangle}{1 - \frac{\langle\bar{\phi}_2^{(m)}| H_{21} \hat{G}_1^{(k)+} H_{21}^* |\bar{\phi}_2^{(m)}\rangle}{\bar{E}_m - E_k}}$$

Ce qui conduit à :

$$|\phi_1^{(k)}\rangle = |\bar{\phi}_1^{(k)}\rangle + \frac{\hat{G}_1^{(k)+} H_{21}^* |\bar{\phi}_2^{(m)}\rangle\langle\bar{\phi}_2^{(m)}| H_{21} |\bar{\phi}_1^{(k)}\rangle}{\bar{E}_m - \langle\bar{\phi}_2^{(m)}| H_{21} \hat{G}_1^{(k)+} H_{21}^* |\bar{\phi}_2^{(m)}\rangle - E_k}$$

$$|\phi_2^{(k)}\rangle = -\frac{\langle\bar{\phi}_2^{(m)}| H_{21} |\bar{\phi}_1^{(k)}\rangle}{\bar{E}_m - \langle\bar{\phi}_2^{(m)}| H_{21} \hat{G}_1^{(k)+} H_{21}^* |\bar{\phi}_2^{(m)}\rangle - E_k} \cdot |\bar{\phi}_2^{(m)}\rangle$$

On a donc exprimé les composantes de l'état perturbé en fonction des états non-perturbés, dans l'approximation d'une résonance isolée.

Largeur de résonance

On voit en particulier que la composante dans la voie (2) est proportionnelle à l'état lié résonant non-perturbé. Le facteur de proportionnalité devient très grand quand l'énergie de collision E_k est proche de l'énergie $E_m = \text{Re} \left(\bar{E}_m - \langle\bar{\phi}_2^{(m)}| H_{21} \hat{G}_1^{(k)+} H_{21}^* |\bar{\phi}_2^{(m)}\rangle \right)$, qui correspond à l'énergie de l'état résonant, décalée de :

$$\Delta E_m = \text{Re} \langle\bar{\phi}_2^{(m)}| H_{21} \hat{G}_1^{(k)+} H_{21}^* |\bar{\phi}_2^{(m)}\rangle \quad (2.36)$$

Ce décalage de la résonance correspond à un *déplacement lumineux* dans le cas de la photoassociation [Fedichev1996, Bohn1999, Gerton2001]. Posons par ailleurs :

$$\Gamma/2 = \text{Im} \langle\bar{\phi}_2^{(m)}| H_{21} \hat{G}_1^{(k)+} H_{21}^* |\bar{\phi}_2^{(m)}\rangle \quad (2.37)$$

Nous verrons que cette partie imaginaire correspond à la largeur intrinsèque de la résonance. On peut la calculer explicitement en fonction des états non-perturbés. La fonction de Green $\hat{G}_1^{(k)+}$ s'écrit dans la base des états non-perturbés de la voie (1) :

$$\hat{G}_1^{(k)+} = \int dE_p \frac{|\bar{\phi}_1^{(E_p)}\rangle \langle \bar{\phi}_1^{(E_p)}|}{E_p - E_k - i\eta}$$

où les $\bar{\phi}_1^{(E_p)}$ sont normalisés en énergie. On a donc :

$$\begin{aligned} \Gamma &= 2 \int dE_p \left| \langle \bar{\phi}_2^{(m)} | H_{21} | \bar{\phi}_1^{(E_p)} \rangle \right|^2 \underbrace{\text{Im} \frac{1}{E_p - E_k - i\eta}}_{\pi \delta(E_p - E_k)} \\ &= 2\pi \left| \langle \bar{\phi}_2^{(m)} | H_{21} | \bar{\phi}_1^{(E_k)} \rangle \right|^2 \end{aligned}$$

Par ailleurs, la fonction d'onde $\bar{\phi}_1^{(E_k)}$ normalisée en énergie est reliée à $\bar{\phi}_1^{(k)}$ par $\bar{\phi}_1^{(E_k)} = \sqrt{\frac{2\mu}{4\pi^2 \hbar^2} k} \frac{1}{\mathcal{N} e^{i\delta_k}} \cdot \bar{\phi}_1^{(k)}$, ce qui donne :

$$\Gamma = \frac{2\mu}{2\pi \hbar^2} k \left| \frac{1}{\mathcal{N}} \langle \bar{\phi}_2^{(m)} | H_{21} | \bar{\phi}_1^{(k)} \rangle \right|^2$$

On note que la largeur Γ est proportionnelle à k à faible énergie de collision, et tend donc vers zéro dans cette limite.

Longueur de diffusion

Explicitons maintenant la composante dans la voie (1). On peut écrire la fonction de Green $\hat{G}_1^{(k)+}$ à grande distance de la manière suivante :

$$\left[G_1^{(k)+}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \right]_{s, r \rightarrow \infty} \sim \frac{2\mu}{4\pi \hbar^2} \frac{e^{i(kr + \bar{\delta}_k)}}{r} \frac{e^{i\bar{\delta}_k}}{\mathcal{N}} \left[\bar{\phi}_1^{(k)}(\mathbf{r}') \right]^*$$

La forme asymptotique de la fonction $\phi_1^{(k)}$ est donc :

$$\begin{aligned} \left[\phi_1^{(k)}(\mathbf{r}) \right]_s &\sim_{r \rightarrow \infty} \frac{\mathcal{N}}{2ik} \left(-\frac{e^{-ikr}}{r} + e^{i2\bar{\delta}_k} \cdot \frac{e^{ikr}}{r} \right) + \mathcal{N} e^{i2\bar{\delta}_k} \frac{\frac{2\mu}{4\pi \hbar^2} k \left| \frac{1}{\mathcal{N}} \langle \bar{\phi}_2^{(m)} | H_{21} | \bar{\phi}_1^{(k)} \rangle \right|^2}{E_m - E_k - i\left(\frac{\Gamma}{2} + \frac{\gamma}{2}\right)} \cdot \frac{e^{ikr}}{kr} \\ &\sim \mathcal{N} e^{i\bar{\delta}_k} \left\{ -\frac{e^{-ikr}}{r} + e^{i2\bar{\delta}_k} \left(1 - \frac{i\Gamma}{E_k - E_m + i\left(\frac{\Gamma}{2} + \frac{\gamma}{2}\right)} \right) \cdot \frac{e^{ikr}}{r} \right\} \end{aligned}$$

On obtient ainsi l'élément de matrice de diffusion $S_{11}^{(k)}$:

$$S_{11}^{(k)} = e^{i2\bar{\delta}_k} \left(1 - \frac{i\Gamma}{E_k - E_m + i\left(\frac{\Gamma}{2} + \frac{\gamma}{2}\right)} \right) \quad (2.38)$$

et comme $S_{11}^{(k)} = e^{i2\delta_k}$, le déphasage total δ_k est donné par :

$$\delta_k = \bar{\delta}_k - \arctan \frac{\Gamma/2}{E_k - E_m + i\frac{\gamma}{2}}$$

2.2. VOIES COUPLÉES PAR PHOTOASSOCIATION OU RÉSONANCE DE FESHBACH39

À faible énergie de collision, on a :

$$\begin{aligned}\delta_k &\underset{k \rightarrow 0}{\sim} -ka \\ \bar{\delta}_k &\underset{k \rightarrow 0}{\sim} -k\bar{a} \\ \Gamma &\underset{k \rightarrow 0}{\sim} k \frac{2\mu}{2\pi\hbar^2} \left| \langle \bar{\phi}_2^{(m)} | H_{21} | \bar{\phi}_1^{(0)} \rangle \right|^2\end{aligned}$$

où \bar{a} est la longueur de diffusion du potentiel U_1 , et $\bar{\varphi}_1^{(0)} = \bar{\phi}_1^{(0)}/\mathcal{N}$ est la fonction d'onde de diffusion à énergie nulle dans le potentiel U_1 normalisée asymptotiquement à l'unité.

On obtient la longueur de diffusion totale :

$$a = \bar{a} \left(1 - \frac{\frac{2\mu}{4\pi\hbar^2\bar{a}} \left| \langle \bar{\phi}_2^{(m)} | H_{21} | \bar{\phi}_1^{(0)} \rangle \right|^2}{\delta' - i\frac{\gamma}{2}} \right) \quad (2.39)$$

où $\delta' = E_m = \bar{E}_m + \Delta E_m$ est l'écart entre l'énergie de l'état lié perturbé et le seuil de collision du système. La longueur de diffusion présente donc un comportement dispersif au voisinage de la résonance $\delta' \approx 0$.

Structure des niveaux d'énergies

Il est également instructif d'étudier la structure des niveaux d'énergie au voisinage d'une résonance avec un état lié. Pour apprécier la structure de ces niveaux, nous allons d'une part faire abstraction de l'éventuelle émission spontanée (afin de garder ces niveaux d'énergie réels), et considérer la paire d'atome non pas dans un espace infini comme nous l'avons fait jusqu'à présent, mais dans se déplaçant dans un certain volume, par exemple une boîte sphérique, ou un piège harmonique. Ceci est plus réaliste que la situation idéale d'un espace infini, puisqu'en réalité les atomes d'un gaz froid sont toujours confinés dans une certaine région de l'espace, créée en général par un piège magnétique ou dipolaire. Cela a pour effet principal de transformer le continuum d'états libres de la paire d'atomes en un spectre discret très serré. On parle parfois d'états quasi-libres et de quasi-continuum [Javanainen1998].

Commençons par le cas où le couplage entre les voies est nul : $H_{21} = 0$. Les états propres à considérer sont les états non-perturbés quasi-libres de la voie (1) :

$$\begin{bmatrix} \phi_1^{(k)} \\ \phi_2^{(k)} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \bar{\phi}_1^{(k)} \\ 0 \end{bmatrix} \quad \text{d'énergie } E_k = \frac{\hbar^2 k^2}{2\mu} \text{ par rapport au seuil } E_{seuil} = E_1$$

et l'état lié non-perturbé de la voie (2) :

$$\begin{bmatrix} \phi_1^{(m)} \\ \phi_2^{(m)} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 \\ \bar{\phi}_2^{(m)} \end{bmatrix} \quad \text{d'énergie } \bar{E}_m \text{ par rapport au seuil } E_{seuil} = E_1$$

Notons que les énergies E_k (ou les impulsions k de collision) ne peuvent prendre que certaines valeurs discrètes, puisque que le continuum est maintenant discrétisé. Par exemple dans un potentiel harmonique isotrope de fréquence ω_0 , les niveaux sont donnés par $E_k^{(n)} = \frac{1}{2}\hbar\omega_0(n + \frac{1}{2})$ pour les ondes sphériques isotropes.

On peut en général changer la valeur de l'énergie \bar{E}_m en déplaçant les courbes de potentiel, à l'aide d'un champ magnétique ou d'un laser. L'état lié de la voie (2) peut donc "croiser" les différents états liés et quasi-libres de la voie (1) au fur et à mesure qu'on déplace son énergie \bar{E}_m . Ceci est représenté sur la figure 2.5.

Lorsque le couplage H_{21} est non-nul, la dégénérescence des niveaux d'énergie est alors levée à chaque croisement, de manière similaire aux croisements évités dans les courbes de potentiels adiabatiques. En dehors des croisements évités, les états propres du système couplé restent similaires aux états non-perturbés. En revanche, à chacun des croisements évités correspond une résonance : au voisinage d'un croisement, les états propres du système couplé ont des composantes importantes sur les deux voies. Ceci est par exemple visible dans les expressions (2.34-2.35) pour les composantes des états couplés (quasi-)libres : au voisinage de la résonance apparaît une composante importante dans la voie (2).

On a représenté sur la figure 2.5 les deux composantes ϕ_1 et ϕ_2 pour différents états propres du système couplé. En dehors des croisements, on retrouve les formes des états non-perturbés de la résonance. Il faut toutefois noter que ces états non-perturbés sont différents à gauche et à droite des résonances avec l'état lié. Par exemple, pour une même énergie (en se déplaçant horizontalement dans le graphe), l'une des composantes de la fonction d'onde perd ou gagne un noeud en passant à travers une résonance. On peut aussi suivre continûment un état propre du système couplé, et on constate que son énergie fait un saut au passage de la résonance avec l'état lié. Tous les niveaux sont donc décalés en traversant une résonance : par exemple, en diminuant progressivement l'écart Δ entre les seuils des deux voies, on transforme le second niveau du quasi-continuum en premier niveau du quasi-continuum, et le premier niveau est transformé en dernier état lié, etc.

2.2.4.2 Cas d'une résonance de Feshbach

Variation de la longueur de diffusion

Dans le cas d'une résonance de Feshbach magnétique, on a $\gamma = 0$ et le déplacement des courbes est dû au champ magnétique B par effet Zeeman : $\hbar\delta = \frac{\partial E}{\partial B} \cdot (B - B_0)$. On peut écrire la formule (2.39) de la manière suivante :

$$a = \bar{a} \left(1 - \frac{\Delta B}{B - B_0} \right) \quad (2.40)$$

où $\Delta B = \frac{\partial B}{\partial E} \cdot \frac{2\mu}{4\pi\hbar^2\bar{a}} |\langle \bar{\phi}_2^{(m)} | H_{21} | \bar{\phi}_1^{(0)} \rangle|^2$ est la largeur de la résonance magnétique. La courbe de la longueur de diffusion en fonction du champ magnétique a donc un profil hyperbolique, divergent à l'endroit de la résonance. Ce type de profil a été obtenu expérimentalement dans les expériences de résonance de Feshbach [Inouye1998, Cornish2000], et vérifié numériquement en résolvant les équations couplées à plusieurs voies [Mies2000].

Formation de molécules

Le schéma 2.5 montre que le premier état du quasi-continuum (à droite de la résonance) est progressivement transformé en dernier état lié du système couplé lorsqu'on diminue l'écart entre les seuils des deux voies couplées. Juste après la traversée de la résonance, l'état est très peu lié et vérifie certaines propriétés générales d'un état lié juste au dessous d'un seuil. L'état a une composante dominante dans la voie (1) et l'extension spatiale de cette composante est de l'ordre de la longueur de diffusion du système. Son énergie est par ailleurs approchée par :

$$E = -\frac{\hbar^2}{ma^2}$$

Lorsqu'on diminue davantage l'écart entre les voies, l'énergie se rapproche de l'état lié non-perturbé de la voie (2). Sa composante sur la voie (2) augmente et son énergie approche celle de l'état lié \bar{E}_m . En diminuant encore l'écart entre les voies, on arrive à la résonance avec l'état

lié non-perturbé de la voie (1). L'état se transforme alors en ce dernier état lié du potentiel fondamental.

Les expérimentateurs travaillant sur les résonances de Feshbach ont tiré parti de cette structure des niveaux d'énergie pour former des molécules diatomiques. Le gaz étant très froid, un grand nombre des paires d'atomes sont dans le premier état du quasi-continuum. Ils ont donc appliqué des "rampes descendantes" de champ magnétique à leur échantillon de manière à réduire progressivement l'écart entre deux voies couplées. Au passage d'une résonance, les atomes de chaque paire se sont alors liés pour former des molécules diatomiques. Cette technique appliquée à des condensats atomiques ou des gaz de Fermi atomiques dégénérés a permis de créer des condensats moléculaires [Herbig2003, Dürr2004, Xu2003, Regal2003, Cubizolles2003].

2.2.4.3 Cas d'une réaction de photoassociation

Variation de la longueur de diffusion

Dans le cas d'une résonance de Feshbach optique, la relation (2.39) peut s'écrire :

$$a = \bar{a} \left(1 - \frac{2\mu}{4\pi\hbar^2\bar{a}} |w|^2 \right) \quad (2.41)$$

où $w = \langle \bar{\phi}_2^{(m)} | H_{21} | \bar{\phi}_1^{(0)} \rangle$, et δ' est le désaccord entre l'énergie de l'état lié résonant déplacée par le laser et l'énergie de l'état de diffusion habillé par le laser. Les parties réelle et imaginaire de a sont donc :

$$\begin{aligned} \text{Re}(a) &= \bar{a} - \frac{2\mu}{4\pi\hbar^2} |w|^2 \delta' \\ \text{Im}(a) &= -\frac{2\mu}{4\pi\hbar^2} |w|^2 \gamma/2 \end{aligned}$$

La partie réelle traduit l'intensité des collisions "élastiques" à énergie nulle. La partie imaginaire traduit les pertes des atomes qui lors d'une collision sont excités dans l'état photoassociés et se désexcitent par émission spontanée vers d'autres états.

Taux de photoassociation

Dans le cas d'une résonance de Feshbach magnétique, les ondes libres entrantes et sortantes sont uniquement sur la voie (1), car les composantes sur les autres voies sont liées. La matrice de diffusion $S^{(k)}$ se réduit donc à son élément $S_{11}^{(k)}$ donnant le poids relatif entre l'onde sortante sur la voie (1) et l'onde entrante sur la voie (1) - voir l'équation (2.8). On vérifie que l'expression (2.38) de cet élément de matrice $S_{11}^{(k)}$ prise pour $\gamma = 0$ a un module de 1. Ceci traduit la conservation entre l'onde entrante sur la voie (1) et l'onde sortante sur la même voie, puisque rien ne peut ressortir ou entrer par d'autres voies.

La situation est différente dans le cas de la photoassociation puisque les paires d'atomes photoassociés peuvent se désexciter par émission spontanée vers d'autres voies (que nous n'avons pas explicitement prises en compte) et ne peuvent plus revenir sur la voie (1). Il y a donc des pertes d'atomes sur la voie (1). On voit en effet que pour $\gamma \neq 0$, l'expression (2.38) conduit à un module de $S_{11}^{(k)}$ inférieur à 1, traduisant ces pertes :

$$|S_{11}^{(k)}|^2 = \frac{(E_k - E_m)^2 + \left(\frac{\Gamma}{2} - \frac{\gamma}{2}\right)^2}{(E_k - E_m)^2 + \left(\frac{\Gamma}{2} + \frac{\gamma}{2}\right)^2} < 1 \quad (2.42)$$

Appelons (3) l'ensemble des voies de fuite vers lesquelles se désexcitent les paires d'atomes photoassociés. La conservation du flux sur toutes les voies s'écrit :

$$|S_{11}^{(k)}|^2 + |S_{13}^{(k)}|^2 = 1 \quad (2.43)$$

L'élément de matrice $S_{13}^{(k)}$ traduit la perte d'atomes de la voie (1) par photoassociation. Expérimentalement, lorsqu'on balaye la fréquence du laser, on observe donc une perte d'atomes importante au voisinage d'une résonance, correspondant à une raie de photoassociation. Nous allons expliciter la forme de cette raie.

Le taux de photoassociation K est le nombre d'atomes photoassociés vers la voie (2) par unité de temps et de densité. Il est donnée par :

$$K = \int_0^\infty \sigma(v) v f(v) dv$$

où $f(v)$ est la distribution statistique des vitesses relatives $v = \frac{\hbar k}{\mu}$ dans le système, et $\sigma(v)$ est la section efficace totale du processus de photoassociation pour une vitesse de collision v . Cette section est reliée aux éléments de matrice de diffusion $S_{13}^{(k)}$ pour les différents moments cinétiques de collision ℓ :

$$\sigma(k) = \frac{\pi}{k^2} \sum_{\ell=0}^{\infty} (2\ell + 1) |S_{13}^{(k)}(\ell)|^2$$

En supposant que la distribution des vitesses du gaz suit une distribution de Maxwell-Boltzman à la température T , on peut montrer que la distribution des vitesses relatives suit également une distribution de Maxwell-Boltzman, qu'on peut réexprimer en distribution en énergie de collision E_k . On obtient alors :

$$K = \frac{h^2}{(2\pi\mu k_B T)^{3/2}} \sum_{\ell=0}^{\infty} (2\ell + 1) \int_0^\infty |S_{13}^{(k)}(\ell)|^2 e^{-\frac{E_k}{k_B T}} dE_k$$

Pour les faibles températures (donc faibles énergies de collision), on peut souvent se restreindre à la contribution des collisions à moment cinétique nul. En utilisant les formules (2.42) et (2.43), on obtient l'élément de matrice de diffusion $S_{13}^{(k)}$ pour les ondes s :

$$S_{13}^{(k)}(\ell = 0) = \frac{\gamma\Gamma}{(E_k - E_m)^2 + \left(\frac{\Gamma}{2} + \frac{\gamma}{2}\right)^2}$$

ce qui conduit au taux de photoassociation :

$$K = \frac{h^2}{(2\pi\mu k_B T)^{3/2}} \int_0^\infty \frac{\gamma\Gamma(E_k)}{(E_k - E_m)^2 + \left(\frac{\Gamma(E_k)}{2} + \frac{\gamma}{2}\right)^2} e^{-\frac{E_k}{k_B T}} dE_k \quad (2.44)$$

Cette formule donne le profil de la raie de photoassociation obtenue lorsqu'on varie la fréquence du laser (c'est-à-dire lorsqu'on varie E_m ou δ) dans la région de la résonance. La température étant faible dans les gaz froids, la raie est relativement peu élargie par la distribution thermique des vitesses des atomes ; la photoassociation dans les gaz froids permet donc une spectroscopie très précise (de l'ordre du MHz) des états liés de la voie (2). À très faible température, la distribution des énergies de collision devient piquée en zéro. La limite de la formule précédente pour $T \rightarrow 0$ s'écrit :

$$K \approx \frac{\frac{1}{\hbar}|w|^2\gamma}{\delta^2 + \left(\frac{\gamma}{2}\right)^2} = -\frac{4\pi\hbar}{\mu} \text{Im}(a) \quad (2.45)$$

Ce taux-limite est pertinent lorsqu'on photoassocie dans un condensat à intensité modérée, comme nous le verrons. La forme de la raie est alors une lorentzienne, d'intensité donnée par w et de largeur donnée par la largeur γ associée à la voie (2). Il s'agit d'un profil de raie idéal. D'autres phénomènes sont susceptibles d'élargir cette raie, comme le fait que la densité d'atomes et l'intensité du laser ne sont pas uniformes sur l'échantillon considéré.

Effet de la statistique quantique

Nous avons jusqu'ici considéré implicitement que les atomes étaient discernables. Pour des atomes indiscernables, il faut tenir compte de la statistique quantique. En premier lieu, la fonction de distribution de Maxwell-Boltzmann doit être remplacée par une distribution de Fermi-Dirac ou de Bose-Einstein, selon qu'il s'agit de fermions ou de bosons. Si la température n'est pas trop faible, comme c'est le cas dans un gaz froid non-dégénéré, la distribution de Maxwell-Boltzmann reste une bonne approximation. En revanche, la formule de taux de photoassociation (2.44) n'est pas adaptée dans le cas des fermions, car elle ne tient compte que des ondes s , qui sont interdites pour des fermions. Il faut alors reprendre les calculs pour les ondes p . Dans le cas des bosons, la formule est valide, mais il faut tenir compte de la symétrisation des fonctions d'onde.

Dans un gaz thermique, la plupart des collisions se font dans des états différents. Les fonctions d'onde des paires d'atomes doivent donc être symétrisées. Cette symétrisation a pour conséquence de multiplier les sections efficaces par un facteur 2. Le taux de photoassociation est ainsi doublé pour un gaz thermique de bosons. En revanche, dans un gaz condensé à très faible température, la plupart des atomes sont dans le même état, et il n'y a pas besoin de symétriser les fonctions d'onde. La formule (2.44) est donc en principe directement applicable. Du fait des très faibles énergies de collision dans un condensat, on peut utiliser la formule limite (2.45). Nous reviendrons sur ces points lorsque nous parlerons du traitement de la photoassociation dans un condensat au chapitre 4.

Principe de Franck-Condon

L'intensité de la raie aux faibles énergies de collision dépend du facteur w . En utilisant les formules (2.26) et (2.29), on peut expliciter ce facteur :

$$\begin{aligned}
 w &= \langle \bar{\phi}_2^{(m)} | H_{21} | \bar{\phi}_1^{(0)} \rangle \\
 &= \langle \bar{\phi}_2^{(m)} | -\frac{1}{2} \sqrt{\frac{2I}{c\epsilon_0}} \sum_{k,q=-1,0,1} (-1)^k n_{-k} D_{kq}^{1*}(\theta, \varphi, 0) d_q^{21}(r) | \bar{\phi}_1^{(0)} \rangle \\
 &= -\frac{1}{2} \sqrt{\frac{2I}{c\epsilon_0}} \times \sum_q \left(\mathcal{A}_q \times \int_0^\infty dr F_2^{(m)}(r) \cdot d_q^{21}(r) \cdot F_1^{(0)}(r) \right) \quad (2.46)
 \end{aligned}$$

où

- $F_2^{(m)}(r)$ est la partie radiale de la fonction d'onde $\bar{\phi}_2^{(m)}(\mathbf{r}) = \sqrt{\frac{2J_m+1}{4\pi}} D_{M_{J_m}, m_{J_m}}^{J_m*}(\theta, \varphi, 0) \frac{F_2^{(m)}(r)}{r}$
- $F_1^{(0)}(r)$ est la partie radiale de la fonction d'onde $\bar{\phi}_1^{(0)}(\mathbf{r}) = \sqrt{\frac{2J+1}{4\pi}} D_{M_J, m_J}^{J*}(\theta, \varphi, 0) \frac{F_1^{(0)}(r)}{r}$
- $d_q^{21}(r) = \langle \phi_2^{\epsilon l} | \hat{d}_q | \phi_1^{\epsilon l} \rangle$ est le moment dipolaire électronique pour la transition entre la voie (1) et (2) et pour la polarisation q
- $\mathcal{A}_q = (-1)^{M_J+m_J} \sqrt{2J+1} \sqrt{2J_m+1} \sum_{k=-1,0,1} (-1)^k \begin{pmatrix} J & 1 & J_m \\ -m_J & q & m_{J_m} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} J & 1 & J_m \\ -M_J & k & M_{J_m} \end{pmatrix}$

est un facteur dit angulaire provenant du recouvrement des fonctions angulaires de $\bar{\phi}_2^{(m)}$ et $\bar{\phi}_1^{(0)}$. Ce terme est responsable d'un certain nombre des règles de sélection.

Il faut noter que les fonctions $\bar{\varphi}_2^{(m)}$ et $\bar{\varphi}_1^{(0)}$ ne sont pas normalisées de la même façon ; il en est de même pour $F_2^{(m)}(r)$ et $F_1^{(0)}(r)$.

Le moment dipolaire électronique est souvent indépendant de la distance r au-delà de quelques dizaines d'unités atomiques³. On peut alors le sortir de l'intégrale sur la distance radiale :

$$w = -\frac{1}{2} \sqrt{\frac{2I}{c\varepsilon_0}} \times \sum_q A_q d_q^{21} \times \underbrace{\int_0^\infty dr F_2^{(m)}(r) \cdot F_1^{(0)}(r)}_{\text{facteur de Franck-Condon}} \quad (2.47)$$

Le recouvrement restant entre les fonctions d'onde radiale est appelé facteur de Franck-Condon. Souvent, la fonction d'onde radiale de l'état lié oscille beaucoup le long de l'axe inter-nucléaire et se termine par un lobe important à une certaine distance correspondant à peu près au point de rebroussement classique dans le potentiel U_2 . Elle agit donc dans le recouvrement comme une fonction localisée autour de ce point, appelé point de Condon. Le facteur de Franck-Condon est alors sensiblement proportionnel à la valeur de la fonction radiale de diffusion au point de Condon. Cela illustre le principe dit de Franck-Condon, selon lequel la transition entre le nuage électronique dans l'état fondamental et le nuage excité se fait essentiellement quand les noyaux sont à la distance de Condon l'un de l'autre.

Ce principe a des conséquences intéressantes. L'efficacité de la photoassociation peut ainsi être très différentes selon la valeur de la fonction d'onde radiale de l'état de diffusion non-perturbé au point de Condon de l'état lié non-perturbé. En particulier lorsque le point de Condon "tombe" au niveau d'un noeud de la fonction d'onde radiale de l'état de diffusion, le facteur de Franck-Condon, et par suite le taux de photoassociation, s'annule. Ceci a pu être observé expérimentalement dans le spectre de photoassociation : comme chaque état lié a un point de Condon qui décroît avec son énergie de liaison, en s'intéressant à plusieurs résonances, on sonde différentes distances interatomiques. On constate alors que la taille des différentes raies de photoassociation suit une enveloppe reproduisant la structure nodale de la fonction d'onde de collision. Ce résultat est spectaculaire puisqu'il permet de "voir" la fonction d'onde de collision de deux atomes froids. En retour, la connaissance de la position des noeuds de la fonction d'onde permet d'améliorer la connaissance du potentiel de la voie fondamentale, en particulier d'évaluer sa longueur de diffusion.

Formation de molécules froides

Le recouvrement de Franck-Condon est généralement plus favorable à grande distance. Les paires d'atomes photoassociés sont donc le plus souvent dans un état faiblement lié du potentiel U_2 . C'est pourquoi la spectroscopie par photoassociation est particulièrement pertinente pour les derniers états liés du potentiel excité, et complète les études spectroscopiques traditionnelles accédant davantage aux états liés du fond de puits de potentiel. Les atomes oscillent très rapidement l'un par rapport à l'autre à courte distance, et décélèrent leur mouvement près du point de rebroussement classique. Leur probabilité de présence est donc importante autour de ce point et il est plus probable qu'ils se désexcitent par émission spontanée aux alentours de ce point.

Le recouvrement est alors plus favorable à une désexcitation vers des états de diffusion de la voie fondamentale d'énergie relativement importante. Ces paires d'atomes "chauds" ont généralement une énergie cinétique suffisante pour s'échapper du piège de confinement. Néanmoins, dans certains cas, les atomes peuvent se désexciter vers des états moléculaires stables de la voie (1), conduisant à la formation de molécules froides. C'est le cas par exemple dans le césium, lorsqu'on photoassocie vers l'état électronique 0_g^- . La courbe de potentiel de cet état possède en effet un double-puits dû à un croisement évité. La présence de ce double-puits augmente la

³Voir par exemple la thèse de Mihaela Vatasescu pour des calculs approchés de la dépendance en r du moment dipolaire électronique.

densité de probabilité de la paire photoassociée à courte distance. Elle peut alors se désexciter vers des états moléculaires stables. La production de telles molécules froides a été démontrée expérimentalement pour la première fois au laboratoire Aimé Cotton, dans un gaz froid de césium [Fioretti1998].

Structure des niveaux d'énergies .

Comme nous l'avons déjà souligné, il existe deux paramètres de contrôle pour la photoassociation que sont l'intensité et la fréquence du laser, contrairement aux résonances de Feshbach magnétique où seul l'intensité du champ magnétique est contrôlable. Les niveaux d'énergies forment donc un ensemble de surfaces en fonction de ces deux paramètres. Nous avons représenté schématiquement la structure de ces surfaces sur la figure 2.6, en faisant abstraction de l'émission spontanée, et pour une paire d'atomes dans une boîte.

L'énergie E_m de l'état lié résonant forme un plan incliné, d'une part par l'écart relatif Δ des courbes de potentiel lorsqu'on varie la fréquence du laser, d'autre part par le déplacement lumineux de cet état lorsqu'on varie l'intensité. Ce plan croise un "mille-feuille" correspondant aux énergies du quasi-continuum. Le croisement entre chaque plan est d'autant plus évité que l'intensité est forte. En faisant une coupe dans cette structure pour une intensité donnée, on retrouve des courbes d'énergie du type de la figure 2.5.

Il est intéressant de voir qu'on peut en principe se déplacer à loisir dans cette structure et passer d'un plan à l'autre en variant l'intensité et la fréquence du laser. Une idée attrayante, inspirée au cours de discussion avec Antoine Browaeys et Philippe Grangier, serait de pouvoir refroidir (ou réchauffer) un échantillon dans un piège suffisamment confinant (pour bien séparer les niveaux du quasi-continuum) en effectuant un certain nombre de cycles de variation de l'intensité et de la fréquence du laser. Un tel cycle est représenté sur la figure 2.6 : il consiste à ajuster la fréquence du laser au-delà de la résonance, allumer le laser, balayer la fréquence pour traverser adiabatiquement la résonance et revenir à la fréquence initiale, puis couper le laser. Néanmoins, en passant adiabatiquement à travers la résonance, on emprunte le plan correspondant à l'état lié, ayant une composante potentiellement importante sur la voie excitée. On risque alors de perdre un nombre important d'atomes lors de ce passage. Les calculs que nous avons menés sur le sodium et le rubidium pour des intensités modérées tendent à confirmer cette conclusion. La technique est peut-être viable à plus forte intensité, mais nous ne l'avons pas vérifié explicitement.

2.2.5 Résonances à plusieurs états

2.2.5.1 Forte intensité - influence d'une forte résonance

L'expression (2.46) montre que le taux de photoassociation (2.45) est proportionnel à la l'intensité I du laser. De même, la théorie de la résonance isolée prévoit un déplacement lumineux (2.36) linéaire en intensité. Ce comportement linéaire a effectivement été observé expérimentalement [Fatemi2000, McKenzie2002, Prodan2003]. Néanmoins, pour de fortes intensités, on observe une saturation du taux de photoassociation [Prodan2003].

Cette saturation indique que l'approximation (2.45) n'est plus valide et qu'il faut revenir à l'expression (2.44). Si on augmente davantage l'intensité laser, on s'attend en outre à ce que l'approximation de la résonance isolée ne soit plus valide. On montrera dans le chapitre 6 des exemples numériques de photoassociation à forte intensité où l'approximation de la résonance isolée n'est plus valide. On peut alors avoir une contribution d'autres états de la voie (2), notamment ceux du continuum. Ceci n'est possible que si le couplage s'étend à grande distance. Une conséquence est que la longueur de diffusion hors-résonance n'est plus la longueur de diffusion de la voie fondamentale en l'absence de laser mais devient dépendante de la fréquence du laser.

2.2.5.2 Utilisation de laser fortement dépendants du temps

Avec un laser suffisamment monochromatique (laser continu de fréquence relativement bien définie), on “vise” une certaine énergie, donc un certain état photoassocié. Lorsqu’on varie rapidement la fréquence du laser, on peut se coupler à plusieurs états liés à la fois. De manière générale, toute dépendance en temps (par exemple avec un laser pulsé) peut donner une largeur en énergie, de par la relation d’incertitude entre temps et énergie. Dans ce cas, une “fenêtre” d’états liés est concernée par la photoassociation, et il faut en général résoudre les équations couplées avec les potentiels moléculaires pour obtenir la dynamique précise.

Les avantages de lasers pulsés ou façonnés en fréquence sont multiples. D’une part, ils permettent d’exploiter un degré de contrôle supplémentaire qu’est la dépendance en temps du champ laser. D’autre part, le processus peut se dérouler à des échelles de temps suffisamment petites (bien inférieures à la nanoseconde) pour ne pas être affectés par l’émission spontanée de la voie excitée.

Ces situations fortement dépendantes du temps ont été abordées numériquement au laboratoire Aimé Cotton [Vala2001, LK2004b, LK2004a] et font actuellement l’objet de recherches expérimentales [Wright2004]. Par ailleurs, il est dans certains cas possible d’appliquer la théorie du contrôle optimal qui donne la dépendance en temps optimal du champ laser pour obtenir un état final souhaité. Cette méthode a été appliquée par Christiane Koch pour calculer le champ laser optimal amenant le dernier état lié de la voie fondamentale vers le premier état lié de cette même voie, via le couplage avec la voie excitée [Koch2004]. Le dernier état lié s’étend sur des distances assez grandes, et il est raisonnable de penser qu’un calcul similaire permettrait de trouver le champ optimal amenant un état de collision dans un piège vers le premier état fondamental du potentiel. On pourrait ainsi créer des molécules stables extrêmement rapidement à partir de paires d’atomes en collision.

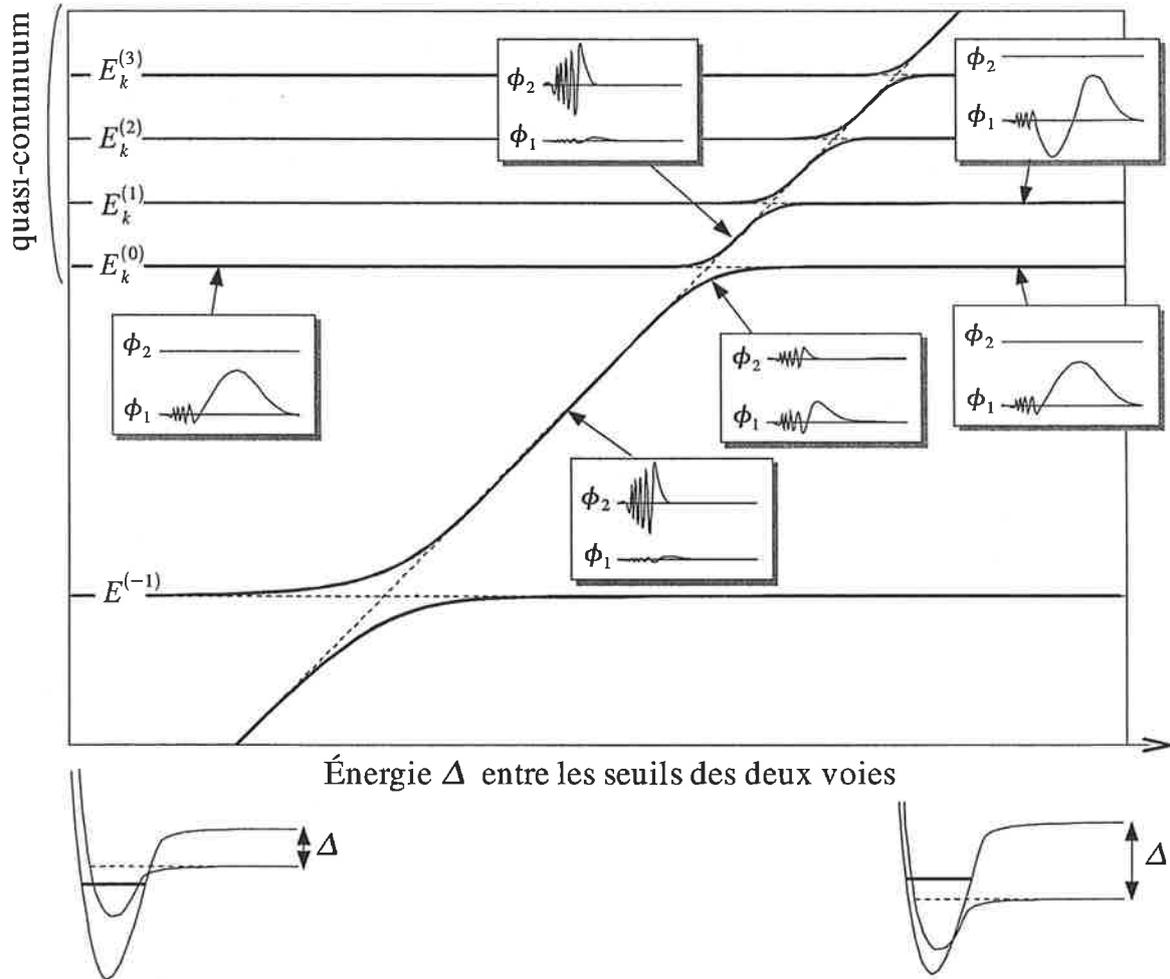


FIG. 2.5 – Représentation schématique des niveaux d'énergie pour un système à deux voies en fonction de l'écart en énergie Δ entre les seuils des deux voies. En trait tireté sont représentés les niveaux d'énergie des états non-perturbés. On a représenté les énergies des 4 premiers états du quasicontinuum et celle du dernier état lié de la voie (1), ainsi que l'énergie d'un état lié de la voie (2) (l'énergie de cet état est également représenté dans les courbes de potentiel sous le graphe). En trait plein, on a représenté les niveaux d'énergie des états propres du système couplé. Il faut noter que cette figure ne respecte pas les ordres de grandeur habituels : les niveaux du quasicontinuum sont en général très serrés par rapport aux écart en énergie entre états liés.

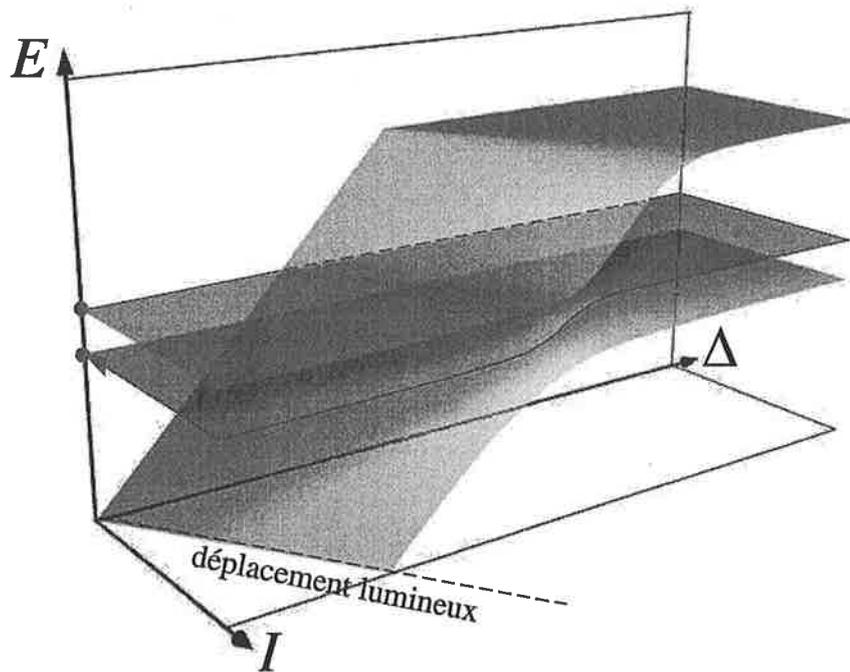
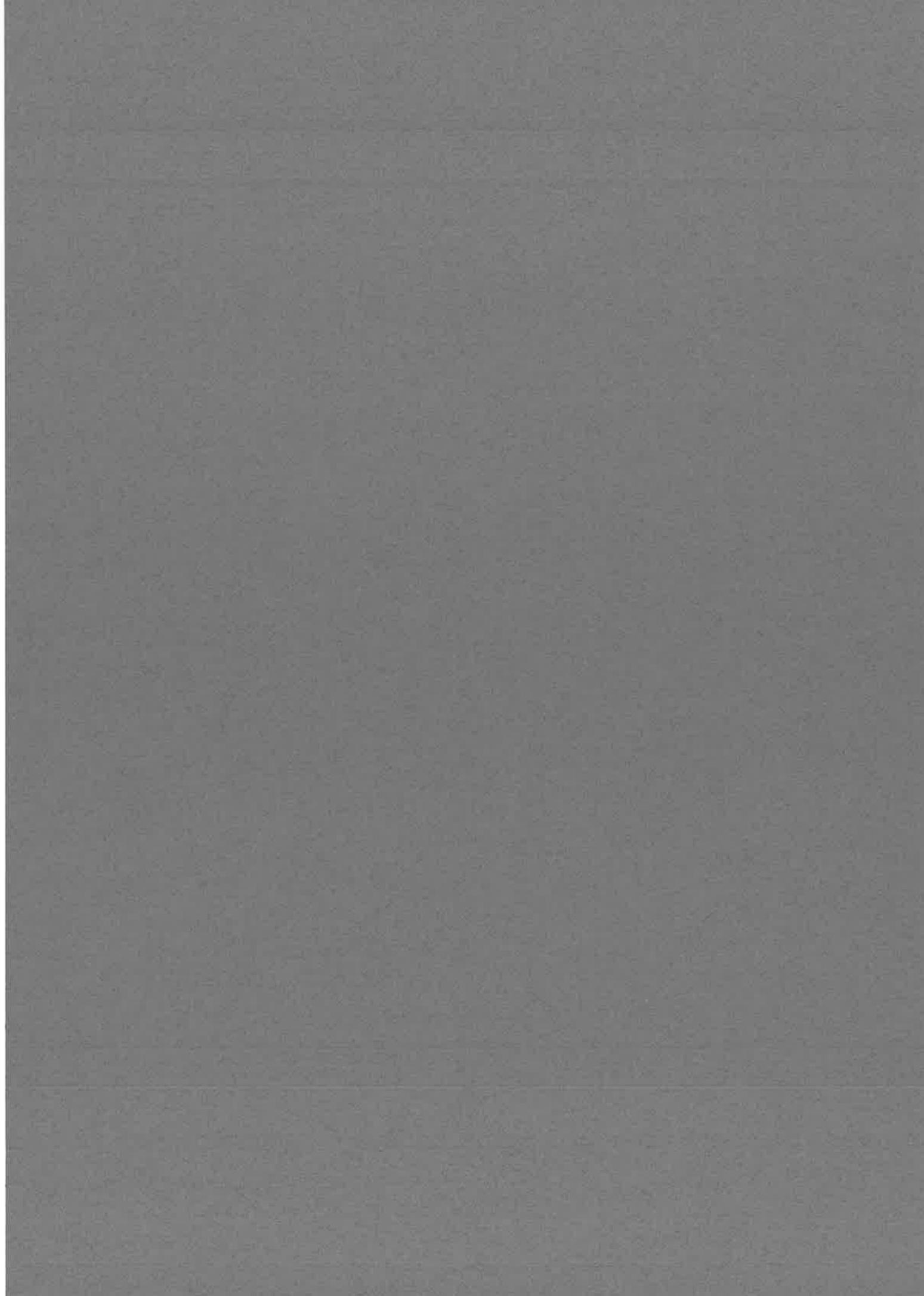
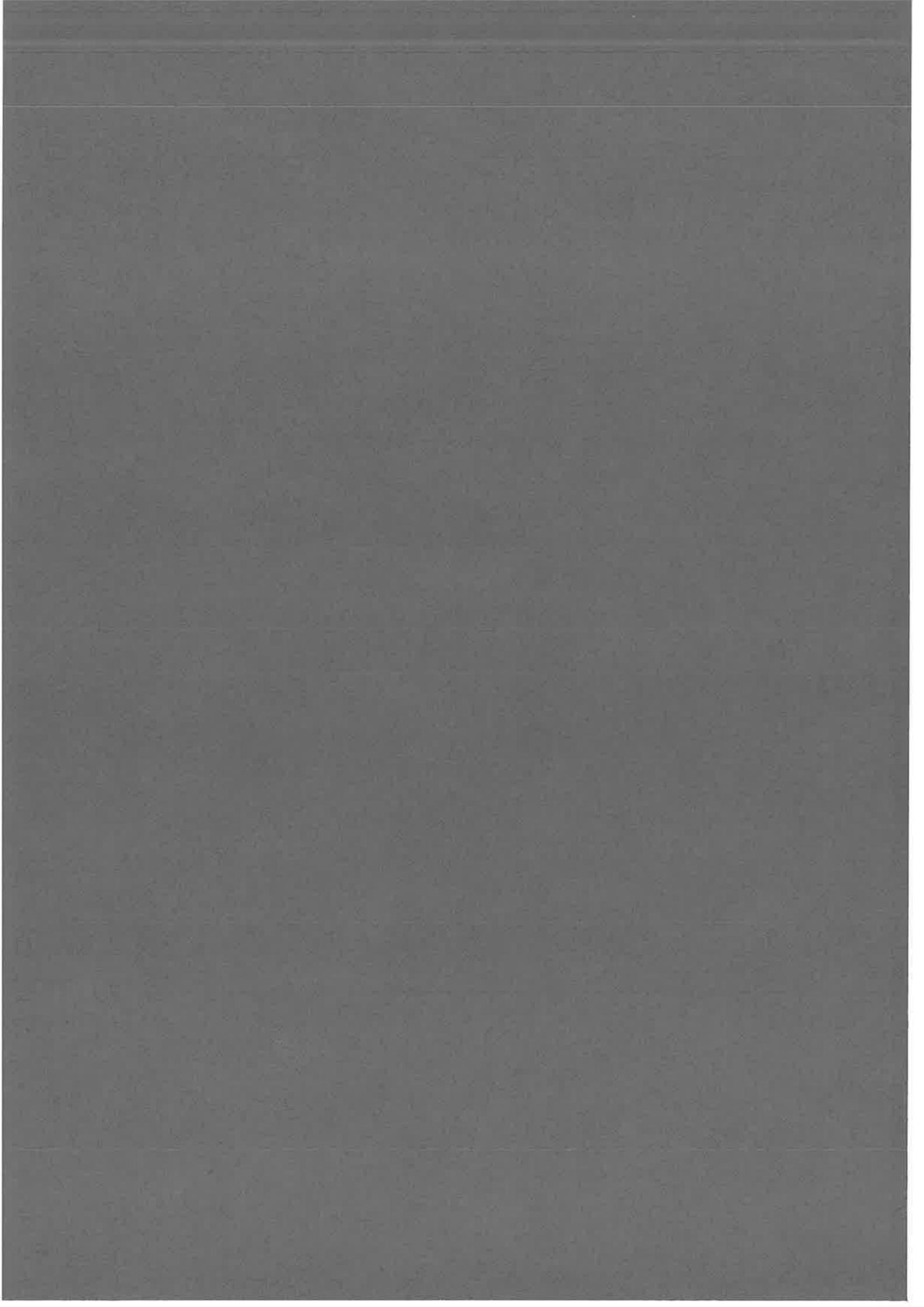


FIG. 2.6 – Représentation schématique des niveaux d'énergie des états au voisinage d'une résonance de photoassociation, en fonction de l'intensité I et du désaccord Δ du laser de photoassociation.





Chapitre 3

Théories sur les condensats

La notion de *condensation de bosons* a été introduite pour la première fois par A. Einstein en 1925 [Einstein1925], à la suite de la généralisation des travaux de S.N. Bose sur la description statistique des photons. Considérant un gaz uniforme de bosons indiscernables sans interactions placé dans une boîte, il a montré qu'à l'équilibre thermodynamique¹, en deçà d'une certaine température critique, une fraction macroscopique des bosons occupent leur état fondamental : on dit alors qu'ils se condensent dans le même état. On savait déjà qu'en thermodynamique classique « boltzmannienne », en baissant suffisamment la température, on pouvait amener une fraction macroscopique des particules dans leur état fondamental : il suffit pour cela que l'énergie thermique $k_B T$ soit inférieure à l'énergie du premier état excité d'une particule du gaz. Pour une particule quantique de masse m dans une boîte de taille L , cette énergie est de l'ordre de l'énergie de confinement dans la boîte $\sim \frac{\hbar^2}{mL^2}$. Il faut donc une faible température pour une boîte de taille macroscopique. À la limite de la température nulle, toutes les particules sont dans leur état fondamental. Cependant, la condensation décrite par Einstein ne relève pas de cette « condensation classique ». Le calcul d'Einstein montre que les N bosons condensent dès que l'énergie thermique devient plus petite que l'énergie associée au confinement *entre particules* $\sim \frac{\hbar^2}{mL_{inter}^2}$ (où $L_{inter} = \frac{L}{N^{1/3}}$ est la distance moyenne entre particules), soit $\sim N^{2/3} \frac{\hbar^2}{mL^2}$, qui est beaucoup plus grande que l'énergie de confinement dans la boîte (et correspond donc à une température plus élevée). En d'autres termes, les bosons condensent lorsque l'extension de la densité de probabilité de chaque boson devient de l'ordre de la distance moyenne entre bosons, c'est-à-dire lorsque leurs fonctions d'onde commencent à se « mélanger » les uns les autres.

Dans la réalité, les atomes bosoniques interagissent entre eux, et le modèle d'Einstein de bosons sans interaction n'est pas directement applicable, à tel point que de nombreux physiciens ont douté pendant longtemps de l'existence de la condensation de Bose-Einstein. Dans les années 1930, Fritz London a avancé l'idée que la phase superfluide de l'hélium liquide était liée à une condensation de Bose-Einstein. Néanmoins, l'hélium liquide est un milieu relativement dense et les atomes y interagissent énormément. Ces interactions réduisent la fraction d'atomes condensés à quelques pourcents : on est donc loin du modèle de gaz parfait d'Einstein où tous les atomes sont condensés dans le même état.

Pour se rapprocher davantage du modèle original de gaz parfait, il faut donc abaisser fortement la densité afin de réduire les interactions entre atomes, c'est-à-dire utiliser des gaz, plutôt que des liquides. Ce faisant, l'énergie de confinement entre particules devient très faible, et il faut utiliser des techniques de refroidissement sophistiquées pour abaisser la température au-dessous de la température critique de condensation. C'est à la suite de longs travaux sur ces techniques de refroidissement qu'ont été rendues possible les premières observations expérimen-

¹Les bosons étant sans interaction entre eux, ils ont besoin d'interagir avec un autre milieu pour pouvoir s'échanger de l'énergie. Faute de quoi, chaque boson évolue comme s'il était seul dans l'univers et le système dans son ensemble n'atteint jamais d'équilibre.

tales de condensation dans un gaz, à partir de 1995 [Anderson1995, Davis1995]. De fait, les condensats de Bose-Einstein ainsi réalisés en laboratoire sont parmi les objets les plus froids de l'univers (quelques nanokelvins), bien au-dessous de la température du rayonnement de fond cosmologique à 3 kelvin. Dans la suite, nous allons passer en revue un certain nombre de modèles théoriques décrivant ces gaz de Bose condensés dans leur conditions expérimentales : extrêmement dilués et extrêmement froids. Ces modèles nous serviront pour aborder le problème de la création de molécules dans ces gaz condensés.

Dans un premier temps, nous donnerons quelques généralités sur les condensats et les caractéristiques exactes de la théorie. Nous établirons ainsi un schéma général auquel on rattachera tous les modèles. Nous présenterons ensuite des modèles standard pour décrire un condensat atomique. Ces modèles ne sont en général conçus que pour des interactions « douces » induisant peu de perturbations lors d'une collision. Nous avons vu au chapitre 2 que les interactions réelles entre atomes ne sont pas de cette nature : elles possèdent un puits profond et un fort mur répulsif qui induit de fortes corrélations à courtes distances. Pour rendre compte de ces interactions, on utilise le plus souvent des interactions effectives, valable tant que la description précise de la physique à courte distance n'est pas essentielle. Lorsque nous aborderons la formation de molécules, nous serons dans un cadre où le physique à courte distance joue potentiellement un rôle important. C'est pourquoi nous avons développé un modèle pour décrire les condensats avec des interactions arbitrairement fortes que nous détaillons en troisième partie. Tous ces modèles, exposés dans le cas d'un condensat atomiques, seront repris pour décrire la formation de molécules.

3.1 Généralités

3.1.1 Quelques caractéristiques générales des condensats gazeux

Conditions expérimentales

Pour observer la condensation de Bose-Einstein, on doit préparer les atomes bosoniques dans le même état interne pour qu'ils soient indiscernables, c'est-à-dire dans un certain sous-niveau hyperfin. Dans les expériences actuelles, l'échantillon gazeux est maintenu en suspension dans le vide à l'aide d'un piège magnétique (créé par un ensemble de bobines) ou d'un piège dipolaire (créé par des faisceaux laser).

Le piégeage magnétique repose sur l'interaction du moment magnétique des atomes avec le champ magnétique par effet Zeeman. Aux faibles champs magnétiques, l'énergie d'interaction est proportionnelle à l'intensité du champ magnétique. Pour certains sous-niveaux Zeeman, les atomes ont tendance à minimiser leur énergie d'interaction pour les faibles valeurs de champ magnétique. En créant un minimum local du champ magnétique avec un agencement adéquat de bobines, on peut donc piéger ce type d'atomes autour de ce minimum. Le fond de ces pièges est généralement de type harmonique (pas nécessairement isotrope), de la forme :

$$V(\mathbf{r}) = \frac{1}{2}m\omega_x^2x^2 + \frac{1}{2}m\omega_y^2y^2 + \frac{1}{2}m\omega_z^2z^2 \quad (3.1)$$

Le piégeage dipolaire repose quant à lui sur l'interaction du moment dipolaire des atomes avec le champ électrique d'un laser. L'énergie d'interaction est proportionnelle à l'intensité du laser, et positive si le laser est décalé vers le bleu par rapport à la transition atomique $ns \rightarrow np$, ou négative si le laser est décalé vers le rouge. Si le laser est décalé vers le rouge, les zones de forte intensité sont donc des zones attractives pour les atomes. On peut ainsi piéger les atomes dans cette zone. En faisant interférer des faisceau laser pour obtenir des ondes stationnaires, on peut créer des variations d'intensité sur des échelles aussi petites que la longueur d'onde du laser (quelques centaines de nanomètres). Cette technique est utilisée pour créer un réseau « optique », c'est-à-dire un ensemble de petits pièges dipolaires organisés en réseau à 1, 2 ou 3 dimensions.

Les condensats sont généralement obtenus après plusieurs étapes par une dernière phase de refroidissement dite « évaporative », où les atomes les plus chauds sont progressivement éjectés du piège. Les atomes froids restants ont une température suffisamment faible (de l'ordre de quelques nanokelvins à quelques dizaines de microkelvins) pour condenser. Le nombre final d'atomes est variable selon les expériences : il peut aller d'une centaine à 10^{10} .

Dans ces conditions de très faible température, l'équilibre thermodynamique du système devrait être un corps solide, du fait des interactions entre atomes. Néanmoins, les densités maximales sont si faibles (typiquement de l'ordre de 10^{11} à 10^{15} atomes/cm³) que les collisions entre atomes sont très rares. Ils mettent ainsi du temps avant de s'associer progressivement les uns aux autres pour former un solide. Le gaz obtenu est donc en réalité dans un état métastable, d'une durée de vie de l'ordre quelques secondes à quelques minutes. Cette durée de vie est principalement conditionnée par les collisions « inélastiques » à trois atomes, où deux atomes s'associent en molécule, le troisième atome emportant l'énergie dégagée par la formation de la liaison moléculaire. Tant que ces collisions à trois corps ont des effets négligeables, le gaz est dans un état où les atomes n'interagissent pratiquement que deux à deux et de manière « élastique ».

Caractéristiques et ordres de grandeur

Lorsque le nuage d'atomes est condensé, tous les atomes ont leur mouvement décrit par la même fonction d'onde. Leur probabilité de présence suit donc la même distribution. On retrouve alors cette distribution dans la densité du gaz. C'est un fait remarquable, car en faisant une image du profil de densité du condensat, on obtient en quelque sorte une image de la fonction d'onde de chaque atome.

On peut imaginer que tous les atomes sont dans l'état fondamental du piège. Pour un piège harmonique (3.1), la densité de probabilité de chaque atome est censée suivre une distribution gaussienne le long d'un axe du piège, d'extension typique :

$$r_{\text{harm}} = \sqrt{\hbar/m\omega_i} \quad (i = x, y, z)$$

Néanmoins, ce profil gaussien est en réalité déformé à cause des interactions entre atomes. On obtient la forme du profil à partir de la théorie de champ moyen dont nous parlerons dans la partie (3.2.1). On montre que pour des interactions globalement répulsives (c'est-à-dire de longueur de diffusion $a > 0$), la taille du nuage d'atomes augmente et dans la limite dite de Thomas-Fermi [Dalfovo1999] où les interactions dominent sur l'énergie cinétique, son profil de densité est donné par la forme du piège :

$$\rho(\mathbf{r}) = \frac{m}{4\pi\hbar^2 a} (\mu - V(\mathbf{r})) \quad \text{pour } r < r_{\text{TF}} \quad (3.2)$$

où μ est le potentiel chimique du gaz, et r_{TF} est le rayon de Thomas-Fermi correspondant à la distance pour laquelle l'énergie potentielle du piège est égale au potentiel chimique. Ce rayon donne la taille typique du condensat. Pour un piège harmonique (3.1) isotrope de fréquence ω , ce rayon est donné par :

$$r_{\text{TF}} = \sqrt{\frac{2\mu}{m\omega^2}} = r_{\text{harm}} \left(\frac{15Na}{r_{\text{harm}}} \right)^{1/5} \quad (3.3)$$

où N est le nombre d'atomes. Le profil de densité dans l'approximation de Thomas-Fermi (3.2) est valable presque partout dans le condensat, sauf au bord (à $r \approx r_{\text{TF}}$) où le profil s'adoucit pour tendre vers zéro. La distance typique sur laquelle s'effectue cette transition est appelée la longueur de relaxation ξ . Elle est donnée par la formule :

$$\xi = \frac{1}{\sqrt{8\pi a \rho}} \quad (3.4)$$

où ρ est la densité typique du condensat. Cette longueur décrit généralement la distance sur laquelle s'atténue toute variation importante de la densité du condensat. On verra par exemple que les corrélations induites par l'interaction entre atomes ont des effets jusqu'à des distances de l'ordre de la longueur de relaxation.

Pour des interactions globalement attractives (longueur de diffusion $a > 0$), le condensat se comprime et devient potentiellement instable [Dalfovo1999]. On montre que le condensat n'est stable que si le nombre d'atomes est inférieur à un nombre critique :

$$N_c \approx \frac{\pi L}{4|a|}$$

où L est la taille typique de confinement dans le piège.

Pour fixer les idées, on peut donner les ordres de grandeurs typiques des différentes échelles de longueurs intervenant dans un condensat :

r_e	$ a $	ξ	r_{harm}	r_{TF}
$\lesssim 5 \text{ nm}$	$\gtrsim 5 \text{ nm}$	$\sim 500 \text{ nm}$	$\sim 1 \mu\text{m}$	$\sim 10 \mu\text{m}$

où r_e désigne la portée typique du potentiel d'interaction entre les atomes.

3.1.2 Définition de la condensation

Considérons une assemblée de particules bosoniques indiscernables. Dans le modèle d'Einstein, ces particules sont indépendantes car sans interaction entre elles. On peut donc les suivre individuellement, et compter le nombre de particules dans chaque état individuel. On dit qu'il y a condensation lorsqu'un de ces états est occupé par un nombre macroscopique de particules. Lorsque les particules interagissent entre eux, la situation est plus délicate, car elles ne sont plus indépendantes les unes des autres. Leurs mouvements sont corrélés : cela signifie que pour connaître la probabilité de trouver une particule à un endroit donné, on a besoin de connaître les positions de toutes les autres particules. On ne peut donc plus décrire le système par des fonctions d'onde individuelles pour chaque particule. Il faut considérer le système dans son ensemble, en le décrivant soit par une *fonction d'onde* à N corps bosoniques :

$$\Psi(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \mathbf{r}_3, \dots, \mathbf{r}_{N-1}, \mathbf{r}_N, t)$$

symétrique par rapport à l'échange des coordonnées \mathbf{r}_i des particules, soit par un *vecteur d'état* $|\Psi(t)\rangle$ du champ quantique associé au système de bosons. Si l'on s'intéresse aux propriétés statistiques du système, on peut le décrire plus généralement par une *matrice-densité* à N corps :

$$\hat{\rho}(t) = \sum_s p_s |\Psi_s(t)\rangle \langle \Psi_s(t)|$$

ie : $\rho(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \dots, \mathbf{r}_N, \mathbf{r}'_1, \mathbf{r}'_2, \dots, \mathbf{r}'_N, t) = \sum_s p_s \Psi_s^*(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \dots, \mathbf{r}_N, t) \Psi_s(\mathbf{r}'_1, \mathbf{r}'_2, \dots, \mathbf{r}'_N, t)$ (3.5)

où l'on effectue une moyenne sur une distribution statistique d'états à N corps, la probabilité de trouver le système dans l'état $|\Psi_s(t)\rangle$ étant donnée par p_s . Cela nécessite évidemment une énorme quantité d'information : en estimant par exemple que chaque boson ne peut occuper que 10 états, on a besoin de 10^{2N} coefficients complexes pour décrire le système. Comment définir la condensation dans ce cas ? Une définition a été proposée en 1956 par Penrose et Onsager. Nous donnons ici la version communément utilisée de cette définition [Leggett2001], basée sur l'introduction de *fonctions d'onde effectives individuelles* pour décrire le système. Pour cela, nous avons besoin de définir la notion de matrice-densité réduites.

Matrices-densité réduites et états individuels

À partir de la matrice-densité à N corps (3.5), on peut définir une matrice-densité réduite à k corps en intégrant la matrice-densité sur $N - k$ coordonnées de la manière suivante :

$$\rho_k(\mathbf{x}_1, \dots, \mathbf{x}_k, \mathbf{y}_1, \dots, \mathbf{y}_k, t) = C_N^k \int d^3\mathbf{r}_{k+1} \dots d^3\mathbf{r}_N \rho(\mathbf{x}_1, \dots, \mathbf{x}_k, \mathbf{r}_{k+1}, \dots, \mathbf{r}_N, \mathbf{y}_1, \dots, \mathbf{y}_k, \mathbf{r}_{k+1}, \dots, \mathbf{r}_N, t) \quad (3.6)$$

On peut montrer que cette matrice s'écrit en seconde quantification :

$$\rho_k(\mathbf{x}_1, \dots, \mathbf{x}_k, \mathbf{y}_1, \dots, \mathbf{y}_k, t) = \frac{1}{k!} \langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{x}_1) \dots \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{x}_k) \hat{\psi}(\mathbf{y}_1) \dots \hat{\psi}(\mathbf{y}_k) \rangle \quad (3.7)$$

où $\hat{\psi}(\mathbf{x})$ désigne l'opérateur-champ d'annihilation au point \mathbf{x} et la notation $\langle \dots \rangle$ désigne en général la moyenne à la fois *quantique* (sur l'état $|\Psi_s\rangle$ considéré) et *statistique* (sur la distribution p_s considérée) :

$$\langle \dots \rangle = \sum_s p_s \langle \Psi_s(t) | \dots | \Psi_s(t) \rangle$$

On peut considérer le cas particulier de la matrice-densité réduite à $k = 1$ corps :

$$\rho_1(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) = N \int d^3\mathbf{r}_2 \dots d^3\mathbf{r}_N \rho(\mathbf{x}, \mathbf{r}_2, \dots, \mathbf{r}_N, \mathbf{y}, \mathbf{r}_2, \dots, \mathbf{r}_N, t) = \langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{x}, t) \hat{\psi}(\mathbf{y}, t) \rangle \quad (3.8)$$

Cette matrice est clairement hermitique, si bien qu'on peut la diagonaliser à chaque instant dans une certaine base propre *orthogonale* à valeurs propres *réelles* :

$$\hat{\rho}_1(t) = \sum_i N_i(t) |\psi_i(t)\rangle \langle \psi_i(t)|$$

ie :

$$\rho_1(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) = \sum_{i=0}^{\infty} N_i(t) \psi_i^*(\mathbf{x}, t) \psi_i(\mathbf{y}, t) \quad (3.9)$$

Notons bien qu'il s'agit d'une base mobile. Les vecteurs propres $|\psi_i(t)\rangle$ correspondent formellement à des états quantiques à une particule, dont la phase globale n'est *a priori* pas fixée. Si on les normalise à 1 sur l'espace ($\langle \psi_i(t) | \psi_i(t) \rangle = 1$), les valeurs propres $N_i(t)$ s'interprètent alors comme les *nombre d'occupation moyens² instantannés* de ces états quantiques, par analogie avec la formule (3.5). On peut aussi choisir de normaliser les vecteurs propres à $N_i(t)$, auquel cas on les note en majuscule, pour attirer l'attention sur le fait que le nombre d'occupation est contenu dans leur norme ($\langle \Psi_i(t) | \Psi_i(t) \rangle = N_i(t)$). La matrice-densité réduite à un corps prend alors la forme :

$$\rho_1(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) = \sum_{i=0}^{\infty} \Psi_i^*(\mathbf{x}, t) \Psi_i(\mathbf{y}, t)$$

Les fonctions d'onde à une particule ψ_i formant une base, elles peuvent être utilisées pour représenter les différents modes de l'opérateur-champ $\hat{\psi}$. On obtient :

$$\hat{\psi}(\mathbf{x}, t) = \sum_{i=0}^{\infty} \hat{a}_i(t) \psi_i(\mathbf{x}, t) \quad (3.10)$$

avec : $\hat{a}_i = \int d^3\mathbf{r} \psi_i^*(\mathbf{r}, t) \hat{\psi}(\mathbf{r}, t)$

²moyen est encore à prendre au sens quantique et statistique.

Les coefficients \hat{a}_i de la décomposition sont des opérateurs de création et d'annihilation de particules dans les modes (ou états quantiques) i . Ils vérifient en effet les relations de commutation canoniques à temps égaux :

$$[\hat{a}_i, \hat{a}_j^\dagger] = \delta_{ij} \quad ; \quad [\hat{a}_i, \hat{a}_j] = 0$$

En utilisant (3.8) et (3.9), on déduit que $\langle \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_j \rangle = N_i \delta_{ij}$.

Définition de la condensation

Maintenant que nous avons pu définir des états individuels effectifs au sein du système à N corps et que nous connaissons leurs nombres moyens d'occupation respectifs, nous sommes en mesure de donner une définition générale de la condensation de bosons. Nous dirons qu'il y a condensation lorsqu'au moins un état individuel est occupé de manière macroscopique (c'est-à-dire représente une fraction appréciable du nombre total de particules N), alors que les autres états sont peu occupés. En général, la présence d'interaction répulsive favorise l'émergence d'un seul état individuel occupé de manière macroscopique [?], que nous noterons avec l'indice 0 :

$$N_0 \sim N \quad ; \quad N_{i \neq 0} \sim 1 \quad (3.11)$$

On appelle *condensat* ou *partie condensée* l'ensemble des particules contribuant à un instant donné à l'occupation de cet état macroscopique. La fonction d'onde individuelle correspondante ψ_0 (ou Ψ_0) est appelée *fonction d'onde du condensat*. On s'autorisera aussi à parler de *particules condensées* pour désigner les particules du condensat et de *particules non-condensées* pour désigner les autres³. La matrice-densité peut se décomposer en deux contributions :

$$\rho_1(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) = \underbrace{\Psi_0^*(\mathbf{x}, t)\Psi_0(\mathbf{y}, t)}_{\text{matrice-densité condensée}} + \underbrace{\sum_{i \neq 0}^{\infty} \Psi_i^*(\mathbf{x}, t)\Psi_i(\mathbf{y}, t)}_{\text{matrice-densité non-condensée}} \quad (3.12)$$

La première contribution, prépondérante, correspond à la matrice-densité des particules condensées, et la seconde correspond à la matrice-densité des particules non-condensées.

Notons que cette définition de la condensation est extrêmement générale. Elle est valable dans n'importe quel système de bosons. Elle ne dépend pas de l'hamiltonien du système, ni ne requiert que le système soit à l'équilibre thermodynamique.

3.1.3 Système considéré

De manière générale, les interactions entre atomes sont complexes et font intervenir des termes d'interaction à plusieurs corps. Néanmoins, nous avons dit que du fait des très faibles densités, les collisions sont rares et l'on peut considérer que les collisions à deux corps constituent l'essentiel des interactions entre atomes. Si l'on fait l'approximation que seules les interactions à deux corps interviennent, l'expression la plus générale de l'hamiltonien du système est donnée par :

$$\hat{H} = \underbrace{\sum_{i=1}^N \frac{\hat{p}_i^2}{2m}}_{\text{Énergie cinétique}} + \underbrace{\sum_{i=1}^N \hat{V}_i}_{\text{Énergie potentielle de piège}} + \underbrace{\sum_{i < j}^N \hat{U}_{ij}}_{\text{Énergie potentielle d'interaction}}$$

³Cette terminologie en termes de condensat et de particules condensées ou non est une commodité de langage assez peu rigoureuse, car les particules sont en principe indiscernables. Seuls les modes propres de la matrice-densité réduite à un corps ont vraiment un sens. Ils indiquent que certaines configurations de l'ensemble des atomes sont plus probables que d'autres. Il faut donc garder à l'esprit que l'expression *atome condensé* n'a qu'un sens collectif et probabiliste.

où \hat{p}_i représente l'opérateur d'impulsion pour la particule i , \hat{V}_i représente l'opérateur d'énergie potentielle des forces extérieures agissant sur la particule i , en particulier le piège externe (3.1), et \hat{U}_{ij} est l'opérateur d'énergie potentielle d'interaction entre les particules i et j .

On peut écrire en seconde quantification :

$$\hat{H} = \int d^3\mathbf{x} \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{x}) \left(-\frac{\hbar^2 \nabla_{\mathbf{x}}^2}{2m} + V(\mathbf{x}) + \int d^3\mathbf{y} \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{y}) U(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{y}) \right) \hat{\psi}(\mathbf{x}) \quad (3.13)$$

où $\hat{\psi}(\mathbf{x})$ est l'opérateur-champ d'annihilation au point \mathbf{x} , et V et U sont les potentiels de piège et d'interaction en représentation position.

Remarque : il convient de noter que l'hamiltonien approché (3.13) n'est valable qu'au voisinage de l'état métastable dont nous avons parlé au paragraphe 3.1.1. Par exemple, il ne décrit pas correctement l'état thermodynamiquement stable à $T = 0$ correspondant à un corps solide où les interactions multiparticules entrent en jeu.

3.1.4 Conservation du nombre de particules et symétrie $U(1)$

Jusqu'à présent, nous avons considéré que le nombre total de particules N était conservé. Cette hypothèse correspond a priori à la situation physique réelle dans un système fermé. On peut éventuellement considérer un système ouvert où on laisse entrer et sortir des particules, comme par exemple lorsqu'on étudie la statistique du système dans l'ensemble grand-canonique. On aura alors des fluctuations statistiques du nombre total de particules pour les systèmes de cet ensemble. Néanmoins, on ne peut pas dire pour autant qu'il y ait de « création » ou d'« annihilation » de particules.

Pour aborder le problème des N particules en interaction, nous avons fait appel au formalisme de seconde quantification. Ce formalisme décrit en fait une situation plus générale que le problème à N corps : il permet de traiter un système composé d'un nombre *variable* de particules. C'est pourquoi il est approprié en physique des particules, où les énergies peuvent devenir supérieures aux énergies de masse, ce qui entraîne la création et l'annihilation de particules. Dans ce cas, le nombre total de particules peut être amené à fluctuer, conduisant à des valeurs différentes de N pour différentes mesures. Notons qu'il s'agit ici de *fluctuations quantiques* du nombre de particules et non de *fluctuations statistiques*. Cela signifie que le système n'est pas dans un état quantique ayant un nombre bien défini de particules, mais dans une superposition d'états de différents nombres de particules. Ce n'est évidemment pas le cas pour des condensats atomiques, mais on va utiliser à bon escient cette possibilité qu'offre le formalisme de laisser fluctuer quantiquement le nombre total d'atomes, afin de simplifier certains calculs. Il faut garder à l'esprit qu'il s'agit d'une astuce, et que cela ne correspond en rien à la situation physique.

3.1.4.1 Symétrie $U(1)$

Tant que l'on est à nombre constant de particules, la moyenne quantique de l'opérateur-champ est nécessairement nulle. En effet, le système est dans un état quantique $|\Psi_N\rangle$ dit *état de Fock*, où le nombre total de particules est bien défini et vaut N . Quand on applique l'opérateur-champ sur cet état, on obtient un état de Fock à $N - 1$ particules, qui a nécessairement un recouvrement nul avec l'état de Fock à N particules initial. Ainsi :

$$\langle \hat{\psi} \rangle = \langle \Psi_N | \hat{\psi} | \Psi_N \rangle = \langle \Psi_N | \Psi_{N-1} \rangle = 0$$

Si l'on considère les quantités intervenant dans l'hamiltonien (3.13), on constate qu'elles conservent le nombre de particules car elles contiennent systématiquement autant d'opérateurs

de création que d'annihilation. Comme ces opérateurs sont conjugués hermétiques l'un de l'autre, cela a pour conséquence que l'hamiltonien est invariant lors d'un changement global de la phase de l'opérateur-champ. On dit que l'hamiltonien possède la symétrie $U(1)$, qui est le groupe des nombres complexes de module 1 (les facteurs de phase) munis de la multiplication. On comprend alors intuitivement que si le champ quantique $\hat{\psi}$ (donc le système) est dans un état qui respecte cette symétrie, sa moyenne quantique est nulle : aucune phase particulière n'est favorisée dans cet état, et la moyenne quantique sur toutes les phases équiprobables donne zéro. Symétrie $U(1)$ de l'hamiltonien et conservation du nombre de particules sont donc intimement liées.

Par conséquent, si l'on permet au nombre total de particules de fluctuer, la moyenne du champ peut devenir non-nulle et valoir un certain champ classique⁴ Ψ qui a la forme d'une fonction d'onde à une particule :

$$\langle \hat{\psi} \rangle = \Psi \quad (3.14)$$

Autrement dit, l'opérateur-champ $\hat{\psi}$ brise la symétrie $U(1)$ de l'hamiltonien, à la manière dont le moment magnétique total d'un système de spins brise spontanément la symétrie de l'hamiltonien lorsqu'on descend au dessous d'une certaine température critique. Nous allons voir comment cette brisure de symétrie du champ peut servir à décrire un état condensé.

3.1.4.2 Brisure de symétrie $U(1)$ avec la prescription de Bogolioubov

Une première manière d'obtenir cette brisure (3.14) est de considérer que l'opérateur-champ se décompose en un champ classique Ψ et un opérateur résiduel $\hat{\theta}$ de moyenne nulle :

$$\hat{\psi} \equiv \Psi + \hat{\theta} \quad \text{avec : } \langle \hat{\theta} \rangle = 0 \quad (3.15)$$

Si l'on écrit maintenant la matrice-densité réduite à un corps dans cet état :

$$\rho_1(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) = \langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{x}, t) \hat{\psi}(\mathbf{y}, t) \rangle \equiv \Psi^*(\mathbf{x}, t) \Psi(\mathbf{y}, t) + \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{x}) \hat{\theta}(\mathbf{y}) \rangle \quad (3.16)$$

on voit qu'elle prend une forme très similaire à la matrice-densité d'un système condensé (3.12). En particulier, lorsque Ψ est une contribution majeure au champ $\hat{\psi}$, il correspond alors à un état à un corps macroscopiquement peuplé de la matrice-densité à un corps, c'est-à-dire un état condensé. On peut alors faire l'identification entre la moyenne $\langle \hat{\psi} \rangle = \Psi$ du champ et la fonction d'onde Ψ_0 du condensat, à un facteur de phase près :

$$\Psi(\mathbf{x}) = e^{i\varphi} \Psi_0(\mathbf{x})$$

La brisure de symétrie $U(1)$ conduit donc à un état qui ressemble formellement à l'état d'un système condensé. Cela permet de voir la condensation de Bose-Einstein comme une transition de phase du second ordre accompagnée d'une brisure de symétrie où la fonction d'onde du condensat Ψ_0 joue le rôle de paramètre d'ordre de la transition.

Au vu des relations (3.12) et (3.16), on est conduit aux identifications suivantes :

$$\hat{\psi}(\mathbf{x}) = \underbrace{\hat{a}_0 \psi_0(\mathbf{x})}_{\approx e^{i\varphi} \Psi_0(\mathbf{x}) \text{ partie condensée}} + \underbrace{\sum_{i \neq 0}^{\infty} \hat{a}_i \psi_i(\mathbf{x})}_{= \hat{\theta}(\mathbf{x}) \text{ partie non-condensée}} \quad (3.17)$$

⁴ Attention, ne pas confondre ce champ avec l'état quantique du système à N corps introduit plus haut !

ce qui signifie qu'on assimile l'opérateur \hat{a}_0 d'annihilation pour le mode condensé à un nombre complexe :

$$\hat{a}_0 \approx e^{i\varphi} \sqrt{N_0}$$

L'expression approchée (3.17) de l'opérateur-champ constitue la *prescription de Bogolioubov*. Cette prescription ne peut jamais correspondre rigoureusement à un état réel du système (car en aucun un opérateur ne peut être assimilé à un nombre), mais elle est justifiée à la limite thermodynamique ($N \rightarrow \infty, V \rightarrow \infty$) où tous les éléments de matrice de \hat{a}_0 (de l'ordre de $\sqrt{N_0} \sim \sqrt{N}$) deviennent très grands, alors que son commutateur reste égal à 1, donc négligeable. Autrement dit, le mode condensé est tellement peuplé que l'opérateur d'annihilation du mode condensé agit pratiquement comme un nombre⁵. L'intérêt pratique de cette prescription est qu'on définit la condensation directement à partir de la forme (3.17) de l'opérateur-champ, plutôt qu'à partir de celle (3.12) de la matrice-densité. Cela permet d'alléger sensiblement les calculs.

3.1.4.3 Brisure de symétrie $U(1)$ avec un état cohérent

Une autre façon d'obtenir la brisure de symétrie (3.14) sans faire d'approximation sur les opérateurs est de considérer que le système est dans un état propre de \hat{a}_0 (état $|\Psi_{N_0, \varphi}\rangle$ dit *cohérent*). Comme on a toujours $\langle \hat{a}_0^\dagger \hat{a}_0 \rangle = N_0$, la valeur propre doit être de module $\sqrt{N_0}$:

$$\hat{a}_0 |\Psi_{N_0, \varphi}\rangle = e^{i\varphi} \sqrt{N_0} |\Psi_{N_0, \varphi}\rangle$$

où φ est une phase donnée. L'état cohérent $|\Psi_{N_0, \varphi}\rangle$ brise clairement la symétrie $U(1)$ puisque la moyenne $\Psi = \langle \hat{\psi} \rangle$ de l'opérateur-champ vérifie :

$$\begin{aligned} \Psi = \langle \Psi_{N_0, \varphi} | \hat{\psi} | \Psi_{N_0, \varphi} \rangle &= \underbrace{\langle \Psi_{N_0, \varphi} | \hat{a}_0 | \Psi_{N_0, \varphi} \rangle}_{e^{i\varphi} \sqrt{N_0}} \psi_0(\mathbf{x}) + \sum_{i \neq 0}^{\infty} \underbrace{\langle \Psi_{N_0, \varphi} | \hat{a}_i | \Psi_{N_0, \varphi} \rangle}_0 \psi_i(\mathbf{x}) \\ &= e^{i\varphi} \Psi_0 \end{aligned}$$

Par ailleurs, l'état cohérent conduit toujours à la forme (3.12) de la matrice-densité à un corps, si bien que la moyenne Ψ correspond à la fonction d'onde du condensat Ψ_0 (à un facteur de phase près) quand N_0 est un nombre d'occupation macroscopique. L'émergence d'une moyenne non-nulle de l'opérateur-champ dans un état cohérent peut ainsi décrire l'apparition d'un état condensé.

Comme précédemment, un état cohérent ne peut pas correspondre rigoureusement à un état réel du système car il brise la symétrie $U(1)$ et ne conserve pas le nombre total de particules. Néanmoins, si l'on moyenne la matrice-densité associée à cet état cohérent sur la phase arbitraire φ que nous avons introduite, on trouve une matrice-densité correspondant à un mélange statistique poissonien d'états de Fock de différents nombres totaux de particules. C'est dans cette mesure que l'on peut en pratique faire des calculs avec des états cohérents non-physiques, en gardant à l'esprit que l'état physique que l'on considère est en réalité un mélange statistique de ces états.

Les états cohérents et la prescription de Bogolioubov ne sont pas strictement équivalents mais conduisent dans la plupart des cas aux mêmes résultats. Les états cohérents sont un moyen plus général et rigoureux de briser la symétrie $U(1)$ puisqu'on fait une approximation sur l'état

⁵Cela correspond à la limite classique d'un champ quantique. Quand un mode d'un champ quantique est peuplé macroscopiquement, les fluctuations quantiques deviennent négligeables comparées à ce mode, et le champ peut être assimilé à un champ classique.

du système, plutôt que sur l'opérateur-champ. Dans la suite, nous utiliserons en pratique la prescription de Bogolioubov, tout en gardant à l'esprit que les mêmes calculs pourraient être dérivés avec des états cohérents.

3.1.5 Equations dynamiques générales

Pour étudier la dynamique d'un système à N corps, une approche très générale consiste à étudier les fonctions de corrélation du système à divers ordres, pour en déduire les quantités physiques désirées. Nous présentons dans cette partie le tronc commun exact et général auquel on peut rattacher toutes les approches théoriques sur les condensats, afin de pouvoir clarifier leur comparaison. Nous verrons par la suite que chaque approche théorique correspond à des approximations particulières sur ces fonctions de corrélations.

À partir de l'hamiltonien (3.13), l'équation de Heisenberg donne l'équation dynamique de l'opérateur-champ $\hat{\psi}$, qui décrit exactement l'évolution du système à N bosons dans l'approximation des interactions à deux corps :

$$i\hbar \frac{\partial \hat{\psi}}{\partial t}(\mathbf{x}, t) = H_{\mathbf{x}} \hat{\psi}(\mathbf{x}, t) + \int d^3 \mathbf{z} U(\mathbf{x} - \mathbf{z}) \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{z}, t) \hat{\psi}(\mathbf{z}, t) \hat{\psi}(\mathbf{x}, t) \quad (3.18)$$

Où :

$$H_{\mathbf{x}} = T_{\mathbf{x}} + V(\mathbf{x}) = -\frac{\hbar^2 \nabla_{\mathbf{x}}^2}{2m} + V(\mathbf{x})$$

est l'hamiltonien à un corps dans un piège externe V , et U le potentiel d'interaction à deux corps. À partir de l'opérateur-champ, on peut définir différentes moyennes dans l'état quantique du système :

$$\Psi(\mathbf{x}, t) \equiv \langle \hat{\psi}(\mathbf{x}, t) \rangle \quad (3.19)$$

$$\Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) \equiv \langle \hat{\psi}(\mathbf{x}, t) \hat{\psi}(\mathbf{y}, t) \rangle \quad (3.20)$$

$$\Omega(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{z}, t) \equiv \langle \hat{\psi}(\mathbf{x}, t) \hat{\psi}(\mathbf{y}, t) \hat{\psi}(\mathbf{z}, t) \rangle \quad (3.21)$$

⋮

$$R(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) \equiv \langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{x}, t) \hat{\psi}(\mathbf{y}, t) \rangle \quad (3.22)$$

$$K(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{z}, t) \equiv \langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{x}, t) \hat{\psi}(\mathbf{y}, t) \hat{\psi}(\mathbf{z}, t) \rangle \quad (3.23)$$

$$F(\mathbf{w}, \mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{z}, t) \equiv \langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{w}, t) \hat{\psi}(\mathbf{x}, t) \hat{\psi}(\mathbf{y}, t) \hat{\psi}(\mathbf{z}, t) \rangle \quad (3.24)$$

⋮

$$G(\mathbf{w}, \mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{z}, t) \equiv \langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{w}, t) \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{x}, t) \hat{\psi}(\mathbf{y}, t) \hat{\psi}(\mathbf{z}, t) \rangle \quad (3.25)$$

⋮

Ces différentes moyennes peuvent être vues comme autant de fonction de corrélations dépendant de 1, 2, 3... coordonnées. D'après la relation (3.7), les moyennes R et G sont directement liées aux matrices-densité à un et deux corps : $\rho_1 = R$ et $\rho_2 = \frac{1}{2}G$. Elles font partie des moyennes contenant autant d'opérateurs d'annihilation que d'opérateurs de création : elles sont dites *normales*. Pour un état du système avec un nombre N bien défini d'atomes, les moyennes normales sont les seules moyennes non-nulles. Dans ce cas, on a la relation :

$$\int G(\mathbf{x}, \mathbf{z}, \mathbf{z}, \mathbf{y}, t) d^3 \mathbf{z} = (N - 1)R(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) \quad (3.26)$$

Les moyennes normales permettent en outre de calculer les quantités observables, comme par exemple l'énergie moyenne du système :

$$E = \int d^3\mathbf{x} \lim_{\mathbf{y} \rightarrow \mathbf{x}} H_{\mathbf{y}} R(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + \frac{1}{2} \int d^3\mathbf{x} d^3\mathbf{y} U(\mathbf{x}-\mathbf{y}) G(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) \quad (3.27)$$

Les autres moyennes (dites *anormales*) ne sont non-nulles que pour un état du système où le nombre d'atomes n'est plus fixé, c'est-à-dire où la symétrie $U(1)$ du champ est brisée. Nous avons vu que ce type d'état, bien que non-physique, facilite les calculs pour un état condensé. En particulier, si l'on considère un tel état, la moyenne Ψ est alors non-nulle et représente la fonction d'onde du condensat, c'est-à-dire la fonction d'onde macroscopique occupée individuellement par la majorité des atomes (atomes condensés). Sa norme $|\Psi|^2$ correspond physiquement à la densité d'atomes condensés. Par analogie, on peut s'attendre à ce que la moyenne Φ soit la fonction d'onde occupée par la majorité des *paires d'atomes* (paires condensées), Ω la fonction d'onde des *triplets condensés*, etc. Ce point sera justifié par la suite quand nous introduirons les fonctions effectives dans un condensat (voir le paragraphe 3.3.1.2).

Les moyennes (4.20-4.26) ont des contributions provenant directement ou indirectement du mode condensé Ψ . On fait apparaître ces différentes contributions en développant les moyennes avec la prescription de Bogolioubov $\hat{\psi} = \Psi + \hat{\theta}$. Certaines contributions, que nous appellerons *moyennes réduites*, nous intéresseront particulièrement dans la suite. En anticipant les équations développées plus loin, on peut définir certaines de ces moyennes réduites (qu'on notera avec un prime pour souligner le fait qu'elles ont été diminuées de contributions dues au condensat) :

$$\Phi'(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) \equiv \Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) - \Psi(\mathbf{x}, t)\Psi(\mathbf{y}, t) \quad (3.28)$$

$$\Omega'(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{z}, t) \equiv \Omega(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{z}, t) - \Psi(\mathbf{x}, t)\Psi(\mathbf{y}, t)\Psi(\mathbf{z}, t) \quad (3.29)$$

$$R'(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) \equiv R(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) - \Psi^*(\mathbf{x}, t)\Psi(\mathbf{y}, t) \quad (3.30)$$

$$K'(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{z}, t) \equiv K(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{z}, t) - \Psi^*(\mathbf{x}, t)\Phi(\mathbf{y}, \mathbf{z}, t) - R'(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t)\Psi(\mathbf{z}, t) - R'(\mathbf{x}, \mathbf{z}, t)\Psi(\mathbf{y}, t) \quad (3.31)$$

$$F'(\mathbf{w}, \mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{z}, t) \equiv F(\mathbf{w}, \mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{z}, t) - K(\mathbf{w}, \mathbf{x}, \mathbf{z}, t)\Psi(\mathbf{y}, t) \quad (3.32)$$

$$G'(\mathbf{w}, \mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{z}, t) \equiv G(\mathbf{w}, \mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{z}, t) - \Psi^*(\mathbf{w}, t)K(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{z}, t) \quad (3.33)$$

...

Φ' représente ainsi la corrélation des paires d'atomes condensés, Ω' la corrélation des triplets d'atomes condensés, et R' la matrice densité des atomes non-condensés.

À partir de l'équation d'évolution (3.18), on déduit les équations exactes pour l'évolution de chaque moyenne :

$$i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t}(\mathbf{x}) = H_{\mathbf{x}}\Psi(\mathbf{x}) + \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{x}-\mathbf{z})K(\mathbf{z}, \mathbf{z}, \mathbf{x}) \quad (3.34)$$

$$i\hbar \frac{\partial \Phi}{\partial t}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = [H_{\mathbf{y}} + H_{\mathbf{x}} + \underline{U}(\mathbf{x}-\mathbf{y})] \Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + \left[\int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{z}-\mathbf{y})F(\mathbf{z}, \mathbf{z}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) \right]_{+\{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\}} \quad (3.35)$$

$$i\hbar \frac{\partial R}{\partial t}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = [H_{\mathbf{y}} - H_{\mathbf{x}}] R(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + \left[\int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{z}-\mathbf{y})G(\mathbf{x}, \mathbf{z}, \mathbf{z}, \mathbf{y}) \right]_{-\{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\}^*} \quad (3.36)$$

...

Ainsi que pour les moyennes réduites :

$$i\hbar \frac{\partial \Phi'}{\partial t}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = U(\mathbf{x}-\mathbf{y})\Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + \left[H_{\mathbf{y}}\Phi'(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{z}-\mathbf{y})F'(\mathbf{z}, \mathbf{z}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) \right]_{+\{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\}} \quad (3.37)$$

$$i\hbar \frac{\partial R'}{\partial t}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = [H_{\mathbf{y}} - H_{\mathbf{x}}] R'(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + \left[\int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{z}-\mathbf{y})G'(\mathbf{x}, \mathbf{z}, \mathbf{z}, \mathbf{y}) \right]_{-\{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\}^*} \quad (3.38)$$

...

On constate que chaque moyenne d'ordre n se couple à une moyenne d'ordre $n + 2$, selon une hiérarchie infinie d'équations. Pour clore la dynamique sur un nombre fini de moyennes, il faut donc faire une approximation consistant à exprimer les moyennes d'un ordre donné en fonction des moyennes d'ordres inférieurs. Si possible, cette approximation doit être cohérente avec certaines propriétés que l'on considère importantes, telles que la conservation de l'énergie moyenne ou du nombre moyen de particules. Nous allons examiner différentes possibilités dans la suite.

3.2 Théories standard pour des interactions douces

Les modèles « standard » élaborés pour décrire les condensats ne sont en général applicables que pour des interactions « douces » satisfaisant l'approximation de Born. La raison est simple : ces interactions induisent peu de corrélations entre particules et peuvent être traitées perturbativement. Nous allons présenter quelques unes de ces approches qui ont servi de base pour un certain nombre de travaux traitant de la formation de molécules dans les condensats. En principe, ces modèles ne sont pas adaptés pour traiter l'interaction réelle. Celle-ci est en général remplacée par une interaction effective, le plus souvent un potentiel de contact. Nous montrerons les caractéristiques et les limitations de cette approche.

3.2.1 Approche de Hartree-Fock à $T = 0$

Une première approche très courante consiste à considérer que toutes les particules sont indépendantes, tout en tenant compte de leurs interactions. Cela revient à négliger les corrélations entre particules. Ce type d'approche conduit en général à ce qu'on appelle une théorie de champ moyen : chaque particule, prise individuellement, ressent l'influence des autres particules (le « milieu ») sous la forme d'un champ moyen (l'influence moyenne de toutes les autres particules). Dans le cas d'un condensat à faible température, l'équation de champ moyen est appelée équation de Gross-Pitaevskiï.

3.2.1.1 Dérivation standard

Pour un système de particules indépendantes (sans corrélation), la matrice-densité à deux corps $\rho_2 = \frac{1}{2}G$ s'exprime simplement comme le produit (« décorrélé ») de deux matrices-densité à un corps $\rho_1 = R$:

$$G(\mathbf{x}_1, \mathbf{x}_2, \mathbf{x}'_1, \mathbf{x}'_2) \approx R(\mathbf{x}_1, \mathbf{x}'_1) R(\mathbf{x}_2, \mathbf{x}'_2)$$

Cette approximation, dite de Hartree, ne tient pas compte de l'indiscernabilité des particules. Comme nous considérons des bosons indiscernables, il faut donc symétriser l'expression ci-dessus vis-à-vis de l'échange de la particule 1 avec la particule 2. Cependant, en effectuant cette symétrisation, il faut prendre garde à ne pas compter deux fois le cas où les particules sont dans le même état (et où aucune symétrisation n'est requise). On obtient alors l'approximation de Hartree-Fock :

$$\begin{aligned} G(\mathbf{x}_1, \mathbf{x}_2, \mathbf{x}'_1, \mathbf{x}'_2) \approx & R(\mathbf{x}_1, \mathbf{x}'_1)R(\mathbf{x}_2, \mathbf{x}'_2) + R(\mathbf{x}_2, \mathbf{x}'_1)R(\mathbf{x}_1, \mathbf{x}'_2) \\ & - \sum_{i=0}^{\infty} N_i(N_i + 1) \psi_i^*(\mathbf{x}_1)\psi_i^*(\mathbf{x}_2)\psi_i(\mathbf{x}'_1)\psi_i(\mathbf{x}'_2) \end{aligned} \quad (3.39)$$

le dernier terme étant là pour éviter tout double comptage⁶. Il s'exprime en fonction des états à une particule ψ_i et de leurs nombres d'occupation N_i que nous avons introduits précédemment.

L'approximation de Hartree-Fock (3.39) décrit des particules indépendantes pouvant accéder à tous les états possibles. En présence du condensat, on sait que presque toutes les particules sont dans le même état condensé ψ_0 . En négligeant les états non-condensés ($N_0 \approx N$ et $N_{i \neq 0} \approx 0$), on a :

$$\begin{aligned} R(\mathbf{x}, \mathbf{x}') & \approx N_0 \psi_0^*(\mathbf{x})\psi_0(\mathbf{x}') \\ & = \Psi_0^*(\mathbf{x})\Psi_0(\mathbf{x}') \end{aligned} \quad (3.40)$$

⁶Ce terme est souvent négligé à suffisamment haute température, lorsque la matrice-densité R contient un grand nombre de modes propres ψ_i . Il est en effet beaucoup plus probable dans ce cas d'avoir deux particules dans états différents que dans le même état. En revanche, dans le cas d'un condensat, il faut absolument tenir compte de ce terme sous peine de compter deux fois la contribution du condensat.

Si bien que l'expression (3.39) devient :

$$\begin{aligned} G(\mathbf{x}_1, \mathbf{x}_2, \mathbf{x}'_1, \mathbf{x}'_2) &= N_0(N_0 - 1)\psi_0^*(\mathbf{x}_1)\psi_0^*(\mathbf{x}_2)\psi_0(\mathbf{x}'_1)\psi_0(\mathbf{x}'_2) \\ &\approx \Psi_0^*(\mathbf{x}_1)\Psi_0^*(\mathbf{x}_2)\Psi_0(\mathbf{x}'_1)\Psi_0(\mathbf{x}'_2) \end{aligned} \quad (3.41)$$

Les expressions (3.40) et (3.41) sont intuitives : toutes les particules étant dans l'état ψ_0 , R et G s'expriment directement comme produits décorrélés de cet état. En remplaçant ces expressions dans l'équation (3.36), on obtient :

$$\Psi_0^*(\mathbf{x})i\hbar\frac{\partial\Psi_0(\mathbf{x})}{\partial t} - \left(i\hbar\frac{\partial\Psi_0(\mathbf{x})}{\partial t}\right)^* \Psi_0(\mathbf{y}) = \left[\Psi_0^*(\mathbf{x}) \left(H_{\mathbf{y}}\Psi_0(\mathbf{y}) + \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{y}-\mathbf{z})|\Psi_0(\mathbf{z})|^2\Psi_0(\mathbf{y}) \right) \right]_{-\{\mathbf{x}\leftrightarrow\mathbf{y}\}^*}$$

ce qui donne l'équation dynamique sur Ψ_0 :

$$\boxed{i\hbar\frac{\partial\Psi_0}{\partial t}(\mathbf{x}) = \left(H_{\mathbf{x}} + \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{x}-\mathbf{z})|\Psi_0(\mathbf{z})|^2 \right) \Psi_0(\mathbf{x})} \quad (3.42)$$

Cette équation est l'équation dynamique pour le condensat à l'approximation de Hartree-Fock. Elle a la forme d'une équation de Schrödinger à une particule comprenant un potentiel supplémentaire :

$$M(\mathbf{x}) = \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{x}-\mathbf{z})|\Psi_0(\mathbf{z})|^2$$

que l'on appelle *potentiel de champ-moyen*. Il traduit l'interaction moyenne que subit un atome du condensat avec l'ensemble des autres atomes du condensat. Ce potentiel est proportionnel à la densité $|\Psi_0|^2$ (plus le gaz est dense, plus l'interaction moyenne est importante), ce qui rend l'équation non-linéaire.

En remplaçant les expressions (3.40) et (3.41) dans l'expression (3.27) donnant l'énergie moyenne du système, on trouve :

$$E^{(HF)}[\Psi_0] = \int d^3\mathbf{x} \left(\frac{|\hbar\nabla\Psi_0(\mathbf{x})|^2}{m} + V(\mathbf{x})|\Psi_0(\mathbf{x})|^2 + \int d^3\mathbf{y} U(\mathbf{x}-\mathbf{y})|\Psi_0(\mathbf{y})|^2|\Psi_0(\mathbf{x})|^2 \right) \quad (3.43)$$

Cette énergie est simplement une fonctionnelle de la fonction du condensat Ψ_0 , et on peut dériver l'équation dynamique du condensat à partir de cette fonctionnelle :

$$i\hbar\frac{\partial\Psi_0}{\partial t}(\mathbf{x}) = \frac{\delta E^{(HF)}[\Psi_0]}{\delta\Psi_0^*(\mathbf{x})}$$

Cette relation garantit la conservation de l'énergie (voir le paragraphe 3.2.4.4).

3.2.1.2 Dérivation avec brisure de symétrie $U(1)$

On peut obtenir l'équation dynamique (3.42) plus simplement en brisant la symétrie $U(1)$. Si tous les atomes sont dans le même état, la prescription de Bogolioubov se réduit à $\hat{\psi} = \Psi$ (autrement dit, le champ quantique se réduit à sa moyenne classique, les fluctuations étant nulles). On peut alors remplacer tous les opérateurs-champ $\hat{\psi}$ par leurs moyennes Ψ dans l'équation (3.18). Une manière équivalente de procéder est de considérer un état cohérent $|\Omega\rangle$ tel que : $\hat{\psi}|\Omega\rangle = \Psi|\Omega\rangle$ et de prendre la moyenne de l'équation (3.18) dans cet état. Dans les deux cas, on obtient directement l'équation (3.42). On voit donc que la brisure de symétrie simplifie les calculs en évitant de passer par la matrice-densité. Par ailleurs, on note que l'équation (3.42) peut être obtenue à partir de l'équation dynamique exacte (3.34) en faisant l'approximation suivante :

$$\boxed{K(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{z}) \approx \Psi^*(\mathbf{x})\Psi(\mathbf{y})\Psi(\mathbf{z})} \quad (3.44)$$

3.2.1.3 Équation de Gross-Pitaevskiï

En général, l'extension de la fonction d'onde du condensat Ψ est de l'ordre de celle du piège externe confinant le gaz (par exemple, quelques micromètres), ce qui est très grand devant la portée du potentiel d'interaction entre deux atomes (typiquement quelques nanomètres). On peut donc « sortir » la fonction d'onde de l'intégrale dans le potentiel de champ moyen. Cela fait apparaître l'intégrale du potentiel, qui d'après la relation (2.17) s'exprime en fonction de la longueur de diffusion à l'approximation de Born a_0 :

$$M(\mathbf{x}) \approx \frac{4\pi\hbar^2 a_0}{m} |\Psi_0(\mathbf{x})|^2$$

L'équation (3.42) prend alors la forme suivante :

$$i\hbar \frac{\partial \Psi_0}{\partial t}(\mathbf{x}) = \left(-\frac{\hbar^2 \nabla_x^2}{2m} + V(\mathbf{x}) + \frac{4\pi\hbar^2 a_0}{m} |\Psi_0(\mathbf{x})|^2 \right) \Psi_0(\mathbf{x}) \quad (3.45)$$

La présence de la longueur de diffusion à l'approximation de Born montre clairement que cette approche n'est valable que pour des potentiels satisfaisant l'approximation de Born. En s'inspirant de ce résultat, il est tentant d'imaginer qu'il suffit de remplacer a_0 par la véritable longueur de diffusion a du potentiel

$$\boxed{a_0 \rightarrow a} \quad (3.46)$$

pour obtenir le résultat général, valable pour n'importe quel potentiel :

$$\boxed{i\hbar \frac{\partial \Psi_0}{\partial t}(\mathbf{x}) = \left(-\frac{\hbar^2 \nabla_x^2}{2m} + \frac{4\pi\hbar^2 a}{m} |\Psi_0(\mathbf{z})|^2 \right) \Psi_0(\mathbf{x})} \quad (3.47)$$

Cette équation porte le nom de *Gross-Pitaevskiï* [Dalfovo1999, Leggett2001, Pitaevskiï2003]. Elle a été dérivée indépendamment par E. P. Gross et L. Pitaevskiï en 1963.

3.2.1.4 Utilisation d'un potentiel de contact effectif

À ce stade, cette équation n'est qu'une hypothèse. Il n'est *a priori* pas possible de la démontrer dans le cadre de l'approche Hartree-Fock qui n'est valable que pour des potentiels « doux », induisant peu de corrélations entre particules. Elle sera justifiée par la suite quand nous aborderons les théories à interactions arbitrairement fortes (voir le paragraphe 3.3.1.5). Néanmoins, l'équation de Gross-Pitaevskiï est très souvent dérivée en combinant l'approche Hartree-Fock et l'usage de potentiels de contact effectifs. Comme nous l'avons expliqué au paragraphe 2.1.3.3, l'idée physique sous-jacente est de considérer qu'aux faibles énergies de collisions mises en jeu, le potentiel U (quel qu'il soit) n'a d'effets à grandes distances que par l'intermédiaire de sa longueur de diffusion a . Une fois que deux particules ont effectué une collision et qu'elles se retrouvent à grande distance l'une de l'autre, tout s'est passé comme si elles n'avaient interagi qu'au même point avec un certain couplage g relié à la longueur de diffusion. En réalité, les particules peuvent se retrouver fortement corrélées à courtes distances par le potentiel U si celui-ci est suffisamment fort ; auquel cas, l'approche de Hartree-Fock qui néglige les corrélations n'est plus du tout adaptée. Mais en remplaçant U par un potentiel de contact effectif :

$$U(\mathbf{r}) \rightarrow g\delta^3(\mathbf{r}) \frac{\partial}{\partial r}(r \cdot) \quad \text{avec : } g = \frac{4\pi\hbar^2 a}{m} \quad (3.48)$$

on se débarrasse des problèmes à courtes distances tout en gardant une bonne description des effets de la collision à grande distance (si ceux-ci ne dépendent que de la longueur de diffusion). Alors, l'approximation de Hartree-Fock est à nouveau valable, et en effectuant le remplacement (3.48)

dans l'équation de dynamique de Hartree-Fock (3.42), on obtient l'équation de Gross-Pitaevskiï (3.47).

En fait, le remplacement (3.48) est tout-à-fait équivalent au remplacement (3.46) : en remplaçant l'interaction réelle par une interaction effective dont la longueur de diffusion à l'approximation de Born est la longueur de diffusion réelle a , on remplace de fait a_0 par a dans toutes les expressions de la théorie, et l'on obtient ainsi des expressions généralisées, censées fonctionner pour tout type de potentiel. Néanmoins, cette « astuce » ne fonctionne précisément que lorsque la théorie ne fait apparaître que la longueur a_0 , c'est-à-dire qu'elle néglige les corrélations entre particules. Nous verrons que lorsqu'il est utilisé avec des théories plus élaborées tenant compte des corrélations (comme celle de Bogolioubov ou de Hartree-Fock-Bogolioubov), le remplacement (3.48) devient discutable.

3.2.1.5 Applications de l'équation de Gross-Pitaevskiï

Dans le domaine de la physique des condensats à très basse température (condensats quasi-purs), l'équation de Gross-Pitaevskiï est incontournable. Son domaine d'application est étonnamment large, et elle est à la base de notre compréhension du comportement des condensats atomiques à suffisamment faible température [Dalfovo1999, Leggett2001, Pethick2002, Pitaevskiï2003]. Sa première application est de décrire correctement les profils de densité observés expérimentalement dans les condensats [Hau1998]. Mais elle reproduit également fidèlement la dynamique d'un condensat soumis à des excitations collectives extérieures, telles que des variations du piège de confinement [Inouye1998]. Elle permet également de reproduire l'apparition spectaculaire de tourbillons dans les condensats soumis à un mouvement de rotation et leur structuration en réseau [Madison2000]. Enfin, le caractère non-linéaire de cette équation (de par le terme de champ-moyen) permet d'expliquer l'apparition d'ondes solitaires (ou *solitons*), c'est-à-dire d'ondes de densité se déplaçant sans se déformer dans le condensat [Denschlag2000].

Il est donc essentiel que tout modèle amélioré (par rapport à l'approche de Hartree-Fock) puisse retrouver les prédictions de l'équation de Gross-Pitaevskiï.

3.2.2 Approche de Bogolioubov

Nous avons jusqu'à présent considéré que tous les atomes du gaz sont condensés dans le même état. C'est une bonne approximation dans le cadre des condensats gazeux à suffisamment faible température, où la fraction condensée atteint presque 100%. Cependant, même à température nulle la fraction condensée ne peut pas atteindre 100%. La raison est que les interactions induisent des corrélations entre les atomes, ce qui peuple nécessairement des états individuels autres que l'état condensé. Le phénomène est encore plus prononcé dans les condensats liquides (tels que l'hélium superfluide) où la densité est plus forte, ce qui accentue les effets des interactions. La fraction condensée n'atteint alors que quelques dizaines de pourcents. C'est pour traiter ce « dépeuplement du condensat » et tenir compte de la partie non-condensée que N. N. Bogolioubov [Bogolioubov1947] a introduit la prescription (3.15) :

$$\hat{\psi} = \Psi + \hat{\theta}$$

où l'opérateur-champ est décomposé en un « champ classique » correspondant à la fonction d'onde du condensat (à un facteur de phase près) et un opérateur résiduel associé à la partie non-condensée. Nous avons vu au paragraphe 3.1.4.2 que cette prescription brise la symétrie $U(1)$ du champ, puisque l'opérateur-champ a nécessairement une valeur moyenne non-nulle $\langle \hat{\psi} \rangle = \Psi$.

Dans le cas de l'hélium superfluide, le dépeuplement du condensat est trop important pour que l'approche de Bogolioubov donne des résultats valables quantitativement. En revanche, cette approche a mis en évidence l'existence de superfluidité au sein d'un système condensé en faible interaction, ce qui a permis de mieux comprendre le lien entre superfluidité et condensation. Lorsque N. N. Bogolioubov a introduit sa méthode, il l'a appliqué au cas d'un gaz de bosons infini uniforme. Nous allons présenter dans la suite la méthode de Bogolioubov généralisée au cas d'un gaz non-uniforme. La présentation est inspirée des travaux de C. Gardiner [Gardiner1997], et Y. Castin et R. Dum [Castin1998]⁷.

3.2.2.1 Diagonalisation de l'équation d'évolution

On développe l'équation d'évolution (3.18) pour l'opérateur-champ avec la prescription de Bogolioubov :

$$\begin{aligned}
 i\hbar \frac{d}{dt} \hat{\psi}(\mathbf{x}) &= H_x \hat{\psi}(\mathbf{x}) + \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{x} - \mathbf{z}) \underbrace{\hat{\psi}^\dagger(\mathbf{z}) \hat{\psi}(\mathbf{z}) \hat{\psi}(\mathbf{x})}_{\text{Ordre 0}} \\
 &= \Psi^*(\mathbf{z}) \Psi(\mathbf{z}) \Psi(\mathbf{x}) \quad \text{Ordre 1} \\
 &+ \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{z}) \Psi(\mathbf{z}) \Psi(\mathbf{x}) + \Psi^*(\mathbf{z}) \hat{\theta}(\mathbf{z}) \Psi(\mathbf{x}) + \Psi^*(\mathbf{z}) \Psi(\mathbf{z}) \hat{\theta}(\mathbf{x}) \quad \text{Ordre 2} \\
 &+ \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{z}) \hat{\theta}(\mathbf{z}) \Psi(\mathbf{x}) + \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{z}) \Psi(\mathbf{z}) \hat{\theta}(\mathbf{x}) + \Psi^*(\mathbf{z}) \hat{\theta}(\mathbf{z}) \hat{\theta}(\mathbf{x}) \quad \text{Ordre 3} \\
 &+ \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{z}) \hat{\theta}(\mathbf{z}) \hat{\theta}(\mathbf{x})
 \end{aligned}$$

À l'ordre 1 en $\hat{\theta}$, on a donc :

$$K(\mathbf{z}, \mathbf{z}, \mathbf{x}) = \langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{z}) \hat{\psi}(\mathbf{z}) \hat{\psi}(\mathbf{x}) \rangle \approx \Psi^*(\mathbf{z}) \Psi(\mathbf{z}) \Psi(\mathbf{x})$$

puisque $\langle \hat{\theta} \rangle = 0$ par définition. Par conséquent, l'équation pour Ψ est simplement l'équation de Gross-Pitaevskiï à l'approximation de Born :

$$i\hbar \frac{d}{dt} \Psi(\mathbf{x}) = \left(H_x + \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{x} - \mathbf{z}) |\Psi(\mathbf{z})|^2 \right) \Psi(\mathbf{x}) \quad (3.49)$$

⁷Les auteurs ont en outre utilisé une prescription de Bogolioubov ne brisant pas la symétrie $U(1)$, donc conservant exactement le nombre de particules. Nous nous contenterons pour notre part d'utiliser la prescription classique (brisant la symétrie) afin de ne pas alourdir les calculs.

où Ψ est ici normalisé au nombre d'atomes condensé N_0 . On en déduit l'équation d'évolution de $\hat{\theta} = \hat{\psi} - \Psi$ à l'ordre 1 :

$$i\hbar \frac{d}{dt} \hat{\theta}(\mathbf{x}) = H_x \hat{\theta}(\mathbf{x}) + \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{x} - \mathbf{z}) \left(\hat{\theta}^\dagger(\mathbf{z}) \Psi(\mathbf{z}) \Psi(\mathbf{x}) + \Psi^*(\mathbf{z}) \hat{\theta}(\mathbf{z}) \Psi(\mathbf{x}) + \Psi^*(\mathbf{z}) \Psi(\mathbf{z}) \hat{\theta}(\mathbf{x}) \right) \quad (3.50)$$

C'est une équation linéaire en $\hat{\theta}$ et $\hat{\theta}^\dagger$, qu'on peut écrire sous forme matricielle :

$$i\hbar \frac{d}{dt} \begin{bmatrix} \hat{\theta}(\mathbf{x}, t) \\ \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{x}, t) \end{bmatrix} = \int d^3\mathbf{y} \begin{bmatrix} \mathcal{L}_1(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) & \mathcal{L}_2(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) \\ -\mathcal{L}_2^*(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) & -\mathcal{L}_1^*(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \hat{\theta}(\mathbf{y}, t) \\ \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{y}, t) \end{bmatrix} \quad (3.51)$$

Avec les éléments suivants :

$$\begin{aligned} \mathcal{L}_1(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) &= \delta^3(\mathbf{x} - \mathbf{y}) \left(H_y + \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{y} - \mathbf{z}) |\Psi(\mathbf{z}, t)|^2 \right) + U(\mathbf{x} - \mathbf{y}) \Psi^*(\mathbf{y}, t) \Psi(\mathbf{x}, t) \\ \mathcal{L}_2(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) &= U(\mathbf{x} - \mathbf{y}) \Psi(\mathbf{y}, t) \Psi(\mathbf{x}, t) \end{aligned}$$

Diagonalisation à $t=0$

Pour simplifier l'équation (3.51), on commence par diagonaliser l'opérateur (non hermitique) $\mathcal{L} \equiv \begin{bmatrix} \mathcal{L}_1 & \mathcal{L}_2 \\ -\mathcal{L}_2^* & -\mathcal{L}_1^* \end{bmatrix}$ à l'instant initial $t = 0$. Cet opérateur agit dans un espace de fonctions d'onde à deux composantes (et par généralisation dans un espace d'opérateurs à deux composantes). Notons $\begin{bmatrix} |u_i^0\rangle \\ |v_i^0\rangle \end{bmatrix}$ le vecteur propre à droite de $\mathcal{L}(t=0)$ associé à la valeur propre E_i :

$$\int d^3\mathbf{y} \begin{bmatrix} \mathcal{L}_1(\mathbf{x}, \mathbf{y}, 0) & \mathcal{L}_2(\mathbf{x}, \mathbf{y}, 0) \\ -\mathcal{L}_2^*(\mathbf{x}, \mathbf{y}, 0) & -\mathcal{L}_1^*(\mathbf{x}, \mathbf{y}, 0) \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} |u_i^0(\mathbf{y})\rangle \\ |v_i^0(\mathbf{y})\rangle \end{bmatrix} = E_i \begin{bmatrix} |u_i^0(\mathbf{y})\rangle \\ |v_i^0(\mathbf{y})\rangle \end{bmatrix}$$

On peut vérifier que $[\langle u_i^0 |, -\langle v_i^0 |]$ est un vecteur à gauche de \mathcal{L} associé à la même valeur propre E_i .

On choisit alors de normaliser les vecteurs de telle sorte qu'on ait les relations d'orthogonalité suivantes entre vecteurs à gauche et à droite :

$$[\langle u_i^0 |, -\langle v_i^0 |] \cdot \begin{bmatrix} |u_j^0\rangle \\ |v_j^0\rangle \end{bmatrix} = \langle u_i^0 | u_j^0 \rangle - \langle v_i^0 | v_j^0 \rangle = \delta_{ij} \quad (3.52)$$

$$[\langle u_i^0 |, -\langle v_i^0 |] \cdot \begin{bmatrix} |u_j^0\rangle \\ |v_j^0\rangle \end{bmatrix}^* = \langle u_i^0 | u_j^{0*} \rangle - \langle v_i^0 | v_j^{0*} \rangle = 0 \quad (3.53)$$

Par ailleurs, on a $\langle u_i^0 | \Psi(t=0) \rangle = 0$ et $\langle v_i^0 | \Psi(t=0) \rangle = 0$, si bien que les vecteurs propres à droite génèrent le sous-espace des fonctions d'onde à deux composantes *orthogonales* à $\Psi(t=0)$ (c'est-à-dire *non-condensées*). Dans ce sous-espace, on a la relation de fermeture :

$$1 = \sum \begin{bmatrix} |u_j^0\rangle \\ |v_j^0\rangle \end{bmatrix} \times [\langle u_i^0 |, -\langle v_i^0 |]_i$$

Cela permet d'écrire \mathcal{L} sous la forme diagonale :

$$\mathcal{L}(t=0) = \sum_i E_i \begin{bmatrix} |u_i^0\rangle \\ |v_i^0\rangle \end{bmatrix} \times [\langle u_i^0 |, -\langle v_i^0 |]$$

Par ailleurs, on peut vérifier que le vecteur $\begin{bmatrix} |u_i^0\rangle \\ |v_i^0\rangle \end{bmatrix}^*$ est un vecteur propre à droite de \mathcal{L} associé à la valeur propre $-E_i^*$. Cette symétrie permet d'écrire la décomposition en ne sommant que sur

la moitié des valeurs propres. On choisit l'ensemble des valeurs propres de partie réelle positive, et on les numérote de 1 à ∞ :

$$\mathcal{L}(t=0) = \sum_{i=1}^{\infty} \left\{ E_i \begin{bmatrix} |u_i^0\rangle \\ |v_i^0\rangle \end{bmatrix} \times [\langle u_i^0 |, -\langle v_i^0 |] - E_i^* \begin{bmatrix} |v_i^0\rangle \\ |u_i^0\rangle \end{bmatrix} \times [-\langle v_i^0 |, \langle u_i^0 |]^* \right\} \quad (3.54)$$

De même, la relation de fermeture s'écrit :

$$1 = \sum_{i=1}^{\infty} \left\{ \begin{bmatrix} |u_i^0\rangle \\ |v_i^0\rangle \end{bmatrix} \times [\langle u_i^0 |, -\langle v_i^0 |] + \begin{bmatrix} |v_i^0\rangle \\ |u_i^0\rangle \end{bmatrix} \times [-\langle v_i^0 |, \langle u_i^0 |]^* \right\} \quad (3.55)$$

En multipliant cette relation de fermeture par un vecteur quelconque de la forme $\begin{bmatrix} |\varphi\rangle \\ |0\rangle \end{bmatrix}$ (où $|\varphi\rangle$ est orthogonal à Ψ), on obtient les relations :

$$\sum_{i=1}^{\infty} [|u_i^0\rangle \langle u_i^0 | - |v_i^{0*}\rangle \langle v_i^{0*} |] = 1 \quad (3.56)$$

$$\sum_{i=1}^{\infty} [|v_i^0\rangle \langle u_i^0 | - |u_i^{0*}\rangle \langle v_i^{0*} |] = 0 \quad (3.57)$$

Transformation de Bogolioubov

On définit maintenant les vecteurs $\begin{bmatrix} |u_i(t)\rangle \\ |v_i(t)\rangle \end{bmatrix}$ mobiles (dépendants du temps), par les équations :

$$i\hbar \frac{d}{dt} \begin{bmatrix} |u_i(t)\rangle \\ |v_i(t)\rangle \end{bmatrix} = \mathcal{L} \begin{bmatrix} |u_i(t)\rangle \\ |v_i(t)\rangle \end{bmatrix} \quad (3.58)$$

avec les conditions initiales : $|u_i(t=0)\rangle = |u_i^0\rangle$ et $|v_i(t=0)\rangle = |v_i^0\rangle$. Ces vecteurs sont donc initialement vecteurs propres à droite de \mathcal{L} . Si \mathcal{L} est indépendant du temps, ils resteront vecteurs propres avec un facteur de phase oscillant correspondant à l'énergie propre. Si \mathcal{L} dépend du temps (par l'intermédiaire du piège externe V , de l'interaction U ou de la fonction du condensat Ψ), ils ne demeureront plus vecteurs propres à droite. Néanmoins, on montre [Castin1998] que dans tous les cas ces vecteurs mobiles continuent à former à chaque instant une base du sous-espace des fonctions à deux composantes non-condensées, et conservent leurs propriétés d'orthogonalité (3.52-3.53) et de fermeture (3.56-3.57) au cours du temps :

$$\int d^3\mathbf{z} [u_i^*(\mathbf{z}, t)u_j(\mathbf{z}, t) - v_i^*(\mathbf{z}, t)v_j(\mathbf{z}, t)] = \delta_{ij} \quad (3.59)$$

$$\int d^3\mathbf{z} [u_i(\mathbf{z}, t)v_j(\mathbf{z}, t) - u_j(\mathbf{z}, t)v_i(\mathbf{z}, t)] = 0 \quad (3.60)$$

$$\sum_{i=1}^{\infty} [u_i(\mathbf{x}, t)u_i^*(\mathbf{y}, t) - v_i(\mathbf{y}, t)v_i^*(\mathbf{x}, t)] = \delta^3(\mathbf{x} - \mathbf{y}) \quad (3.61)$$

$$\sum_{i=1}^{\infty} [u_i(\mathbf{x}, t)v_i^*(\mathbf{y}, t) - u_i(\mathbf{y}, t)v_i^*(\mathbf{x}, t)] = 0 \quad (3.62)$$

Par conséquent, $\hat{\theta}$ étant par définition orthogonal à la fonction d'onde du condensat Ψ , on peut l'exprimer à chaque instant sur la base mobile des $|u_i\rangle$ et $|v_i\rangle$ de la manière suivante :

$$\begin{bmatrix} \hat{\theta}(\mathbf{x}, t) \\ \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{x}, t) \end{bmatrix} = \sum_{i=1}^{\infty} \hat{b}_i \begin{bmatrix} u_i(\mathbf{x}, t) \\ v_i(\mathbf{x}, t) \end{bmatrix} + \hat{b}_i^\dagger \begin{bmatrix} v_i^*(\mathbf{x}, t) \\ u_i^*(\mathbf{x}, t) \end{bmatrix} \quad (3.63)$$

Cette décomposition définit la transformation dite *de Bogolioubov*. La transformation inverse est donnée par :

$$\begin{bmatrix} \hat{b}_i \\ \hat{b}_i^\dagger \end{bmatrix} = \int d^3\mathbf{x} \left(\hat{\theta}(\mathbf{x}, t) \begin{bmatrix} u_i^*(\mathbf{x}, t) \\ -v_i(\mathbf{x}, t) \end{bmatrix} + \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{x}, t) \begin{bmatrix} -v_i^*(\mathbf{x}, t) \\ u_i(\mathbf{x}, t) \end{bmatrix} \right) \quad (3.64)$$

On vérifie à partir de (3.51) et (3.58) que les coefficients \hat{b}_i sont indépendants du temps. La transformation de Bogolioubov permet donc de rejeter les dépendances spatiale et temporelle sur les modes u_i et v_i (qui sont des fonctions classiques) et de ne plus avoir d'équations sur des opérateurs. Par ailleurs, en utilisant les propriétés (3.52) et (3.53), on montre que les \hat{b}_i vérifient les relations de commutation canoniques :

$$\begin{aligned} [\hat{b}_i, \hat{b}_j^\dagger] &= \delta_{ij} \\ [\hat{b}_i, \hat{b}_j] &= 0 \end{aligned}$$

de telle sorte que l'on peut les interpréter comme des opérateurs d'annihilation et de création de particules qu'on appelle *quasi-particules*. La transformation (3.64) montre que créer une quasi-particule dans le mode i consiste à annihiler une particule non-condensée dans le mode v_i et créer une particule non-condensée dans le mode u_i . L'intérêt essentiel d'introduire ces quasi-particules réside dans le fait qu'*elles forment un gaz parfait*, puisqu'il n'y a pas de dépendance temporelle des opérateurs \hat{b}_i . Le calcul de Bogolioubov (à l'ordre 1) permet donc de passer du problème d'un gaz de particules en faible interaction au problème d'un gaz de quasi-particules sans interaction.

3.2.2.2 Diagonalisation de l'hamiltonien

L'hamiltonien du système (3.13) s'écrit :

$$\hat{H} = \int d^3\mathbf{x} \hat{\psi}(\mathbf{x}, t) H_x \hat{\psi}(\mathbf{x}, t) + \int d^3\mathbf{x} d^3\mathbf{y} \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{x}, t) \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{y}, t) U(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \hat{\psi}(\mathbf{y}, t) \hat{\psi}(\mathbf{x}, t)$$

On applique la prescription de Bogolioubov et on développe cet hamiltonien en $\hat{\theta}$. Pour obtenir le même niveau d'approximation que précédemment, il faut développer l'hamiltonien jusqu'à un ordre deux fois supérieur à celui utilisé pour développer l'équation d'évolution. À l'ordre 2, on peut mettre l'hamiltonien sous la forme :

$$\begin{aligned} \hat{H} &= E_0^{(HF)}[\Psi] && \text{Ordre 0} \\ &+ \int d^3\mathbf{x} \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{x}) \left(H_x + \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{x}-\mathbf{z}) |\Psi(\mathbf{z})|^2 \right) \Psi(\mathbf{x}) + h.c. && \text{Ordre 1} \\ &+ \frac{1}{2} \int d^3\mathbf{x} d^3\mathbf{y} U(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \begin{pmatrix} \Psi^*(\mathbf{x}) \Psi^*(\mathbf{y}) \hat{\theta}(\mathbf{x}) \hat{\theta}(\mathbf{y}) + h.c. \\ \Psi^*(\mathbf{y}) \Psi(\mathbf{y}) \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{x}) \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{y}) + h.c. \\ \Psi^*(\mathbf{y}) \Psi(\mathbf{x}) \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{x}) \hat{\theta}(\mathbf{y}) + h.c. \end{pmatrix} + \int d^3\mathbf{x} \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{x}) H_x \hat{\theta}(\mathbf{x}) && \text{Ordre 2} \end{aligned}$$

où $E_0^{(HF)}$ est l'énergie d'Hartree-Fock (3.43), c'est-à-dire la fonctionnelle de Gross-Pitaevskiï à l'approximation de Born.

Considérons maintenant un système initialement à l'équilibre. La fonction d'onde du condensat peut alors être choisie réelle et satisfait à l'équation de Gross-Pitaevskiï indépendante du temps à l'approximation de Born :

$$\left(H_x + \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{x}-\mathbf{z}) |\Psi(\mathbf{z})|^2 \right) \Psi(\mathbf{x}) = \mu \Psi(\mathbf{x})$$

si bien que le terme d'ordre 1 disparaît de l'hamiltonien (par orthogonalité de $\hat{\theta}$ et Ψ). Si l'on réexprime le terme d'ordre 2 en fonction de la matrice \mathcal{L} , on obtient :

$$\hat{H} = E_0^{(HF)}[\Psi] + \frac{1}{2} \int d^3x d^3y \left[\hat{\theta}^\dagger(\mathbf{x}, 0), -\hat{\theta}(\mathbf{x}, 0) \right] \begin{bmatrix} \mathcal{L}_1(\mathbf{x}, \mathbf{y}, 0) & \mathcal{L}_2(\mathbf{x}, \mathbf{y}, 0) \\ -\mathcal{L}_2^*(\mathbf{x}, \mathbf{y}, 0) & -\mathcal{L}_1^*(\mathbf{x}, \mathbf{y}, 0) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \hat{\theta}(\mathbf{y}, 0) \\ \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{y}, 0) \end{bmatrix} - \frac{1}{2} \text{Trace}(\mathcal{L}_1)$$

Comme $\hat{\theta}$ et $\hat{\theta}^\dagger$ ne commutent pas, cette mise en forme matricielle fait apparaître un terme résiduel qu'on identifie à la trace de \mathcal{L}_1 . Cette trace est définie comme la somme de toutes les valeurs propres de l'opérateur \mathcal{L}_1 , qu'on peut écrire formellement comme la somme sur toutes les valeurs diagonales de \mathcal{L}_1 :

$$\text{Trace}(\mathcal{L}_1) = \int d^3x d^3y \delta^3(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \mathcal{L}_1(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t=0)$$

Diagonalisons maintenant l'expression matricielle en effectuant la transformation vers la base des quasi-particules. Le résultat peut s'écrire :

$$\hat{H} = E_0 + \sum_{i=1}^{\infty} E_i \hat{b}_i^\dagger \hat{b}_i \quad (3.65)$$

Cet hamiltonien correspond à un système libre, confirmant le fait que les quasi-particules forment un gaz sans interaction. La quantité $\hat{b}_i^\dagger \hat{b}_i$ correspond au nombre de quasi-particules dans le mode i , donc les quasi-particules s'interprètent comme des excitations élémentaires du gaz, avec un spectre d'excitation donné par les énergie E_i . Le gaz est dans son état fondamental quand il n'y a aucune quasi-particule (le vide de quasi-particule) et l'énergie fondamentale E_0 donnée par :

$$E_0 = E_0^{(HF)}[\Psi] + \frac{1}{2} \sum_{i=1}^{\infty} E_i - \frac{1}{2} \text{Trace}(\mathcal{L}_1)$$

Ici encore, comme \hat{b}_i et \hat{b}_i^\dagger ne commutent pas, la transformation de Bogolioubov génère le terme résiduel $\frac{1}{2} \sum_{i=1}^{\infty} E_i$. En utilisant le fait que $\begin{bmatrix} u_i^0 \\ v_i^0 \end{bmatrix}$ est vecteur propre de \mathcal{L} , on peut montrer la relation $\frac{1}{2} \text{Trace}(\mathcal{L}_1) = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^{\infty} E_i + \sum_{i=1}^{\infty} E_i \langle v_i^0 | v_i^0 \rangle$, si bien que l'énergie fondamentale de Bogolioubov s'écrit :

$$E_0 = E_0^{(HF)}[\Psi] - \sum_{i=1}^{\infty} E_i \langle v_i^0 | v_i^0 \rangle \quad (3.66)$$

Cette relation montre clairement que l'énergie fondamentale de Bogolioubov est inférieure à celle de Hartree-Fock. Ceci est tout-à-fait naturel, car la méthode de Bogolioubov est plus élaborée, et cherche donc l'état d'énergie minimale dans un sous-espace plus riche que celui de Hartree-Fock.

À l'équilibre à température non-nulle, les quasi-particules occupent les différents modes selon la distribution statistique d'un gaz de Bose parfait à l'équilibre thermique :

$$\langle \hat{b}_i^\dagger \hat{b}_i \rangle = M_i = \frac{1}{e^{E_i/k_B T} - 1}$$

Les \hat{b}_i étant constants au cours de l'évolution, la distribution thermique M_i des quasi-particules est conservée. En revanche la distribution thermique des vraies particules peuvent

être amenées à évoluer dans le temps. En effet, les quantités $R'(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) = \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{x}, t) \hat{\theta}(\mathbf{y}, t) \rangle$ et $\Phi'(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) = \langle \hat{\theta}(\mathbf{x}, t) \hat{\theta}(\mathbf{y}, t) \rangle$ vérifient les relations :

$$\Phi'(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) = \sum_{i=1}^{\infty} M_i \left(v_i^*(\mathbf{x}, t) u_i(\mathbf{y}, t) + u_i(\mathbf{x}, t) v_i^*(\mathbf{y}, t) \right) + \sum_{i=1}^{\infty} u_i(\mathbf{x}, t) v_i^*(\mathbf{y}, t) \quad (3.67)$$

$$R'(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) = \sum_{i=1}^{\infty} M_i \left(u_i^*(\mathbf{x}, t) u_i(\mathbf{y}, t) + v_i(\mathbf{x}, t) v_i^*(\mathbf{y}, t) \right) + \sum_{i=1}^{\infty} v_i(\mathbf{x}, t) v_i^*(\mathbf{y}, t) \quad (3.68)$$

qu'on obtient à partir de la transformation de Bogolioubov (3.63) et en supposant qu'on a $\langle \hat{b}_i^\dagger \hat{b}_j \rangle = M_i \delta_{ij}$ et $\langle \hat{b}_i \hat{b}_j \rangle = 0$. Les quantités R' et Φ' peuvent donc évoluer du fait de la variation temporelle des modes u_i et v_i .

3.2.2.3 Relation entre modes non-condensés et corrélation de paire

Il découle des équations (3.67) et (3.68) la relation suivante :

$$R'(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) + \int d^3 \mathbf{z} R'(\mathbf{z}, \mathbf{x}, t)^* R'(\mathbf{z}, \mathbf{y}, t) = \int d^3 \mathbf{z} \Phi'(\mathbf{z}, \mathbf{x}, t)^* \Phi'(\mathbf{z}, \mathbf{y}, t) + \sum_{i=1}^{\infty} M_i (M_i + 1) \left(u_i^*(\mathbf{x}, t) u_i(\mathbf{y}, t) - v_i^*(\mathbf{x}, t) v_i(\mathbf{y}, t) \right) \quad (3.69)$$

On peut exprimer les quantités R' et Φ' dans la base des fonctions d'onde à un corps (voir les relations (3.9) et (3.17)) :

$$R'(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) = \sum_{i \neq 0}^{\infty} \langle \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_j \rangle(t) \psi_i^*(\mathbf{x}, t) \psi_i(\mathbf{y}, t) \quad (3.70)$$

$$\Phi'(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) = \sum_{i, j \neq 0}^{\infty} \langle \hat{a}_i \hat{a}_j \rangle(t) \psi_i(\mathbf{x}, t) \psi_j(\mathbf{y}, t)$$

où $\langle \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i \rangle = N_i$ est la distribution des particules sur les modes non-condensés, et $\langle \hat{a}_i \hat{a}_j \rangle$ décrit les contributions des modes non-condensés à la corrélation de paire Φ' . En projetant la relation (3.69) sur la base des fonctions d'onde à un corps, on obtient :

$$N_i(N_i + 1) = \underbrace{\sum_{j \neq 0}^{\infty} |\langle \hat{a}_i \hat{a}_j \rangle|^2}_{\text{contribution des corrélations}} + \underbrace{\sum_{k=1}^{\infty} M_k (M_k + 1) \left(|\langle \psi_i | u_k \rangle|^2 - |\langle \psi_i | v_k \rangle|^2 \right)}_{\text{contribution thermique}} \quad (3.71)$$

où $\langle u_k | \psi_i \rangle = \int d^3 \mathbf{x} u_k^*(\mathbf{x}) \psi_i(\mathbf{x})$, etc. Cette relation est importante car elle exprime (à tout instant) l'origine des modes non-condensés. Une partie de la population des modes non-condensés est d'origine thermique, et la partie restante est due aux corrélations de paire. On parle de *dépeuplement thermique* et *dépeuplement quantique*⁸ du condensat. Par conséquent, même à température nulle ($M_k = 0$), tous les atomes ne sont pas condensés à cause des corrélations entre atomes dues à l'interaction :

$$N_i(N_i + 1) \Big|_{T=0} = \sum_{j \neq 0}^{\infty} |\langle \hat{a}_i \hat{a}_j \rangle|^2 \geq 0$$

⁸Le terme « quantique » n'est probablement pas le plus adapté. On pourrait également parler de *dépeuplement collisionnel*.

Au passage, cette relation garantit que les nombres moyens d'occupation N_i restent nécessairement positifs, quelle que soit l'évolution de la corrélation, c'est-à-dire quelles que soient les interactions entre atomes.

Par ailleurs, en sommant la relation (3.71), on obtient :

$$\sum_{i=1}^{\infty} N_i(N_i + 1) = \sum_{i,j=1}^{\infty} |\langle \hat{a}_i \hat{a}_j \rangle|^2 + \sum_{k=1}^{\infty} M_k(M_k + 1) \quad (3.72)$$

3.2.2.4 Structure des équations dynamiques des moyennes

L'approche de Bogolioubov ne retient que les termes de l'hamiltonien ayant au plus deux opérateurs $\hat{\theta}$. Par conséquent, l'énergie moyenne, ainsi que certaines autres quantités physiques d'intérêt, ne dépendent que des moyennes Ψ , $\Phi' = \langle \hat{\theta} \hat{\theta} \rangle$ et $R' = \langle \hat{\theta}^\dagger \hat{\theta} \rangle$. On a déjà vu comment ces deux dernières quantités dépendent du temps à travers les vecteurs mobiles u_i et v_i (relations (3.67) et (3.68)). Il est instructif d'écrire explicitement les équations dynamiques pour Ψ , Φ' et R' afin de les rattacher au schéma général (3.34-3.37-3.38). Cela nous permettra de mieux appréhender la généralisation des équations de Bogolioubov dans les chapitres suivants.

En utilisant les équations (3.49) et (3.50), on trouve :

$$i\hbar \frac{d\Psi}{dt}(\mathbf{x}) = (H_x + M(\mathbf{x}))\Psi(\mathbf{x}) \quad (3.73)$$

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{d\Phi'}{dt}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) &= (H_y + M(\mathbf{y}) + H_x + M(\mathbf{x}))\Phi'(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + U(\mathbf{x}-\mathbf{y})\Psi(\mathbf{x})\Psi(\mathbf{y}) \leftarrow F3 \\ &+ \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{y}-\mathbf{z})\Psi^*(\mathbf{z})\Psi(\mathbf{y})\Phi'(\mathbf{x}, \mathbf{z}) + \{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\} \leftarrow F2 \\ &+ \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{y}-\mathbf{z})\Psi(\mathbf{z})\Psi(\mathbf{y})R'(\mathbf{z}, \mathbf{x}) + \{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\} \leftarrow F1 \end{aligned} \quad (3.74)$$

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{dR'}{dt}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) &= (H_y + M(\mathbf{y}) - H_x - M(\mathbf{x}))R'(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \leftarrow G3 \\ &+ \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{y}-\mathbf{z})\Psi^*(\mathbf{z})\Psi(\mathbf{y})R'(\mathbf{x}, \mathbf{z}) - \{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\}^* \leftarrow G2 \\ &+ \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{y}-\mathbf{z})\Psi(\mathbf{z})\Psi(\mathbf{y})\Phi'^*(\mathbf{z}, \mathbf{x}) - \{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\}^* \leftarrow G1 \end{aligned} \quad (3.75)$$

avec le potentiel de champ moyen $M(\mathbf{x}) = \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{x}-\mathbf{z}) |\Psi(\mathbf{z})|^2$.

En comparant avec les équations exactes (3.34-3.37-3.38), on voit que les équations dynamiques de Bogolioubov correspondent aux approximations suivantes :

<i>Approximations de Bogolioubov</i>			
$K(\mathbf{z}, \mathbf{z}, \mathbf{x})$	$\approx \Psi^*(\mathbf{z})\Psi(\mathbf{z})\Psi(\mathbf{x})$		(a)
$\Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y})$	$\approx \Psi(\mathbf{x})\Psi(\mathbf{y})$	dans le second membre de (3.37)	(b)
$F'(\mathbf{w}, \mathbf{z}, \mathbf{x}, \mathbf{y})$	$\approx \underbrace{\Psi(\mathbf{z})\Psi(\mathbf{y})R'(\mathbf{w}, \mathbf{x})}_{F1} + \underbrace{\Psi^*(\mathbf{w})\Psi(\mathbf{y})\Phi'(\mathbf{x}, \mathbf{z})}_{F2} + \underbrace{\Psi^*(\mathbf{w})\Psi(\mathbf{z})\Phi'(\mathbf{x}, \mathbf{y})}_{F3}$		(c)
$G'(\mathbf{x}, \mathbf{w}, \mathbf{z}, \mathbf{y})$	$\approx \underbrace{\Psi(\mathbf{z})\Psi(\mathbf{y})\Phi'^*(\mathbf{w}, \mathbf{x})}_{G1} + \underbrace{\Psi^*(\mathbf{w})\Psi(\mathbf{y})R'(\mathbf{x}, \mathbf{z})}_{G2} + \underbrace{\Psi^*(\mathbf{w})\Psi(\mathbf{z})R'(\mathbf{x}, \mathbf{y})}_{G3}$		(d)

(3.76)

Dans les équations (3.74-3.75), on a indiqué pour chaque ligne quelle partie de F' ou G' apporte une contribution. Par exemple, les potentiels de champs-moyen M sont issus des contributions $F3$ et $G3$.

On constate que les approximations ci-dessus peuvent être obtenues de la manière suivante :

- appliquer la prescription de Bogolioubov $\hat{\psi} = \Psi + \hat{\theta}$ aux quantités Φ , K , F' et G'
- développer tous les termes
- négliger les termes ayant plus d'un $\hat{\theta}$ pour les quantités Φ et K
- négliger les termes ayant plus de deux $\hat{\theta}$ pour les quantités F' et G'

L'ensemble d'équations dynamiques obtenu n'est pas complètement cohérent car certaines quantités sont évaluées à l'ordre 2 en $\hat{\theta}$, alors que d'autres sont évaluées à l'ordre 1. On pouvait le prévoir puisque les équations sur Φ' et R' ont été obtenues en considérant le produit de deux opérateurs $\hat{\theta}$ dont l'équation dynamique a été calculée à l'ordre 1. On obtient donc des termes d'ordre 1 et 2 pour ces équations, alors que l'équation sur Ψ n'a été calculée qu'à l'ordre 1. Ceci a des conséquences fâcheuses, comme le fait que les équations dynamiques (3.73-3.75) ne conservent pas le nombre moyen de particules ! Pour être plus cohérent, il faudrait calculer l'équation sur Ψ à l'ordre 2. Nous présenterons un système d'équations plus cohérent vis-à-vis des ordres en $\hat{\theta}$ dans la partie suivante décrivant l'approche de Hartree-Fock-Bogolioubov. Il est néanmoins instructif pour la suite d'analyser en détail comment se construit la relation (3.71) à travers les équations d'évolution (3.74-3.75). Posons $S(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = \int d^3\mathbf{z} \Phi'^*(\mathbf{z}, \mathbf{x}) \Phi'(\mathbf{z}, \mathbf{y})$ et $\Gamma(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = R'(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + \int d^3\mathbf{z} R'^*(\mathbf{z}, \mathbf{x}) R'(\mathbf{z}, \mathbf{y})$. On obtient les équations de S et Γ à partir des équations (3.74-3.75) :

$$\begin{aligned}
 i\hbar \frac{dS}{dt}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) &= \left(H_y + M(\mathbf{y}) - H_x - M(\mathbf{x}) \right) S(\mathbf{x}, \mathbf{y}) && \leftarrow F3 \\
 &+ \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{y}-\mathbf{z}) \Psi(\mathbf{z}) \Psi(\mathbf{y}) \Phi'^*(\mathbf{x}, \mathbf{z}) - \{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\}^* && \\
 &+ \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{y}-\mathbf{z}) \Psi^*(\mathbf{z}) \Psi(\mathbf{y}) S(\mathbf{x}, \mathbf{z}) - \{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\}^* && \leftarrow F2 \\
 &+ \int d^3\mathbf{z} d^3\mathbf{w} U(\mathbf{w}-\mathbf{z}) \Psi(\mathbf{w}) \Psi(\mathbf{z}) \Phi'^*(\mathbf{w}, \mathbf{x}) R'(\mathbf{z}, \mathbf{y}) - \{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\}^* && \leftarrow F1 \\
 &+ \int d^3\mathbf{z} d^3\mathbf{w} U(\mathbf{w}-\mathbf{y}) \Psi(\mathbf{w}) \Psi(\mathbf{y}) \Phi'^*(\mathbf{x}, \mathbf{z}) R'(\mathbf{w}, \mathbf{z}) - \{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\}^* && \leftarrow F1
 \end{aligned} \tag{3.77}$$

et

$$\begin{aligned}
 i\hbar \frac{d\Gamma}{dt}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) &= \left(H_y + M(\mathbf{y}) - H_x - M(\mathbf{x}) \right) \Gamma(\mathbf{x}, \mathbf{y}) && \leftarrow G3 \\
 &+ \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{y}-\mathbf{z}) \Psi(\mathbf{z}) \Psi(\mathbf{y}) \Phi'^*(\mathbf{x}, \mathbf{z}) - \{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\}^* && \leftarrow G1 \\
 &+ \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{y}-\mathbf{z}) \Psi^*(\mathbf{z}) \Psi(\mathbf{y}) \Gamma(\mathbf{x}, \mathbf{z}) - \{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\}^* && \leftarrow G2 \\
 &+ \int d^3\mathbf{z} d^3\mathbf{w} U(\mathbf{w}-\mathbf{z}) \Psi(\mathbf{w}) \Psi(\mathbf{z}) \Phi'^*(\mathbf{w}, \mathbf{x}) R'(\mathbf{z}, \mathbf{y}) - \{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\}^* && \leftarrow G1 \\
 &+ \int d^3\mathbf{z} d^3\mathbf{w} U(\mathbf{w}-\mathbf{y}) \Psi(\mathbf{w}) \Psi(\mathbf{y}) \Phi'^*(\mathbf{w}, \mathbf{z}) R'(\mathbf{x}, \mathbf{z}) - \{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\}^* && \leftarrow G1
 \end{aligned} \tag{3.78}$$

Ces équations ne diffèrent que par la dernière ligne (il faudrait pouvoir échanger \mathbf{x} et \mathbf{w} dans ces lignes pour pouvoir les identifier). À température nulle, ces lignes deviennent identiques car on a $\int d^3\mathbf{z} \Phi'^*(\mathbf{x}, \mathbf{z}) R'(\mathbf{w}, \mathbf{z}) = \int d^3\mathbf{z} \Phi'^*(\mathbf{w}, \mathbf{z}) R'(\mathbf{x}, \mathbf{z})$, comme on peut le vérifier à partir des équations (3.67-3.68) prises à $T = 0$. On peut alors identifier S et Γ , conformément à la relation (3.69) :

$$R'(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + \int d^3\mathbf{z} R'^*(\mathbf{z}, \mathbf{x}) R'(\mathbf{z}, \mathbf{y}) \stackrel{T=0}{=} \int d^3\mathbf{z} \Phi'^*(\mathbf{z}, \mathbf{x}) \Phi'(\mathbf{z}, \mathbf{y}) \tag{3.79}$$

$$ie \quad N_i(N_i + 1) \stackrel{T=0}{=} \sum_{j \neq 0}^{\infty} |\langle \hat{a}_i \hat{a}_j \rangle|^2 \tag{3.80}$$

À température non-nulle, l'identification entre S et Γ n'est qu'approximative. Néanmoins, en identifiant \mathbf{x} et \mathbf{y} dans (3.77) et (3.78) et en intégrant sur \mathbf{x} on obtient :

$$\begin{aligned}
 \int d^3\mathbf{x} \left(R'(\mathbf{x}, \mathbf{x}) \int d^3\mathbf{z} |R'(\mathbf{x}, \mathbf{z})|^2 \right) &= \int d^3\mathbf{x} d^3\mathbf{z} |\Phi'(\mathbf{x}, \mathbf{z})|^2 + \text{cste} \\
 ie \quad \sum_{i \neq 0} N_i(N_i + 1) &= \sum_{i, j \neq 0}^{\infty} |\langle \hat{a}_i \hat{a}_j \rangle|^2 + \text{cste}
 \end{aligned}$$

conformément à l'équation (3.72).

En comparant les différentes contributions aux équations (3.77) et (3.78), on voit que la présence de la seconde ligne de l'équation (3.77) impose de tenir compte de la contribution $G1$ pour obtenir la seconde ligne de l'équation (3.78). Par ailleurs, on constate que les contributions $F3$ et $G3$ conduisent aux champs moyens de la première ligne des équations (3.77) et (3.78), alors que les contributions $F1$ et $G1$ conduisent aux deux dernières lignes. Ces indications sur la structure des équations nous seront utiles lorsque nous généraliserons ces équations par la suite.

Plaçons-nous maintenant dans le cas-limite d'un condensat presque pur, où les modes non-condensés sont faiblement peuplés en moyenne ($N_i \ll 1$). On peut alors négliger l'influence des modes non-condensés lors de la collision de deux atomes du condensat. Cela revient à négliger la contribution $F1$ (dernière ligne de l'équation (3.74) sur Φ'). Dans ce cas, on peut aussi négliger les deux dernières lignes provenant de $F1$ dans l'équation (3.77) sur S . Privée de ces deux dernières lignes, cette équation est formellement identique à l'équation (3.75) portant sur R' . Cela signifie qu'on a :

$$R'(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \underset{T=0}{=} \int d^3\mathbf{z} \Phi'^*(\mathbf{z}, \mathbf{x}) \Phi'(\mathbf{z}, \mathbf{y}) \quad (3.81)$$

$$ie \quad N_i \underset{T=0}{=} \sum_{j \neq 0}^{\infty} |\langle \hat{a}_i \hat{a}_j \rangle|^2 \quad (3.82)$$

Ces relations correspondent aux relations (3.79-3.80) dans la limite $N_i \ll 1$. Elles restent vraies même pour un condensat plus fortement dépeuplé, à condition de ne s'intéresser qu'à la population de modes non-condensés suffisamment « excités ». On s'attend en effet à ce que la distribution des modes condensés tende vers zéro pour les modes de plus en plus « excités », c'est-à-dire que $N_i \ll 1$ pour $i \gg 1$. La relation (3.82) est donc une bonne approximation de (3.80) pour i suffisamment grand. Lorsque l'on décompose les quantités Φ' et R' dans la base des modes non-condensés, on s'attend à ce que les modes « excités » correspondent aux variations à petite échelle (de manière similaire aux modes d'une transformation de Fourier). La relation (3.81) n'est donc valable en général que pour les courtes distances ($\mathbf{x} \sim \mathbf{y}$) et il faut limiter l'intégrale aux valeurs de $\mathbf{z} \sim \mathbf{x} \sim \mathbf{y}$. Les distances typiques à considérer doivent être de l'ordre de la longueur de relaxation ξ (3.4).

3.2.2.5 Cas particulier : système uniforme dans l'état fondamental

On peut donner des expressions analytiques pour les différentes quantités considérées plus haut ($u_i, v_i, E_i, E_0...$) dans le cas particulier d'un système uniforme. Le système étant alors invariant par translation, on se place en représentation impulsion, le vecteur-impulsion \mathbf{k} se substituant à l'indice i pour indiquer les quantités. Ce faisant, on suppose implicitement que le potentiel U possède une transformée de Fourier \tilde{U} (on exclut donc *de facto* les potentiels singuliers).

Expressions diverses

Les quantités $\Phi'(\mathbf{x}, \mathbf{y})$ et $R'(\mathbf{x}, \mathbf{y})$ sont maintenant invariantes par translation, et ne dépendent plus que de la position relative $\mathbf{r} = \mathbf{x} - \mathbf{y}$. On peut les noter $\Phi'(\mathbf{r})$ et $R'(\mathbf{r})$, et leur transformées de Fourier respectives $\tilde{\Phi}'(\mathbf{k})$ et $\tilde{R}'(\mathbf{k})$. La diagonalisation de l'hamiltonien conduit aux expressions suivantes :

$$E_{\mathbf{k}} = \sqrt{\frac{\hbar^2 k^2}{2m} \left(\frac{\hbar^2 k^2}{2m} + 2\rho \tilde{U}(k) \right)}$$

$$u_{\mathbf{k}}^2 = \frac{1}{2} \left(\frac{\frac{\hbar^2 k^2}{2m} + \rho \tilde{U}(k)}{E_{\mathbf{k}}} + 1 \right) \quad v_{\mathbf{k}}^2 = \frac{1}{2} \left(\frac{\frac{\hbar^2 k^2}{2m} + \rho \tilde{U}(k)}{E_{\mathbf{k}}} - 1 \right)$$

et les quantités $\tilde{R}'(\mathbf{k})$ et $\tilde{\Phi}'(\mathbf{k})$ sont données par des expressions analogues à (3.67-3.68) :

$$\tilde{\Phi}'(\mathbf{k}) = (u_{\mathbf{k}}v_{\mathbf{k}}^* + u_{\mathbf{k}}^*v_{\mathbf{k}})M_{\mathbf{k}} + u_{\mathbf{k}}v_{\mathbf{k}} = -\frac{\rho\tilde{U}(k)}{E_{\mathbf{k}}}\left(M_{\mathbf{k}} + \frac{1}{2}\right) \quad (3.83)$$

$$\tilde{R}'(\mathbf{k}) = (u_{\mathbf{k}}^2 + v_{\mathbf{k}}^2)M_{\mathbf{k}} + v_{\mathbf{k}}^2 = \frac{\frac{\hbar^2k^2}{2m} + \rho\tilde{U}(k)}{E_{\mathbf{k}}}\left(M_{\mathbf{k}} + \frac{1}{2}\right) - \frac{1}{2} \quad (3.84)$$

où ρ désigne la densité du système, et $M_{\mathbf{k}}$ la distribution en impulsion des quasi-particules. Le spectre d'excitation donné par les $E_{\mathbf{k}}$ est continu, et admet deux régimes limites :

$$\begin{aligned} k \rightarrow \infty & : & E_{\mathbf{k}} & \sim \frac{\hbar^2k^2}{2m} \\ k \rightarrow 0 & : & E_{\mathbf{k}} & \sim ck \quad \text{avec } c = \hbar\sqrt{\frac{\rho\tilde{U}(\mathbf{0})}{m}} \end{aligned}$$

le premier correspond au spectre d'excitation d'un gaz de particules libres, alors que le second correspond à un spectre d'excitation de phonons caractérisé par une vitesse de propagation c .

État fondamental

D'après les relations (3.83-3.84), l'état fondamental est caractérisé par les expressions :

$$\bar{\Phi}'(\mathbf{k}) = -\frac{1}{2}\frac{\rho\tilde{U}(k)}{E_{\mathbf{k}}} \quad (3.85)$$

$$\bar{R}'(\mathbf{k}) = \frac{1}{2}\left(\frac{\frac{\hbar^2k^2}{2m} + \rho\tilde{U}(k)}{E_{\mathbf{k}}} - 1\right) \quad (3.86)$$

L'énergie associée à cet état fondamental est donnée par (3.66) :

$$\begin{aligned} E_0 & = E_0^{(HF)} - V \int \frac{d^3\mathbf{k}}{(2\pi)^3} E_{\mathbf{k}}v_{\mathbf{k}}^2 \\ & = \frac{1}{2}V\rho^2\tilde{U}(0) - \frac{1}{2}V \int \frac{d^3\mathbf{k}}{(2\pi)^3} \left(\frac{\hbar^2k^2}{2m} + \rho\tilde{U}(k) - E_{\mathbf{k}}\right) \end{aligned} \quad (3.87)$$

où V est le volume du système⁹. L'énergie de Hartree-Fock (premier terme) fait intervenir la quantité $\tilde{U}(0)$, reliée à la longueur de diffusion à l'ordre 0 du développement de Born (2.16). Afin de faire apparaître la longueur de diffusion à l'ordre 1, on réécrit l'énergie fondamentale de la manière suivante ([Brueckner1957, Cherny2000]) :

$$E_0 = \underbrace{\frac{1}{2}V\rho^2\left(\tilde{U}(0) - \int \frac{d^3\mathbf{k}}{(2\pi)^3} \frac{\tilde{U}(k)^2}{\frac{\hbar^2k^2}{2m}}\right)}_{E_0^{(1)}} + \underbrace{\frac{1}{2}V \int \frac{d^3\mathbf{k}}{(2\pi)^3} \left(E_{\mathbf{k}} - \frac{\hbar^2k^2}{2m} - \rho\tilde{U}(k) + \frac{\rho^2\tilde{U}(k)^2}{\frac{\hbar^2k^2}{2m}}\right)}_{E_0^{(2)}}$$

Le premier terme $E_0^{(1)}$ s'exprime directement en fonction de la longueur de diffusion à l'ordre 1 du développement de Born :

$$E_0^{(1)} = \frac{1}{2}V\rho^2\frac{4\pi\hbar^2}{m}(a_0 + a_1) \quad (3.88)$$

⁹En principe, un système uniforme est infini. En pratique, on le restreint à un volume V arbitrairement grand. Quand on fait tendre ce volume vers l'infini, l'énergie E tend aussi vers l'infini, mais la densité d'énergie E/V reste bien définie.

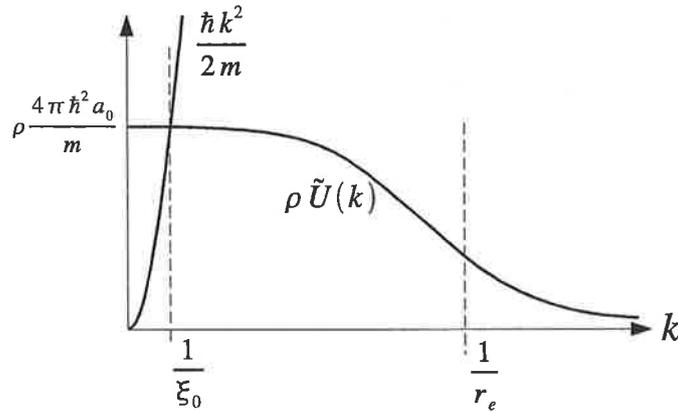


FIG. 3.1 – Représentation de la transformée de Fourier du potentiel et de l'énergie cinétique en fonction de l'impulsion.

Pour calculer le second terme $E_0^{(2)}$, on définit x^2 comme le rapport entre l'énergie cinétique $\frac{\hbar^2 k^2}{2m}$ et l'énergie d'interaction $\rho \tilde{U}(0)$. Cela permet d'effectuer le changement de variables $x = \xi_0 k$, où $\xi_0 = \hbar / \sqrt{2m\rho \tilde{U}(0)}$ est la longueur de relaxation du système (3.4) à l'approximation de Born. Le second terme devient :

$$E_0^{(2)} = \frac{1}{2} V \rho^2 \tilde{U}(0) \left(\rho \left(\frac{m \tilde{U}(0)}{4\pi \hbar^2} \right)^3 \right)^{1/2} 8 \sqrt{\frac{2}{\pi}} \int_0^\infty dx x^2 \left(x \sqrt{x^2 + 2u(x)} - x^2 - u(x) + \frac{1}{2} \left(\frac{u(x)}{x} \right)^2 \right)$$

avec $u(x) = \frac{\tilde{U}(x/\xi_0)}{\tilde{U}(0)}$. On sait par ailleurs que la transformée de Fourier $\tilde{U}(k)$ du potentiel reste sensiblement égale à $\tilde{U}(0)$ pour des impulsions petites devant $1/r_e$, où r_e est la portée du potentiel, puis tend vers 0 pour les impulsions plus grandes (voir figure 3.1). Par conséquent, la fonction $u(x)$ ne diffère sensiblement de 1 que pour des valeurs de $x \gg \frac{\xi_0}{r_e}$. Si l'on fait l'approximation de remplacer $u(x)$ par 1 dans l'intégrale, on commet donc une erreur lorsqu'on intègre pour des valeurs de $x \gg \frac{\xi_0}{r_e}$. Si $\frac{\xi_0}{r_e}$ est suffisamment grand devant 1, on peut estimer cette erreur ε en considérant le développement asymptotique de l'intégrand :

$$\varepsilon \sim \int_{\xi_0/r_e}^\infty dx \frac{u(x)^3}{x^2} \ll \int_{\xi_0/r_e}^\infty \frac{dx}{x^2} = r_e/\xi_0$$

Pour des densités suffisamment faibles, la longueur de relaxation est suffisamment grande, et l'erreur ε commise est négligeable¹⁰. Aux faibles densités considérées usuellement, ξ_0 est de l'ordre de quelques milliers d'ångströms, alors que la portée r_e d'un potentiel est typiquement de quelques dizaines d'ångströms. L'erreur commise $\varepsilon \sim r_e/\xi_0$ est donc de l'ordre du pourcent.

Une fois que l'on remplace $u(x)$ par 1, l'intégrale devient calculable analytiquement et vaut $\frac{8\sqrt{2}}{15}$. L'expression approchée de l'énergie fondamentale aux faibles densités est finalement :

$$E_0^{(Bog)} \approx \frac{1}{2} V \rho^2 \frac{4\pi \hbar^2 (a_0 + a_1)}{m} + \frac{1}{2} V \rho^2 \frac{4\pi \hbar^2 a_0}{m} \frac{128}{15\sqrt{\pi}} (\rho a_0^3)^{1/2} \leq E_0^{(HF)} \quad (3.89)$$

¹⁰Notons au passage que l'erreur commise est rigoureusement nulle pour un potentiel de contact (qui a une portée nulle) puisque sa transformée de Fourier est rigoureusement constante quelle que soit l'impulsion.

Cette expression a été dérivée dans les travaux de A. Yu. Cherny et A. A. Shanenko [Cherny2000] et est à rapprocher de la formule standard :

$$E_0^{(LY)} = \frac{1}{2} V \rho^2 \frac{4\pi \hbar^2 a}{m} \left(1 + \frac{128}{15\sqrt{\pi}} (\rho a^3)^{1/2} \right) \quad (3.90)$$

dérivée pour la première fois par T. D. Lee et C. N. Yang dans le cas d'un potentiel de sphères dures en utilisant la méthode d'expansion des collisions binaires [Lee1957b]. Cette formule correspond à une situation de forte interaction, car les potentiels de sphères dures sont des potentiels singuliers.

L'approche de Bogolioubov, en revanche, est une approche perturbative et n'a de sens que pour des potentiels doux. Le caractère perturbatif de cette approche est manifeste dans l'expression (3.89), qui est précisément le développement perturbatif à l'ordre 5/2 par rapport à l'interaction de l'énergie de Lee-Yang (3.90). Appliquée à des potentiels singuliers, l'expression (3.89) diverge. Plus surprenant, si l'on utilise des potentiels doux ayant la même longueur de diffusion a mais des valeurs de a_0 et a_1 différentes, on obtient des énergies fondamentales différentes. Cela signifie que l'énergie dépend donc de la forme du potentiel choisi. Ainsi, à strictement parler, les résultats de la méthode de Bogolioubov ne respectent pas l'idée de Landau selon laquelle les propriétés du gaz de Bose à basse température sont uniquement régies par la longueur de diffusion. Cela montre simplement les limites de l'approche de Bogolioubov. En réalité, les corrections obtenues dans l'expression (3.89), vues comme les premiers termes d'un développement perturbatif de l'énergie de Lee-Yang (3.90) n'ont pas de réelle signification sans le reste du développement. La méthode de Bogolioubov ne donne donc pas de résultat fondamentalement meilleur que la méthode Hartree-Fock, et on a simplement :

$$E_0^{(Bog)} \approx E_0^{(HF)} \approx E_0^{(LY)} \approx \frac{1}{2} V \rho^2 \frac{4\pi \hbar^2 a}{m}$$

3.2.2.6 Interactions de contact et paradoxe des énergies de Bogolioubov et Gross-Pitaevskiï

Utilisation d'un potentiel de contact

Les conclusions du paragraphe précédent suggèrent qu'il n'y a pas d'intérêt à utiliser la méthode de Bogolioubov en remplaçant le potentiel par un potentiel de contact, puisque :

- d'une part, l'énergie de Bogolioubov n'est valable que pour des interactions douces
- d'autre part, l'énergie de Bogolioubov ne dépend pas uniquement de la longueur de diffusion.

Néanmoins, la méthode de Bogolioubov a été utilisée en conjonction avec un potentiel de contact par de nombreux auteurs.

Dès 1957, parallèlement à leur travail sur la méthode d'expansion des collisions binaires conduisant à l'expression (3.90), T. D. Lee et C. N. Yang ont cherché l'expression de l'énergie fondamentale d'un gaz de Bose par d'autres méthodes avec un potentiel de contact. Ils se sont dans un premier temps heurtés au problème de divergence ultraviolette dont nous avons parlé au paragraphe 2.1.3.3. C. N. Yang fut alors rejoint par Kerson Huang qui lui suggéra d'utiliser le pseudo-potentiel de Fermi. Leur premier article sur le sujet [Huang1957] rapporte des résultats mitigés (l'énergie par particule diverge dans la limite thermodynamique). Mais en utilisant une méthode mathématiquement équivalente à la méthode de Bogolioubov, en conjonction avec le pseudo-potentiel, les auteurs ont alors retrouvé l'expression (3.90) [Lee1957a]. Le pseudo-potentiel semblait éliminer « miraculeusement » les divergences ultraviolettes.

À la même époque, K. A. Brueckner et K. Sawada travaillaient également sur des équations équivalentes à celles de Bogolioubov en assimilant l'interaction à un potentiel de contact. Ils ont analysé le problème de la divergence ultraviolette comme un artefact du développement

perturbatif. En reconnaissant dans le terme (3.88) le début du développement de Born (divergent pour une interaction de contact), les auteurs ont proposé de remplacer $E_0^{(1)}$ par le développement complet $\frac{1}{2}V\rho^2\frac{4\pi\hbar^2a}{m}$, ayant une valeur finie. Ils ont ainsi redérivé l'énergie de Lee-Yang (3.90). Cette idée de renormalisation perturbative des équations de Bogoliubov est reprise dans les livres récents sur la condensation de Bose-Einstein [Pethick2002, Pitaevskiï2003].

L'énergie de Lee-Yang (3.90) a par la suite été confirmée par des méthodes plus élaborées que celle de Bogoliubov [Beliaev1958, Hugenholtz1959]. Il en est resté l'idée que le modèle de Bogoliubov en conjonction avec une interaction de contact donne le résultat correct (3.90) à condition de ne pas « compter deux fois les transitions vers des états intermédiaires (diffusions multiples) où les particules en interaction ont une impulsion arbitrairement grande » [Pethick2002]. En effet, le remplacement du potentiel U par un potentiel de contact avec la constante de couplage $g = \frac{4\pi\hbar^2a}{m} = \frac{4\pi\hbar^2(a_0+a_1+\dots)}{m}$ contient déjà les termes qui apparaissent dans la quantité $E_0^{(1)}$ (3.88). Pour éviter ce double-comptage conduisant à la divergence, on considère qu'il est équivalent d'utiliser un potentiel de contact régularisé (c'est-à-dire un pseudo-potentiel) ou renormalisé perturbativement.

Paradoxe de l'énergie de Bogoliubov et de Gross-Pitaveskiï

Les considérations précédentes nous ont confronté à un paradoxe dès la première année de ce travail de thèse. Si l'on admet que le modèle de Bogoliubov utilisé avec une interaction de contact conduit à l'énergie de Lee-Yang (3.90), comment expliquer que cette même interaction conduise également à une énergie plus faible dans l'approximation Hartree-Fock ? Comme nous l'avons dit précédemment, l'énergie fondamentale de Bogoliubov doit en effet être plus faible que celle de Hartree-Fock, puisque la méthode de Bogoliubov inclut potentiellement celle de Hartree-Fock.

Ce paradoxe a récemment été relevé par A. Leggett [Leggett2003]. Néanmoins, l'auteur ne donne pas de solution directe à ce paradoxe concernant les interactions de contact. Nous pensons que le paradoxe est directement lié à l'utilisation d'interactions de contact effectives, puisqu'il n'apparaît pas dans l'expression générale (3.89). Nous donnons ici notre interprétation du paradoxe. Les détails sont donnés dans un projet d'article en collaboration avec Arkady Shanenko, joint à la fin de ce chapitre.

Calcul avec un pseudo-potentiel

L'énergie de Hartree-Fock (3.43) évaluée pour un système uniforme avec un pseudo-potentiel conduit à une énergie fondamentale :

$$E_0^{(HF)}(U_{\text{pseudo}}) = E_0^{(GP)} = \frac{1}{2}V\rho^2\frac{4\pi\hbar^2a}{m} \quad (3.91)$$

Par ailleurs, si l'on tient compte de l'expression générale (3.89) et du développement de Born du pseudo-potentiel (2.24), on conclut directement que :

$$E_0^{(Bog)}(U_{\text{pseudo}}) = E_0^{(LY)} = \frac{1}{2}V\rho^2\frac{4\pi\hbar^2a}{m} \left(1 + \frac{128}{15\sqrt{\pi}}\sqrt{\rho a^3} \right) \quad (\text{faux})$$

ce qui est supérieur à l'énergie (3.91). En réalité, on ne peut pas utiliser l'expression (3.89) car celle-ci n'a été obtenue que pour des potentiels « locaux ». La partie régularisante $\frac{\partial}{\partial r}(r\cdot)$ du pseudo-potentiel le rend non-local, et il faut faire le calcul à partir de l'hamiltonien de départ (3.13) en y remplaçant l'interaction réelle par le pseudopotentiel. Il convient d'être très prudent avec l'opérateur $\frac{\partial}{\partial r}(r\cdot)$ (nous avons noté quelques erreurs se compensant dans l'article original

de T. D. Lee, Kerson Huang and C. N. Yang - voir l'article en fin de chapitre). L'hamiltonien s'écrit au final :

$$\hat{H} = E_0^{(GP)} + \lim_{r \rightarrow 0} \frac{d}{dr} \left(r \cdot \sum_{\mathbf{k} \neq 0} (-E_k v_k^2 + E_k \hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{b}_{\mathbf{k}}) e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} \right)$$

où $\hat{b}_{\mathbf{k}}$ est l'opérateur d'annihilation de quasi-particules d'impulsion \mathbf{k} . Pour le vide de quasi-particules, on trouve que l'énergie correspond effectivement à l'énergie de Lee-Yang (3.90), la divergence ultraviolette étant annulée par l'opérateur régularisant. Le point important est de noter que *l'état fondamental n'est plus donné par le vide de quasi-particules*. En effet, on ne peut sortir le terme $\sum_{\mathbf{k} \neq 0} E_k \hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{b}_{\mathbf{k}} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}}$ de la partie régularisée que si celui-ci n'est pas divergent. Or, ce terme peut en général diverger. Un exemple simple est l'état de Hartree-Fock satisfaisant $\langle \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}} \rangle = 0$ et $\langle \hat{a}_{-\mathbf{k}} \hat{a}_{\mathbf{k}} \rangle = 0$, c'est-à-dire $\langle \hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{b}_{\mathbf{k}} \rangle = v_k^2$. Comme le vide de quasi-particules ne correspond plus à l'état fondamental, il n'y a donc pas de contradiction à ce qu'il ait une énergie plus grande que l'énergie de Hartree-Fock.

On peut en revanche s'interroger sur le fait que le vide de quasi-particules ne correspond plus à l'état fondamental. Une interprétation envisageable est que le pseudo-potential admet en réalité un état lié dans le problème à deux corps (voir paragraphe 2.1.3.3). Il est possible que l'existence de cet état lié engendre dans le cadre du modèle de Bogolioubov des états liés à N corps d'énergies plus basses que le vide de quasi-particules. Il est alors normal que le vide de quasi-particules ne soit plus l'état de plus basse énergie. Afin de préciser cette idée, nous avons tenté avec Arkady Shanenko de calculer explicitement l'état fondamental de Bogolioubov pour un pseudo-potential, sans succès pour l'instant. Cependant, il faut noter que l'état de Hartree-Fock a déjà une énergie plus basse que celle du vide de quasi-particules, sans même invoquer l'existence d'états liés. On peut donc s'interroger sur la pertinence du vide de quasi-particules pour un pseudopotential comme description correcte du premier état non-lié du système.

Calcul avec un potentiel de contact renormalisé

La renormalisation (2.23) du potentiel de contact telle que nous l'avons introduite au paragraphe 2.1.3.3 ne conduit pas à l'énergie de Lee-Yang. En effet, dans la limite $K \rightarrow +\infty$, les longueurs de $a_0(U'_\delta)$ et $a_1(U'_\delta)$ tendent toutes deux vers zéro. On obtient donc une énergie fondamentale de Bogolioubov nulle. Il n'est en fait pas nécessaire de faire tendre la coupure K vers l'infini : le point important est que les résultats ne dépendent plus de K . On suppose alors généralement qu'on peut traiter $K \cdot a(U)$ comme une perturbation. Comme la longueur de diffusion $a(U)$ n'est pas nécessairement petite, cela signifie que c'est la coupure K que l'on considère petite. Mais on ne peut pas non plus faire tendre $K \rightarrow 0$, car l'énergie fondamentale de Bogolioubov coïnciderait simplement avec celle de Gross-Pitaevskiï. Il faut imposer :

$$\sqrt{\rho a^3(U)} \ll K \cdot a(U) \ll 1$$

Dans cette limite, on trouve que l'énergie fondamentale de Bogolioubov est proche de l'énergie de Lee-Yang. Mais l'énergie de Hartree-Fock est elle aussi affectée par cette renormalisation, et l'on trouve :

$$E_0^{(HF)}(U'_\delta) = E_0^{(GP)} \left(1 + \frac{2}{\pi} K \cdot a(U) \right) \gg E_0^{(LY)}$$

Il n'y a donc pas non plus de paradoxe : l'énergie fondamentale de Bogolioubov est bien plus petite que l'énergie de Hartree-Fock. Il faut cependant noter que cette méthode de renormalisation n'élimine pas complètement la coupure des résultats finals. On s'arrange pour que l'énergie totale approche l'énergie de Lee-Yang, mais d'autres quantités dépendent encore de la coupure, comme l'énergie cinétique du gaz.

$U(\mathbf{r})$	$E_0^{(HF)}$	$E_0^{(Bog)}$
Potentiel doux	$\frac{1}{2}V\rho^2\frac{4\pi\hbar^2 a_0}{m}$	$\frac{1}{2}V\rho^2\frac{4\pi\hbar^2}{m}\left(a_0+a_1 + a_0\frac{128}{15\sqrt{\pi}}\sqrt{\rho a_0^3}\right)$
$\frac{4\pi\hbar^2 a}{m}\delta^3(\mathbf{r})$	$\frac{1}{2}V\rho^2\frac{4\pi\hbar^2 a}{m}$	$-\infty$
$\frac{4\pi\hbar^2 a}{m}\frac{1}{1-\frac{2}{\pi}Ka}\delta^3(\mathbf{r})$ (renormalisé)	$\approx \frac{1}{2}V\rho^2\frac{4\pi\hbar^2 a}{m}\left(1 + \frac{2}{\pi}Ka\right)$	$\approx \frac{1}{2}V\rho^2\frac{4\pi\hbar^2 a}{m}\left(1 + \frac{128}{15\sqrt{\pi}}\sqrt{\rho a^3}\right)$
$\frac{4\pi\hbar^2 a}{m}\delta^3(\mathbf{r})\frac{\partial}{\partial r}(r\cdot)$ (régularisé)	$\frac{1}{2}V\rho^2\frac{4\pi\hbar^2 a}{m}$	$? \leq \frac{1}{2}V\rho^2\frac{4\pi\hbar^2 a}{m}$
Potentiel singulier	$+\infty$	$+\infty$

TAB. 3.1 – Comparaison des énergies fondamentales de Hartree-Fock $E_0^{(HF)}$ et de Bogolioubov $E_0^{(Bog)}$ pour différentes interactions. Dans tous les cas, on vérifie que l'énergie de Hartree-Fock est bien supérieure à l'énergie de Bogolioubov.

Au delà du modèle Bogolioubov

Les calculs précédents montrent que les dérivations de l'énergie de Lee-Yang par la méthode de Bogolioubov avec des interactions effectives de contact sont quelque peu artificielles. Par ailleurs, la formule (3.89) obtenue avec des potentiels quelconques montre que l'énergie de Lee-Yang n'est pas une caractéristique générale du modèle de Bogolioubov. Cela vient du fait que le modèle de Bogolioubov ne traite le potentiel que de manière perturbative. Pour obtenir l'énergie de Lee-Yang de manière correcte, il faut utiliser une méthode plus élaborée traitant le potentiel au-delà de l'approximation de Born. Quelques méthodes possibles sont la méthode de l'expansion des collisions binaires [Lee1957b], la méthode de Beliaev [Beliaev1958], ou plus récemment la méthode de Bogolioubov généralisée proposée par Anthony Leggett [Leggett2003]. Nous montrerons au paragraphe 3.3.1.5 comment un calcul basé sur l'approche des fonctions d'onde de paire effectives conduit à l'énergie de Lee-Yang.

3.2.3 Approche Hartree-Fock-Bogolioubov

Dans l'approche de Bogolioubov, on a tenu compte de l'influence des particules non-condensées en se limitant à l'ordre 1 en $\hat{\theta}$. L'approche de Hartree-Fock-Bogolioubov se propose de tenir en compte tous les ordres en $\hat{\theta}$, moyennant l'approximation que les particules non-condensées sont indépendantes les unes des autres (comme si elles n'interagissaient pas).

3.2.3.1 Équations Hartree-Fock-Bogolioubov

En poursuivant l'approche de Bogolioubov des ordres supérieurs, on trouve que les quasi-particules ne sont plus indépendantes. En effet, la technique de diagonalisation que nous avons appliquée à la forme linéarisée des équations dynamiques pour $\hat{\theta}$ et $\hat{\theta}^\dagger$ ne découple plus entièrement les équations. Il existe néanmoins une approximation tenant compte de tous les ordres où la notion de quasi-particules reste pertinente : l'approximation de Hartree-Fock-Bogolioubov [Bogolioubov1959, Bulgac1980, Griffin1996]. Afin de nous rattacher au schéma général du paragraphe 3.1.5, nous allons présenter cette approximation simplement à travers les valeurs moyennes introduites dans ce paragraphe.

Nous avons vu que l'équation (3.34) sur la fonction d'onde du condensat Ψ (c'est ce qui nous intéresse) se couple à la moyenne K (4.24). En la développant à l'aide de la prescription de Bogolioubov, on peut exprimer cette moyenne K en fonction des moyennes Φ' (3.28), R' (3.30) et K' (3.31) :

$$\begin{aligned} K(\mathbf{w}, \mathbf{z}, \mathbf{x}) &= \Psi^*(\mathbf{w})\Psi(\mathbf{z})\Psi(\mathbf{x}) \\ &\quad + \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{w}) \rangle \Psi(\mathbf{z})\Psi(\mathbf{x}) + \Psi^*(\mathbf{w})\langle \hat{\theta}(\mathbf{z}) \rangle \Psi(\mathbf{x}) + \Psi^*(\mathbf{z})\Psi(\mathbf{x})\langle \hat{\theta}(\mathbf{z}) \rangle \rightarrow 0 \\ &\quad + \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{w})\hat{\theta}(\mathbf{z}) \rangle + \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{w})\Psi(\mathbf{z})\hat{\theta}(\mathbf{x}) \rangle + \Psi^*(\mathbf{w})\langle \hat{\theta}(\mathbf{z})\hat{\theta}(\mathbf{x}) \rangle \\ &\quad + \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{w})\hat{\theta}(\mathbf{z})\hat{\theta}(\mathbf{x}) \rangle \\ &= \Psi^*(\mathbf{w})\Psi(\mathbf{z})\Psi(\mathbf{x}) + R'(\mathbf{w}, \mathbf{z})\Psi(\mathbf{x}) + R'(\mathbf{w}, \mathbf{x})\Psi(\mathbf{z}) + \Psi^*(\mathbf{z})\Phi(\mathbf{z}, \mathbf{x}) + K'(\mathbf{w}, \mathbf{z}, \mathbf{x}) \end{aligned}$$

Les équations (3.37) et (3.38) montrent par ailleurs que les moyennes Φ' et R' se couplent aux moyennes F' et G' . A leur tour, ces moyennes peuvent être développées avec la prescription de Bogolioubov, faisant apparaître des moyennes d'ordre 4 au plus. On aimerait pouvoir fermer les équations uniquement sur les moyennes d'ordre 2 au plus (Ψ , Φ' et R'). Pour cela, il faut trouver un moyen d'exprimer de manière approchée les moyennes d'ordre 3 et 4 en fonction des moyennes d'ordre 1 et 2.

Dans l'approche Hartree-Fock-Bogolioubov, on considère que les particules non-condensées se comportent comme si elles étaient indépendantes les unes des autres (malgré leur interaction). Cela signifie qu'elles forment un gaz parfait et qu'il n'y a aucune corrélation entre elles. Dans ce cas, les différentes moyennes impliquant l'opérateur des particules non-condensées $\hat{\theta}$ satisfont à un théorème très général dit de *théorème de Wick* [Wick1950, Fetter1971], qui stipule que pour un gaz parfait toutes les moyennes d'ordre impair > 3 sont nulles et que les moyennes d'ordre pair > 4 s'expriment comme sommes de tous les produits de moyennes d'ordre 2 impliquant au total les mêmes opérateurs. Concrètement, cela signifie que :

$$\begin{aligned} \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{w})\hat{\theta}(\mathbf{z})\hat{\theta}(\mathbf{x}) \rangle &\approx 0 & (3.92) \\ \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{x})\hat{\theta}^\dagger(\mathbf{w})\hat{\theta}(\mathbf{z})\hat{\theta}(\mathbf{y}) \rangle &\approx \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{x})\hat{\theta}(\mathbf{z}) \rangle \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{w})\hat{\theta}(\mathbf{y}) \rangle + \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{x})\hat{\theta}(\mathbf{y}) \rangle \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{w})\hat{\theta}(\mathbf{z}) \rangle + \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{x})\hat{\theta}^\dagger(\mathbf{w}) \rangle \langle \hat{\theta}(\mathbf{z})\hat{\theta}(\mathbf{y}) \rangle & (3.93) \\ \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{w})\hat{\theta}(\mathbf{z})\hat{\theta}(\mathbf{x})\hat{\theta}(\mathbf{y}) \rangle &\approx \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{w})\hat{\theta}(\mathbf{z}) \rangle \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{x})\hat{\theta}(\mathbf{y}) \rangle + \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{w})\hat{\theta}(\mathbf{x}) \rangle \langle \hat{\theta}(\mathbf{z})\hat{\theta}(\mathbf{y}) \rangle + \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{w})\hat{\theta}(\mathbf{y}) \rangle \langle \hat{\theta}(\mathbf{z})\hat{\theta}(\mathbf{x}) \rangle & (3.94) \end{aligned}$$

Remarquons au passage que si l'on se place dans un état conservant le nombre de particules, on peut faire abstraction du dernier produit (moyennes anormales) dans l'approximation (3.93), et on retrouve la relation de Hartree-Fock (3.39) entre matrice-densité à deux corps et matrice-densité à un corps pour un gaz de particules indépendantes (au terme de double-comptage près).

En utilisant les approximations de Wick (3.92-3.94) pour exprimer K' , F' et G' , on obtient :

Approximations Hartree – Fock – Bogolioubov

$$\begin{aligned}
 K'(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{z}) &\approx 0 && (a) \\
 F'(\mathbf{w}, \mathbf{z}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) &\approx \underbrace{\Phi(\mathbf{z}, \mathbf{y})R'(\mathbf{w}, \mathbf{x})}_{F1} + \underbrace{R(\mathbf{w}, \mathbf{y})\Phi'(\mathbf{z}, \mathbf{x})}_{F2} + \underbrace{R(\mathbf{w}, \mathbf{z})\Phi'(\mathbf{x}, \mathbf{y})}_{F3} && (b) \\
 G'(\mathbf{x}, \mathbf{w}, \mathbf{z}, \mathbf{y}) &\approx \underbrace{\Phi(\mathbf{z}, \mathbf{y})\Phi'^*(\mathbf{x}, \mathbf{w})}_{G1} + \underbrace{R(\mathbf{w}, \mathbf{y})R'(\mathbf{x}, \mathbf{z})}_{G2} + \underbrace{R(\mathbf{w}, \mathbf{z})R'(\mathbf{x}, \mathbf{y})}_{G3} && (c)
 \end{aligned}
 \tag{3.95}$$

Les moyennes d'ordre 3 et 4 s'expriment donc maintenant en fonction des moyennes d'ordre 2. Cela conduit aux équations de Hartree-Fock-Bogolioubov :

$$i\hbar \frac{d\Psi}{dt}(\mathbf{x}) = (H_x + M(\mathbf{x}))\Psi(\mathbf{x}) + \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{x}-\mathbf{z}) (\Psi^*(\mathbf{z})\Phi'(\mathbf{z}, \mathbf{x}) + \Psi(\mathbf{z})R'(\mathbf{z}, \mathbf{x})) \tag{3.96}$$

$$\begin{aligned}
 i\hbar \frac{d\Phi'}{dt}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) &= (H_y + M(\mathbf{y}) + H_x + M(\mathbf{x}))\Phi'(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + U(\mathbf{x}-\mathbf{y})\Psi(\mathbf{x})\Psi(\mathbf{y}) && \leftarrow F3 \\
 &+ \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{y}-\mathbf{z}) (\Psi^*(\mathbf{z})\Psi(\mathbf{y}) + R'(\mathbf{z}, \mathbf{y})) \Phi'(\mathbf{x}, \mathbf{z}) + \{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\} && \leftarrow F2 \\
 &+ \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{y}-\mathbf{z}) (\Psi(\mathbf{z})\Psi(\mathbf{y}) + \Phi'(\mathbf{z}, \mathbf{y})) R'(\mathbf{z}, \mathbf{x}) + \{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\} && \leftarrow F1
 \end{aligned}
 \tag{3.97}$$

$$\begin{aligned}
 i\hbar \frac{dR'}{dt}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) &= (H_y + M(\mathbf{y}) - H_x - M(\mathbf{x}))R'(\mathbf{x}, \mathbf{y}) && \leftarrow G3 \\
 &+ \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{y}-\mathbf{z}) (\Psi^*(\mathbf{z})\Psi(\mathbf{y}) + R'(\mathbf{z}, \mathbf{y})) R'(\mathbf{x}, \mathbf{z}) - \{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\}^* && \leftarrow G2 \\
 &+ \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{y}-\mathbf{z}) (\Psi(\mathbf{z})\Psi(\mathbf{y}) + \Phi'(\mathbf{z}, \mathbf{y})) \Phi'^*(\mathbf{z}, \mathbf{x}) - \{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\}^* && \leftarrow G1
 \end{aligned}
 \tag{3.98}$$

Avec le potentiel de champ moyen : $M(\mathbf{x}) = \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{x}-\mathbf{z})R(\mathbf{z}, \mathbf{z}) = \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{x}-\mathbf{z}) (|\Psi(\mathbf{z})|^2 + R'(\mathbf{z}, \mathbf{z}))$.

On voit que ces équations constituent une généralisation des équations dynamiques de Bogolioubov (3.73-3.75). Du point de vue des équations exactes (3.34-3.38), il s'agit d'une troncation à l'ordre 2 (dans le sens où l'on ne considère que les quantités Ψ , Φ' et R') qui présente une certaine cohérence vis-à-vis du développement en $\hat{\theta}$. Cette troncation n'a été rendue possible qu'en faisant l'hypothèse que les particules non-condensées ne sont pas corrélées.

3.2.3.2 Relation entre les modes non-condensés et la corrélation de paire

Les approximations (3.76) et les équations dynamiques (3.97-3.98) de Hartree-Fock-Bogolioubov ont la même structure que celles de Bogolioubov (3.76) et (3.74-3.75). On passe en effet des équations de Bogolioubov aux équations de Hartree-Fock-Bogolioubov uniquement en effectuant les substitutions $\Psi(\mathbf{x})\Psi(\mathbf{x}) \rightarrow \Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y})$ et $\Psi^*(\mathbf{x})\Psi(\mathbf{x}) \rightarrow R(\mathbf{x}, \mathbf{y})$. Par conséquent, la relation entre modes non-condensés et corrélation de paire n'est pas modifiée. On a toujours la relation générale (3.72) à toute température, et la relation particulière (3.79) à température nulle, garantissant la positivité des nombres d'occupation. Cette relation peut également se montrer en utilisant la transformation de Bogolioubov et la notion de quasi-particules.

3.2.3.3 Spectre dans l'approximation de Hartree-Fock-Bogolioubov et "gap" d'énergie

L'état fondamental correspond au vide de quasi-particules. Celui-ci est obtenu en cherchant un état stationnaire des équations (3.96-3.98) satisfaisant à la relation de Bogolioubov (3.79) à température nulle. Pour un système uniforme, le calcul de Φ' , R' donne :

$$\tilde{\Phi}'(\mathbf{k}) = -\frac{1}{2} \frac{\rho \tilde{\mathcal{U}}(\mathbf{k})}{E_{\mathbf{k}}} \quad (3.99)$$

$$\tilde{R}'(\mathbf{k}) = \frac{1}{2} \left(\frac{\frac{\hbar^2 k^2}{2m} + \rho(\tilde{\mathcal{U}}'(\mathbf{k}) + \tilde{\mathcal{V}}(\mathbf{k}) - \tilde{\mathcal{V}}(0))}{E_{\mathbf{k}}} - 1 \right) \quad (3.100)$$

où l'on a introduit les potentiels :

$$\begin{aligned} \mathcal{U}(\mathbf{r}) &= U(\mathbf{r}) \left(1 + \frac{1}{\rho} \Phi'(\mathbf{r}) \right) \\ \mathcal{U}'(\mathbf{r}) &= U(\mathbf{r}) \left(1 - \frac{1}{\rho} \Phi'(\mathbf{r}) \right) \\ \mathcal{V}(\mathbf{r}) &= U(\mathbf{r}) \left(1 + \frac{1}{\rho} R'(\mathbf{r}) \right) \end{aligned}$$

et leur transformées de Fourier $\tilde{\mathcal{U}}$, $\tilde{\mathcal{U}}'$ et $\tilde{\mathcal{V}}$. Les énergies $E_{\mathbf{k}}$ du spectre d'excitations sont données par :

$$E_{\mathbf{k}} = \sqrt{\left(\frac{\hbar^2 k^2}{2m} + \rho(\tilde{\mathcal{U}}'(\mathbf{k}) + \tilde{\mathcal{V}}(\mathbf{k}) - \tilde{\mathcal{V}}(0)) \right)^2 - \left(\tilde{\mathcal{U}}(\mathbf{k}) \right)^2} \quad (3.101)$$

Il convient de remarquer que ce spectre présente un « gap » à faible énergie. On s'attend en effet à ce que $E_{\mathbf{k}}$ tende vers zéro pour les faibles impulsions \mathbf{k} , comme dans le modèle de Bogolioubov. Mais la formule (3.101) montre que :

$$\begin{aligned} E_{\mathbf{k}} \xrightarrow{k \rightarrow 0} \sqrt{\left(\frac{\hbar^2 k^2}{2m} + \rho(\tilde{\mathcal{U}}'(0)) \right)^2 - \left(\tilde{\mathcal{U}}(0) \right)^2} &\approx \sqrt{\left(\frac{\hbar^2 k^2}{2m} + 2\rho \frac{4\pi\hbar^2 a_1}{m} \right) \left(\frac{\hbar^2 k^2}{2m} + 2\rho \frac{4\pi\hbar^2 a_0}{m} \right)} \\ &\xrightarrow{k \rightarrow 0} 2\rho \frac{4\pi\hbar^2}{m} \sqrt{a_1 a_0} \end{aligned}$$

La présence de ce « gap » viole le théorème de Hugenholtz-Pines [Fetter1971], ce qui traduit une certaine incohérence des équations de Hartree-Fock-Bogolioubov [Griffin1996]. Pour un potentiel doux satisfaisant l'approximation de Born $a_1 \ll a_0$, le « gap » n'est pas très important. Il est en revanche infini pour une interaction de contact ou une interaction singulière.

L'énergie du vide de quasi-particules s'obtient à partir des expressions (3.27), (3.95c) et (3.99-3.100). En utilisant les mêmes techniques de calculs que dans le paragraphe 3.2.2.5, nous trouvons :

$$E_0 \approx \frac{1}{2} V \rho^2 \frac{4\pi\hbar^2 a}{m} \left(1 - \frac{32}{15\sqrt{\pi}} (\rho a^3)^{1/2} \right) + \frac{1}{2} V \rho^2 \frac{4\pi\hbar^2 a_0}{m} \cdot \frac{32}{3\sqrt{\pi}} (\rho a_0^3)^{1/2}$$

pour une interaction douce satisfaisant l'approximation de Born $a \approx a_0$. Ce résultat est cohérent avec la formule générale de Lee-Yang (3.90). En revanche, on trouve une énergie divergente pour une interaction de contact ou une interaction singulière.

3.2.3.4 Utilisation d'un potentiel de contact effectif

Nous avons vu au paragraphe (3.2.1) que la méthode de Hartree-Fock utilisée avec un potentiel de contact conduit à l'équation de Gross-Pitaveskiï. Il est donc tentant de remplacer le potentiel par un potentiel de contact effectif dans les équations de Hartree-Fock-Bogolioubov, de manière à trouver une généralisation directe de l'équation de Gross-Pitaveskiï. Néanmoins, il faut être prudent : nous avons vu que ce remplacement est légitime dans le cas de Hartree-Fock car cette méthode néglige toutes les corrélations. On fait ainsi passer artificiellement la longueur de diffusion a_0 (apparaissant du fait de l'absence de corrélation) à la longueur de diffusion totale a . Dans le cas de la méthode de Hartree-Fock-Bogolioubov, on tient compte des corrélations entre atomes condensés. Remplacer le potentiel par un potentiel de contact induit un double-comptage de certaines corrélations et conduit aux problèmes de divergence ultraviolette dont nous avons parlé au paragraphe 2.1.3.3.

Calcul avec un potentiel de contact renormalisé

M. J. Holland et ses collègues [Holland2001a] ont utilisé la méthode Hartree-Fock-Bogolioubov avec des interactions de contact, en les renormalisant au préalable pour qu'elles reproduisent les bonnes longueurs de diffusion dans la théorie à deux corps. Évidemment, rien ne garantit en général que cette renormalisation fonctionne aussi dans la théorie à N corps. Mais si l'on prend le point de vue de Landau selon lequel les résultats ne dépendent en première approximation que de la longueur de diffusion du potentiel, il paraît raisonnable de remplacer le potentiel par n'importe quel autre potentiel reproduisant la bonne longueur de diffusion.

D'après la formule (2.23), le potentiel de contact renormalisé ayant la longueur de diffusion a s'écrit :

$$\begin{aligned} U'_\delta(\mathbf{x}-\mathbf{y}) &= \frac{4\pi\hbar^2 a}{m} \cdot \frac{1}{1 - \frac{2}{\pi}Ka} \delta^3(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \\ &= \frac{g}{1 - \alpha g} \delta^3(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \quad \text{avec : } \alpha = \frac{m}{2\pi^2\hbar^2}K \end{aligned}$$

où K est une coupure en impulsion arbitraire. Ce potentiel semble renormaliser correctement les équations dynamiques (3.96-3.98) tant que le comportement de paire à courte distance est proche de la solution stationnaire.

Cependant, certains points ne paraissent pas corrects dans cette approche. Par exemple, les énergies du spectre d'excitation (3.101) à la limite $K \rightarrow \infty$ deviennent :

$$E_{\mathbf{k}} = \sqrt{\frac{\hbar^2 k^2}{2m} \left(\frac{\hbar^2 k^2}{2m} - 2\rho g \right)}$$

On fait ainsi disparaître le « gap », mais le spectre obtenu n'est pas physique : les premières énergies d'excitation sont imaginaires (vitesse de propagation imaginaire), ce qui traduirait probablement une instabilité du système. De même, à la limite $K \rightarrow \infty$, on trouve que le vide de quasiparticules possède une énergie formellement complexe :

$$E_0 = \frac{1}{2}V\rho^2 \frac{4\pi\hbar^2 a}{m} \left(1 - i \frac{152}{15\sqrt{\pi}} \sqrt{\rho a^3} \right)$$

ce qui n'est évidemment pas compatible avec la formule de Lee-Yang (3.90). Il semble donc que le remplacement de l'interaction par un potentiel de contact effectif dans l'approximation de Hartree-Fock-Bogolioubov conduise à des résultats erronés pour les quantités stationnaires. Il est néanmoins possible que les équations dynamiques (3.96-3.98) utilisées avec un potentiel de contact renormalisé restent une description satisfaisante de la dynamique dans certaines limites encore à clarifier.

3.2.4 Méthode des cumulants

Afin de clore la hiérarchie d'équations (3.34-3.36), une méthode systématique de troncation à n'importe quel ordre désiré a été proposée par J. Fricke [Fricke1996]. Cette méthode, appelée *méthode des cumulants*, a été développée et appliquée au cas des condensats atomiques et moléculaires par T. Köhler [Köhler2002]. En conjonction avec l'usage de potentiels séparables, elle a permis de décrire des expériences d'oscillation atomes-molécules dans un condensat et de rampe de Feshbach dans un condensat.

Cette méthode s'appuie sur la réécriture des différentes moyennes en fonction de quantités appelées *cumulants non-commutatifs*. Ces cumulants sont définis de la manière suivante. Si $\hat{A}_1, \hat{A}_2, \dots, \hat{A}_n$ sont n opérateurs bosoniques quelconques d'annihilation ou de création, le cumulant du produit $\hat{A}_1\hat{A}_2\dots\hat{A}_n$, noté $\langle\hat{A}_1\hat{A}_2\dots\hat{A}_n\rangle^c$ est défini par la relation de récurrence :

$$\begin{aligned}\langle\hat{A}_1\rangle &= \langle\hat{A}_1\rangle^c \\ \langle\hat{A}_1\hat{A}_2\rangle &= \langle\hat{A}_1\rangle^c\langle\hat{A}_2\rangle^c + \langle\hat{A}_1\hat{A}_2\rangle^c \\ \langle\hat{A}_1\hat{A}_2\hat{A}_3\rangle &= \langle\hat{A}_1\rangle^c\langle\hat{A}_2\rangle^c\langle\hat{A}_3\rangle^c + \langle\hat{A}_1\rangle^c\langle\hat{A}_2\hat{A}_3\rangle^c + \langle\hat{A}_2\rangle^c\langle\hat{A}_1\hat{A}_3\rangle^c + \langle\hat{A}_3\rangle^c\langle\hat{A}_1\hat{A}_2\rangle^c + \langle\hat{A}_1\hat{A}_2\hat{A}_3\rangle^c \\ &\vdots\end{aligned}$$

où chaque moyenne s'exprime comme la somme de tous les produits de cumulants possibles conduisant au même nombre d'opérateurs. Cette définition a été choisie de telle sorte que les cumulants à plus de deux opérateurs tendent vers zéro lorsque le système tend vers un gaz parfait à l'équilibre thermodynamique. En effet, d'après le théorème de Wick [Wick1950, Fetter1971], pour un gaz parfait à l'équilibre, toute fonction de corrélation $\langle\hat{A}_1\hat{A}_2\dots\hat{A}_n\rangle$ normalement ordonnée¹¹ s'exprime comme la somme de tous les produits possibles de fonctions de corrélation à deux opérateurs $\langle\hat{A}_i\hat{A}_j\rangle$ préservant l'ordre normal. Par exemple :

$$\langle\hat{A}_1\hat{A}_2\hat{A}_3\hat{A}_4\rangle = \langle\hat{A}_1\hat{A}_2\rangle\langle\hat{A}_3\hat{A}_4\rangle + \langle\hat{A}_1\hat{A}_3\rangle\langle\hat{A}_2\hat{A}_4\rangle + \langle\hat{A}_1\hat{A}_4\rangle\langle\hat{A}_2\hat{A}_3\rangle$$

Les fonctions de corrélation anormales (ne conservant pas le nombre de particules) sont quant à elles toutes nulles. Il en résulte que seuls les cumulants d'ordre 2 conservant le nombre de particules (de la forme $\langle\hat{a}_i^\dagger\hat{a}_j\rangle^c$) sont non-nuls. Les cumulants sont donc une mesure de l'écart du système au gaz parfait à l'équilibre. Ils permettent de décrire la dynamique du système lorsque celui-ci est "perturbé" par des interactions.

Avec les notations que nous avons introduites (4.20-4.23), les premiers cumulants s'écrivent :

$$\begin{aligned}\langle\hat{\psi}(\mathbf{x})\rangle^c &= \Psi(\mathbf{x}) \\ \langle\hat{\psi}(\mathbf{x})\hat{\psi}(\mathbf{y})\rangle^c &= \Phi'(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \\ \langle\hat{\psi}^\dagger(\mathbf{x})\hat{\psi}(\mathbf{y})\rangle^c &= R'(\mathbf{x}, \mathbf{y})\end{aligned}$$

Leur évolution exacte est donnée par les équations (3.34), (3.37) et (3.38), avec K , F' , et G'

¹¹Cela signifie que tous les opérateurs de création sont placés à gauche dans le produit.

réexprimés en termes de cumulants :

$$\begin{aligned} K(\mathbf{w}, \mathbf{z}, \mathbf{x}) &= \Psi^*(\mathbf{w}) \left(\Psi(\mathbf{z})\Psi(\mathbf{x}) + \Phi'(\mathbf{z}, \mathbf{x}) \right) \\ &+ \Psi(\mathbf{z})R'(\mathbf{w}, \mathbf{x}) + \Psi(\mathbf{x})R'(\mathbf{w}, \mathbf{z}) \\ &+ \langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{w})\hat{\psi}(\mathbf{z})\hat{\psi}(\mathbf{x}) \rangle^c \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} F'(\mathbf{w}, \mathbf{z}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) &= \left(\Psi(\mathbf{x})\Psi(\mathbf{z}) + \Phi'(\mathbf{x}, \mathbf{z}) \right) R'(\mathbf{w}, \mathbf{y}) \\ &+ \left(\Psi^*(\mathbf{w})\Psi(\mathbf{z}) + R'(\mathbf{w}, \mathbf{z}) \right) \Phi'(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + \left(\Psi^*(\mathbf{w})\Psi(\mathbf{x}) + R'(\mathbf{w}, \mathbf{x}) \right) \Phi'(\mathbf{z}, \mathbf{y}) \\ &+ \Psi^*(\mathbf{w})\langle \hat{\psi}(\mathbf{x})\hat{\psi}(\mathbf{z})\hat{\psi}(\mathbf{y}) \rangle^c \\ &+ \Psi(\mathbf{z})\langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{w})\hat{\psi}(\mathbf{x})\hat{\psi}(\mathbf{y}) \rangle^c + \Psi^*(\mathbf{x})\langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{w})\hat{\psi}(\mathbf{z})\hat{\psi}(\mathbf{y}) \rangle^c \\ &+ \langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{w})\hat{\psi}(\mathbf{z})\hat{\psi}(\mathbf{x})\hat{\psi}(\mathbf{y}) \rangle^c \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} G'(\mathbf{w}, \mathbf{z}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) &= \Phi'^*(\mathbf{w}, \mathbf{z}) \left(\Psi(\mathbf{x})\Psi(\mathbf{y}) + \Phi'(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \right) \\ &+ R'(\mathbf{w}, \mathbf{x}) \left(\Psi^*(\mathbf{z})\Psi(\mathbf{y}) + R'(\mathbf{z}, \mathbf{y}) \right) + R'(\mathbf{w}, \mathbf{y}) \left(\Psi^*(\mathbf{z})\Psi(\mathbf{x}) + R'(\mathbf{z}, \mathbf{x}) \right) \\ &+ \Psi^*(\mathbf{z})\langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{w})\hat{\psi}(\mathbf{z})\hat{\psi}(\mathbf{y}) \rangle^c \\ &+ \Psi(\mathbf{x})\langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{w})\hat{\psi}^\dagger(\mathbf{z})\hat{\psi}(\mathbf{y}) \rangle^c + \Psi(\mathbf{y})\langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{w})\hat{\psi}^\dagger(\mathbf{z})\hat{\psi}(\mathbf{x}) \rangle^c \\ &+ \langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{w})\hat{\psi}^\dagger(\mathbf{z})\hat{\psi}(\mathbf{x})\hat{\psi}(\mathbf{y}) \rangle^c \end{aligned}$$

3.2.4.1 Méthode standard et méthode étendue

Dans la méthode originalement proposée par J. Fricke, on tronque les équations à l'ordre n en éliminant tous les cumulants d'ordre supérieur strictement à n .

Pour $n = 1$, on obtient simplement l'équation de Gross-Pitaevskiï à l'approximation de Born :

$$i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t}(\mathbf{x}) = \left(H_{\mathbf{x}} + \int d^3 \mathbf{z} U(\mathbf{x}-\mathbf{z}) |\Psi(\mathbf{z})|^2 \right) \Psi(\mathbf{x}) \quad (3.102)$$

Pour $n = 2$ on obtient les équations de Hartree-Fock-Bogolioubov (3.96-3.98) :

$$i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t}(\mathbf{x}) = H_{\mathbf{x}}\Psi(\mathbf{x}) + \int d^3 \mathbf{z} U(\mathbf{x}-\mathbf{z}) \left(\begin{array}{l} \Psi^*(\mathbf{z}) \left(\Psi(\mathbf{z})\Psi(\mathbf{x}) + \Phi'(\mathbf{z}, \mathbf{x}) \right) \\ + \Psi(\mathbf{z})R'(\mathbf{z}, \mathbf{x}) + \Psi(\mathbf{x})R'(\mathbf{z}, \mathbf{z}) \end{array} \right) \quad (3.103)$$

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial \Phi'}{\partial t}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) &= [H_{\mathbf{y}} + H_{\mathbf{x}} + U(\mathbf{x}-\mathbf{y})] \Phi'(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + U(\mathbf{x}-\mathbf{y})\Psi(\mathbf{x})\Psi(\mathbf{y}) \\ &+ \left[\int d^3 \mathbf{z} U(\mathbf{z}-\mathbf{y}) \left(\begin{array}{l} \left(\Psi(\mathbf{z})\Psi(\mathbf{y}) + \Phi'(\mathbf{z}, \mathbf{y}) \right) R'(\mathbf{z}, \mathbf{x}) \\ + \left(\Psi^*(\mathbf{z})\Psi(\mathbf{z}) + R'(\mathbf{z}, \mathbf{z}) \right) \Phi'(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \\ + \left(\Psi^*(\mathbf{z})\Psi(\mathbf{y}) + R'(\mathbf{z}, \mathbf{y}) \right) \Phi'(\mathbf{z}, \mathbf{x}) \end{array} \right) \right]_{+\{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\}} \end{aligned} \quad (3.104)$$

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial R'}{\partial t}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) &= [H_{\mathbf{y}} - H_{\mathbf{x}}] R'(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \\ &+ \left[\int d^3 \mathbf{z} U(\mathbf{z}-\mathbf{y}) \left(\begin{array}{l} \Phi'^*(\mathbf{x}, \mathbf{z}) \left(\Psi(\mathbf{z})\Psi(\mathbf{y}) + \Phi'(\mathbf{z}, \mathbf{y}) \right) \\ + R'(\mathbf{x}, \mathbf{z}) \left(\Psi^*(\mathbf{z})\Psi(\mathbf{y}) + R'(\mathbf{z}, \mathbf{y}) \right) \\ + R'(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \left(\Psi^*(\mathbf{z})\Psi(\mathbf{z}) + R'(\mathbf{z}, \mathbf{z}) \right) \end{array} \right) \right]_{-\{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\}^*} \end{aligned} \quad (3.105)$$

Du fait de la troncation, les équations ne sont en général valides que pour une durée de propagation limitée. Pour augmenter la durée de validité à un certain ordre n donné, T. Köhler et K. Burnett ont proposé une « méthode étendue » [Köhler2002], qui tient compte de la dynamique « libre » des cumulants d'ordres $n + 1$ et $n + 2$. Cela signifie qu'on tient compte des cumulants d'ordres $n + 1$ et $n + 2$ dans les équations d'évolution des cumulants d'ordre $1 \dots n$, et pour que ces cumulants d'ordre $n + 1$ et $n + 2$ évoluent « librement », on néglige dans leurs équations d'évolution les produits de cumulants impliquant (au total) $n + 3$ et $n + 4$ opérateurs-champs.

3.2.4.2 Méthode des cumulants au premier ordre

En appliquant la méthode étendue à l'ordre $n = 1$, on ne retient que le cumulant d'ordre 1 Ψ et les cumulants Φ' , R' et K' évoluant librement. On a alors :

$$i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t}(\mathbf{x}) = H_{\mathbf{x}} \Psi(\mathbf{x}) + \int d^3 \mathbf{z} U(\mathbf{x}-\mathbf{z}) \left(\begin{array}{l} \Psi^*(\mathbf{z}) \left(\Psi(\mathbf{z}) \Psi(\mathbf{x}) + \Phi'(\mathbf{z}, \mathbf{x}) \right) \\ + \Psi(\mathbf{z}) R'(\mathbf{z}, \mathbf{x}) + \Psi(\mathbf{x}) R'(\mathbf{z}, \mathbf{z}) \\ + K'(\mathbf{z}, \mathbf{z}, \mathbf{x}) \end{array} \right) \quad (3.106)$$

$$i\hbar \frac{\partial \Phi'}{\partial t}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = [H_{\mathbf{y}} + H_{\mathbf{x}} + U(\mathbf{x}-\mathbf{y})] \Phi'(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + U(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \Psi(\mathbf{x}) \Psi(\mathbf{y}) \quad (3.107)$$

$$i\hbar \frac{\partial R'}{\partial t}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = [H_{\mathbf{y}} - H_{\mathbf{x}}] R'(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \quad (3.108)$$

$$i\hbar \frac{\partial K'}{\partial t}(\mathbf{z}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) = [H_{\mathbf{y}} + H_{\mathbf{x}} + U(\mathbf{x}-\mathbf{y}) - H_{\mathbf{z}}] K'(\mathbf{z}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) + U(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \left(\Psi(\mathbf{x}) R'(\mathbf{z}, \mathbf{y}) + \Psi(\mathbf{y}) R'(\mathbf{z}, \mathbf{x}) \right) \quad (3.109)$$

Notons d'emblée que ces équations *ne conservent pas* le nombre total d'atomes $N = \int (|\Psi|^2 + R')$. En supposant que les cumulants R' et K' sont initialement négligeables dans l'équation (3.106), les équations (3.108) et (3.109) montrent qu'ils vont le rester au cours de l'évolution (précisément parce que leur évolution est libre). Cela revient à supposer qu'on *néglige l'action des atomes non-condensés sur le condensat*. Les équations se réduisent alors à :

$$i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t}(\mathbf{x}) = H_{\mathbf{x}} \Psi(\mathbf{x}) + \int d^3 \mathbf{z} U(\mathbf{x}-\mathbf{z}) \Psi^*(\mathbf{z}) \left(\Psi(\mathbf{z}) \Psi(\mathbf{x}) + \Phi'(\mathbf{z}, \mathbf{x}) \right) \quad (3.110)$$

$$i\hbar \frac{\partial \Phi'}{\partial t}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = [H_{\mathbf{y}} + H_{\mathbf{x}} + U(\mathbf{x}-\mathbf{y})] \Phi'(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + U(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \Psi(\mathbf{x}) \Psi(\mathbf{y}) \quad (3.111)$$

et ne portent plus que sur Ψ et Φ' . Ces équations d'évolution peuvent s'écrire de manière équivalente avec Ψ et Φ (4.20-4.21) :

$$i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t}(\mathbf{x}) = [H_{\mathbf{x}} + M(\mathbf{x})] \Psi(\mathbf{x}) \quad (3.112)$$

$$i\hbar \frac{\partial \Phi}{\partial t}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = [H_{\mathbf{y}} + H_{\mathbf{x}} + U(\mathbf{x}-\mathbf{y})] \Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + [M(\mathbf{x}) + M(\mathbf{y})] \Psi(\mathbf{x}) \Psi(\mathbf{y}) \quad (3.113)$$

où l'on introduit le champ moyen $M(\mathbf{x}) = \frac{1}{\Psi(\mathbf{x})} \int d^3 \mathbf{z} U(\mathbf{x}-\mathbf{z}) \Psi^*(\mathbf{z}) \Phi(\mathbf{z}, \mathbf{x})$.

Ayant effectué ces approximations, on peut maintenant rétablir la conservation du nombre total d'atomes, en rajoutant un des termes qu'on a négligé dans l'équation d'évolution de R' :

$$i\hbar \frac{\partial R'}{\partial t}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = [H_{\mathbf{y}} - H_{\mathbf{x}}] R'(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + \left[\int d^3 \mathbf{z} U(\mathbf{z}-\mathbf{y}) \Phi'^*(\mathbf{x}, \mathbf{z}) \Phi(\mathbf{z}, \mathbf{y}) \right]_{-\{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\}^*} \quad (3.114)$$

Au final, les trois équations (3.110), (3.111) et (3.114) peuvent se déduire directement des équations exactes (3.34-3.37) avec les approximations suivantes :

Approximations des cumulants au 1er ordre

$$\begin{aligned} K'(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{z}) &\approx 0 & (a) \\ F'(\mathbf{w}, \mathbf{z}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) &\approx 0 & (b) \\ G'(\mathbf{w}, \mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{z}) &\approx \Phi'^*(\mathbf{w}, \mathbf{x})\Phi(\mathbf{y}, \mathbf{z}) & (c) \end{aligned} \quad (3.115)$$

Soit :

Approximations des cumulants au 1er ordre

$$\begin{aligned} K(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{z}) &\approx \Psi^*(\mathbf{x})\Phi(\mathbf{y}, \mathbf{z}) & (a) \\ F(\mathbf{w}, \mathbf{z}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) &\approx \Psi^*(\mathbf{w})\Phi(\mathbf{z}, \mathbf{x})\Psi(\mathbf{y}) & (b) \\ G(\mathbf{w}, \mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{z}) &\approx \Phi^*(\mathbf{w}, \mathbf{x})\Phi(\mathbf{y}, \mathbf{z}) & (c) \end{aligned} \quad (3.116)$$

Ces approximations s'obtiennent formellement à partir des approximations de Hartree-Fock-Bogolioubov (3.44) en négligeant tous les termes contenant la lettre R (c'est-à-dire $F1$, $F2$, $F3$, $G2$ et $G3$). Notons que l'approximation (3.116-b) ne respecte pas les symétries de la fonction F en ce qui concerne la permutation de ses trois derniers arguments.

3.2.4.3 Relation entre corrélation et modes non-condensés

Les variables Ψ et Φ (ou Φ') ne se couplent pas à la matrice densité R' des atomes non-condensés, puisqu'on a négligé les effets des collisions des atomes condensés avec les atomes non-condensés dans leurs équations. On peut en fait s'abstenir de l'équation (3.114) et ne résoudre que les deux autres. Il existe (dans le cadre des approximation ci-dessus) une relation liant directement la matrice densité à un corps R' des atomes non-condensés à la corrélation de paire Φ' . Cette relation peut être obtenue comme dans le modèle de Bogolioubov (voir le paragraphe 3.2.2.4) en considérant la quantité $S(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = \int d^3\mathbf{z} \Phi'^*(\mathbf{x}, \mathbf{z})\Phi'(\mathbf{z}, \mathbf{y})$. En utilisant l'équation (3.111), on obtient en effet :

$$i\hbar \frac{\partial S}{\partial t}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = [H_{\mathbf{y}} - H_{\mathbf{x}}] S(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + \left[\int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{z}-\mathbf{y})\Phi'^*(\mathbf{x}, \mathbf{z})\Phi(\mathbf{z}, \mathbf{y}) \right]_{-\{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\}^*} \quad (3.117)$$

Par comparaison entre les équations (3.114) et (3.117), on arrive à :

$$\int d^3\mathbf{z} \Phi'^*(\mathbf{x}, \mathbf{z})\Phi'(\mathbf{z}, \mathbf{y}) = R'(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \quad (3.118)$$

qui n'est autre que la relation de Bogolioubov approchée (3.81). Il en découle la loi de conservation suivante :

$$N = \underbrace{\int d^3\mathbf{x} |\Psi(\mathbf{x})|^2}_{\text{Atomes condensés}} + \underbrace{\int d^3\mathbf{x} d^3\mathbf{y} |\Phi'(\mathbf{x}, \mathbf{y})|^2}_{\text{Atomes non-condensés}} \quad (3.119)$$

Nous avons vu au paragraphe 3.2.2.3 que la relation (3.118) est importante, car elle garantit la positivité des nombres d'occupation des modes non-condensés. Il n'est donc pas possible qu'au cours de l'évolution le nombre d'atomes non-condensés devienne négatif et que le nombre d'atomes condensés (par conservation) devienne supérieur à N . La relation nous enseigne également comment les corrélations de paire entre atomes du condensat (induites par leurs interactions) génèrent des modes à un corps non-condensés dans le système. On remarque que dans

le cadre de cette approximation, les modes non-condensés proviennent uniquement des collisions entre atomes condensés (ce qu'on a appelé le *dépeuplement quantique* du condensat au paragraphe 3.2.2.3) et non des effets thermiques. Cela suggère que les équations des cumulants au premier ordre correspondent à une température proche de zéro.

3.2.4.4 Dérivation en terme d'énergie fonctionnelle

D'après les approximations (3.116), et en tenant compte de la relation (3.118), l'énergie moyenne (3.27) est donnée par :

$$E[\Psi, \Phi'] = \int d^3\mathbf{x} \Psi^*(\mathbf{x}) H_{\mathbf{x}} \Psi(\mathbf{x}) + \frac{1}{2} \int d^3\mathbf{x} d^3\mathbf{y} \Psi^*(\mathbf{x}) \Psi^*(\mathbf{y}) U(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \\ + \frac{1}{2} \int d^3\mathbf{x} d^3\mathbf{y} \Phi'^*(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \left((H_{\mathbf{x}} + H_{\mathbf{y}}) \Phi'(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + U(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \right)$$

Cette énergie est une fonctionnelle de Ψ et Φ' considérées comme variables indépendantes, et permet de redériver les équations dynamiques de manière similaire à la fonctionnelle de Gross-Pitaevskiï :

$$i\hbar \frac{\partial \Psi(\mathbf{x}, t)}{\partial t} = \frac{\partial E[\Psi, \Phi']}{\partial \Psi^*(\mathbf{x}, t)} \\ i\hbar \frac{\partial \Phi'(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t)}{\partial t} = \frac{\partial E[\Psi, \Phi']}{\partial \Phi'^*(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t)}$$

Ces relations garantissent la conservation de l'énergie :

$$i\hbar \frac{\partial E}{\partial t} = \int \left(\frac{\partial E}{\partial \Psi} i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t} + \frac{\partial E}{\partial \Psi^*} i\hbar \frac{\partial \Psi^*}{\partial t} \right) + \iint \left(\frac{\partial E}{\partial \Phi'} i\hbar \frac{\partial \Phi'}{\partial t} + \frac{\partial E}{\partial \Phi'^*} i\hbar \frac{\partial \Phi'^*}{\partial t} \right) \\ = \int \left(\frac{\partial E}{\partial \Psi} \frac{\partial E}{\partial \Psi^*} - \frac{\partial E}{\partial \Psi^*} \frac{\partial E}{\partial \Psi} \right) + \iint \left(\frac{\partial E}{\partial \Phi'} \frac{\partial E}{\partial \Phi'^*} - \frac{\partial E}{\partial \Phi'^*} \frac{\partial E}{\partial \Phi'} \right) \\ = 0$$

où nous avons utilisé le fait que l'énergie est *a priori* réelle $E = E^*$.

3.2.4.5 Problème de états stationnaires

La méthode des cumulants a été à l'origine développée pour propager les équations dynamiques pour une durée limitée [Fricke1996, Köhler2002]. Elle n'est donc *a priori* pas conçue pour l'étude de problèmes stationnaires. Intuitivement parlant, cela nécessiterait que les équations dynamiques soient valables pour une période de temps illimitée. Néanmoins, même pour résoudre les équations dynamiques, il faut se donner une condition initiale raisonnable, correspondant par exemple à un état stationnaire du système si l'on part d'une situation à l'équilibre.

Dans le cas où l'interaction est suffisamment douce, on peut choisir un état initial non corrélé $\Phi' = 0$, comme il est proposé dans la référence [Góral2004b]. On obtient alors pour Ψ l'équation de Gross-Pitaevskiï stationnaire à l'approximation de Born. Si l'interaction est moins douce, cette équation n'est pas valable, et il faut alors chercher explicitement les états stationnaires des équations (3.112-3.113).

Posons $\Psi(\mathbf{x}, t) = \bar{\Psi}(\mathbf{x}) e^{-i\mu t/\hbar}$, où μ est identifié au potentiel chimique. On doit alors poser $\Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) = \bar{\Phi}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) e^{-i2\mu t/\hbar}$ pour obtenir des équations stationnaires pour $\bar{\Psi}$ et $\bar{\Phi}$:

$$\mu \bar{\Psi}(\mathbf{x}) = \left(H_{\mathbf{x}} + M(\mathbf{x}) \right) \bar{\Psi}(\mathbf{x}) \quad (3.120)$$

$$2\mu \bar{\Phi}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = \left(H_{\mathbf{x}} + H_{\mathbf{y}} + U(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \right) \bar{\Phi}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + \left(M(\mathbf{x}) + M(\mathbf{y}) \right) \bar{\Psi}(\mathbf{x}) \bar{\Psi}(\mathbf{y}) \quad (3.121)$$

Ces équations ont récemment été redérivées par A. Cherny et J. Brand [Cherny2004]. Comme il est montré dans cette référence, ces équations conduisent à l'équation stationnaire de Gross-Pitaevskiï pour $\mu \rightarrow 0$. Néanmoins, dans les expériences μ est souvent bien plus grand que les espacements entre les niveaux d'énergie du potentiel de piégeage. Dans l'expérience de la référence [McKenzie2002], par exemple, la fréquence du piège est de l'ordre de 200 Hz, alors que le potentiel chimique $\mu \approx \frac{4\pi\hbar^2 a}{m} \rho_c$, où ρ_c désigne la densité au centre du piège, est de l'ordre de 6 kHz. Il y a alors un problème avec les états stationnaires correspondants à de tels potentiels chimiques. L'équation (3.121) peut en effet être inversée au moyen de la fonction de Green $G_\mu(\mathbf{x}', \mathbf{y}', \mathbf{x}, \mathbf{y})$ de l'opérateur $2\mu - H_{\mathbf{x}} - H_{\mathbf{y}} - U(\mathbf{x} - \mathbf{y})$ de la manière suivante :

$$\bar{\Phi}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = \int d^3\mathbf{x}' d^3\mathbf{y}' G_\mu(\mathbf{x}', \mathbf{y}', \mathbf{x}, \mathbf{y}) \left(M(\mathbf{x}') + M(\mathbf{y}') \right) \bar{\Psi}(\mathbf{x}') \bar{\Psi}(\mathbf{y}') \quad (3.122)$$

Mais cette fonction de Green a un pôle pour chaque valeur de 2μ coïncidant avec un niveau d'énergie du spectre de l'opérateur $H_{\mathbf{x}} + H_{\mathbf{y}} + U(\mathbf{x} - \mathbf{y})$, c'est-à-dire, de manière approchée, lorsque μ coïncide avec un niveau d'énergie du piège.

Ceci conduit à une série de résonances du champ moyen, lorsqu'on fait varier le potentiel chimique à travers les niveaux d'énergie du potentiel de piège (ou de manière équivalente lorsqu'on augmente la densité). Ces résonances n'ont bien sûr aucune origine physique, mais découle uniquement de la structure mathématique des équations au degré d'approximation utilisé. Comme il est remarqué dans la référence [Cherny2004], ce problème peut être résolu dans le cas d'un système uniforme : la fonction de Green devient indéfinie pour toutes les valeurs de μ , puisque les pôles forment une ligne continue, et on peut la régulariser en prenant la partie principale de l'intégrale (3.122), ou bien en l'évaluant légèrement en dehors de la ligne de singularité en $\mu + i\varepsilon$ (fonction de Green retardée). Le problème demeure néanmoins dans les calculs numériques, puisque ceux-ci sont effectués dans un espace limité qui discrétise les énergies. Nous montrerons un exemple numérique de ce problème dans le chapitre 6.

L'approche des cumulants ne permet pas en général de dériver proprement l'équation de Gross-Pitaevskiï stationnaire. Néanmoins, lorsque le potentiel chimique se situe entre deux résonances, la fonction du condensat $\bar{\Psi}$ s'approche en général de la solution de l'équation de Gross-Pitaevskiï stationnaire. On peut donc s'arranger pour que ce soit le cas en pratique. Dans ce cas, les solutions dynamiques peuvent dans une certaine mesure satisfaire l'équation de Gross-Pitaevskiï dépendant du temps. Nous vérifierons ce point numériquement dans le chapitre 6.

3.2.4.6 Réécriture sous la forme d'une équation de Schrödinger non-linéaire non-markovienne

Dans le cas dépendant du temps, on peut résoudre formellement l'équation (3.111) en intégrant à l'aide d'une fonction de Green dépendant du temps, et introduire cette solution formelle dans l'équation (3.110) sur la fonction d'onde du condensat. En supposant que :

- les paires d'atomes sont initialement décorréelées $\Phi' = 0$
- l'extension spatiale du condensat est grande devant l'extension du potentiel U et de la fonction de Green associée à l'équation (3.111).
- on peut négliger l'influence du piège sur la dynamique des paires

T. Köhler et ses collaborateurs [Köhler2002, Köhler2003a] ont montré qu'on pouvait mettre l'équation (3.110) sous la forme d'une équation de Schrödinger non-linéaire non-markovienne :

$$i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t}(\mathbf{x}, t) = H_{\mathbf{x}} \Psi(\mathbf{x}, t) - \Psi^*(\mathbf{x}, t) \int_{t_0}^t dt' \Psi^2(\mathbf{x}, t') \frac{\partial h}{\partial t'}(t, t') \quad (3.123)$$

avec la fonction $h(t, t') = \int d^3\mathbf{r}' U(r') u_2(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t, t')$, où $\hat{u}_2(t, t')$ est l'opérateur d'évolution associé à l'hamiltonien à deux corps $-\frac{\hbar^2 \nabla_r^2}{m} + U(r)$. Toute la difficulté de la dépendance spatiale

de la fonction de paire a donc été reportée dans la fonction h . L'intérêt de cette reformulation est que la fonction h se calcule assez simplement si l'on remplace le potentiel U par un potentiel effectif séparable, c'est-à-dire de la forme :

$$U \rightarrow U_{sep} = |\chi\rangle\xi\langle\chi| \quad (3.124)$$

Dans ce cas, la fonction h est donnée par une équation implicite portant uniquement sur la variable temps (on s'affranchit du problème de dépendance spatiale). Cette méthode a été appliquée par T. Köhler et ses collègues pour étudier les condensats atomiques soumis à des résonances de Feshbach, en modélisant l'interaction en présence de champ magnétique par un potentiel effectif séparable reproduisant la dépendance de la longueur de diffusion en fonction du champ magnétique [Köhler2003a, Köhler2003b]. Il faut noter que contrairement aux équations (3.110-3.111), l'équation non-linéaire (3.123) n'est pas utilisable avec des potentiels réalistes, car sa dérivation suppose que les paires d'atomes sont initialement décorréelées.

3.3 Théorie pour des interactions arbitrairement fortes

On s'intéresse maintenant au cas le plus général de la dynamique d'un condensat non-uniforme dont les interactions sont arbitrairement fortes (incluant les interactions singulières). Les méthodes que nous avons présentées précédemment ne sont pas applicables. En effet, elles traitent l'interaction de manière similaire au développement perturbatif de Born (2.15) de la théorie à deux corps. On a vu au paragraphe 2.1.3.2 que cela conduit à des résultats incorrects, voire divergents, pour une interaction arbitrairement forte.

Pour traiter ce type d'interactions, certains modèles ont été développés de par le passé, comme la méthode d'expansion des collisions binaires [Lee1957b, Lee1959], ou la méthode de Beliaev [Beliaev1958, Fetter1971]; ces approches sont basées sur des développements perturbatifs vis-à-vis de l'interaction, avec resommation de certains diagrammes essentiels (comme les diagrammes « échelles ») pour traiter correctement le coeur répulsif des potentiels. Nous nous sommes également intéressés à d'autres méthodes plus apparentées à la théorie des liquides comme la méthode de Jastrow [Jastrow1955] ou le développement en « hypernetted chains ». Tous ces formalismes ne nous ont pas paru directement adaptables au problème initial de la formation de molécules dans les condensats. Finalement, l'approche qui nous a paru la plus pertinente est celle initiée par A. Yu Cherny et A. A. Shanenko, que nous appellerons « méthode des fonctions d'onde effectives ». L'idée de cette méthode est de tenir compte de la partie à courtes distances des fonctions d'onde à deux atomes dans le système, de manière à régulariser le potentiel à ces distances. Elle a l'avantage de donner des images simples en termes de fonctions d'onde.

3.3.1 Méthode des fonctions d'onde effectives

Jusqu'ici, nous avons étudié le système à N bosons à l'aide de matrices-densité réduites à 1, 2, ... corps. Pour mieux les manipuler, nous avons utilisé le formalisme de seconde quantification. Il n'est pas toujours aisé de donner un sens intuitif aux quantités que nous avons considérées. En particulier, lorsqu'il s'agit de les tronquer ou de faire des approximations, la motivation tient parfois autant du désir d'obtenir des équations simples à résoudre que d'une justification physique claire. Dans la suite, nous allons adopter une approche originale en nous ramenant à une description en termes de fonctions d'onde. Cela nous permettra d'avoir une représentation plus intuitive du système à N corps, et nous guidera dans le choix des approximations. Comme on le verra, cette description en terme de fonctions d'onde s'avère extrêmement pertinente pour traiter des interactions arbitrairement fortes.

3.3.1.1 Définition des fonctions d'onde effectives

Une propriété essentielle des matrices densité réduites est leur hermiticité. On sait alors qu'on peut toujours les diagonaliser dans une base de fonctions propres orthogonales associées à des valeurs propres réelles et positives :

$$\begin{aligned}
 \rho_1(\mathbf{x}, \mathbf{y}) &= \langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{x}) \hat{\psi}(\mathbf{y}) \rangle &= \sum_{i=0}^{\infty} N_i \psi_i^*(\mathbf{x}) \psi_i(\mathbf{y}) \\
 \rho_2(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{x}', \mathbf{y}') &= \frac{1}{2!} \langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{x}) \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{y}) \hat{\psi}(\mathbf{x}') \hat{\psi}(\mathbf{y}') \rangle &= \sum_{i=0}^{\infty} M_i \phi_i^*(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \phi_i(\mathbf{x}', \mathbf{y}') \\
 \rho_3(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{z}, \mathbf{x}', \mathbf{y}', \mathbf{z}') &= \frac{1}{3!} \langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{x}) \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{y}) \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{z}) \hat{\psi}(\mathbf{x}') \hat{\psi}(\mathbf{y}') \hat{\psi}(\mathbf{z}') \rangle &= \sum_{i=0}^{\infty} L_i \omega_i^*(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{z}) \omega_i(\mathbf{x}', \mathbf{y}', \mathbf{z}') \\
 &\vdots &
 \end{aligned}
 \tag{3.125}$$

Ces fonctions propres correspondent respectivement à des fonctions d'onde (ou *modes*) à 1, 2, 3... corps qu'on appellera *fonctions d'onde effectives* dans le milieu. Si l'on choisit de les

normaliser à 1, la valeur propre associée à chaque fonction d'onde peut alors être interprétée comme le nombre moyen d'occupation de cette fonction d'onde (vu comme un état quantique) au sein du système. On a la propriété suivante :

$$\begin{aligned}\sum_{i=0}^{\infty} N_i &= N \\ \sum_{i=0}^{\infty} M_i &= \frac{N(N-1)}{2!} \\ \sum_{i=0}^{\infty} L_i &= \frac{N(N-1)(N-2)}{3!} \\ &\vdots\end{aligned}$$

qui garantit que la somme des nombres d'occupation des modes à 1 corps est égale au nombre total de particules dans le système, que la somme des nombres d'occupation des modes à 2 corps est égale au nombre total de paires dans le système, etc. Une autre possibilité est de normaliser les fonctions d'onde à leur nombre d'occupation. On les note alors en lettres majuscules, et on les appellera *fonctions d'onde effectives macroscopiques* en cas d'ambiguïté :

$$\begin{aligned}\Psi_i(\mathbf{x}) &= \sqrt{N_i} \psi_i(\mathbf{x}) \\ \Phi_i(\mathbf{x}, \mathbf{y}) &= \sqrt{M_i} \phi_i(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \\ \Omega_i(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{z}) &= \sqrt{L_i} \omega_i(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{z}) \\ &\vdots\end{aligned}$$

Cette convention permet d'« absorber » l'information sur le nombre d'occupation dans la norme de chaque fonction d'onde.

Lorsqu'il n'y a aucune interaction dans le système, tous les atomes sont indépendants, si bien que les fonctions d'onde à $n \geq 2$ corps s'expriment simplement comme produits symétrisés de fonctions d'onde à un corps. Il est par exemple aisé de vérifier que la matrice-densité réduite à deux corps a la forme diagonale suivante :

$$\rho_2(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{x}', \mathbf{y}') = \sum_{j \leq i}^{\infty} M_{ij} \phi_{ij}^*(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \phi_{ij}(\mathbf{x}', \mathbf{y}')$$

avec :

$$\begin{aligned}\phi_{ii}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) &= \psi_i(\mathbf{x}) \psi_i(\mathbf{y}) \\ \phi_{ij}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) &= \frac{\psi_i(\mathbf{x}) \psi_j(\mathbf{y}) + \psi_i(\mathbf{y}) \psi_j(\mathbf{x})}{\sqrt{2}} \quad (j < i)\end{aligned}$$

où ϕ_{ii} s'interprète comme la fonction d'onde pour deux corps dans le même état individuel ψ_i , et ϕ_{ij} s'interprète comme la fonction d'onde pour deux corps dans les états ψ_i et ψ_j . Leurs nombres d'occupation respectifs sont $M_{ii} = \frac{N_i(N_i-1)}{2}$ et $M_{ij} = N_i N_j$, résultat auquel on peut s'attendre par simple dénombrement.

En présence d'interaction dans le système, les positions des atomes ne vont plus être indépendantes les unes des autres. On s'attend donc à trouver des termes supplémentaires traduisant la corrélation entre atomes :

$$\begin{aligned}\phi_{ii}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) &\propto \psi_i(\mathbf{x})\psi_i(\mathbf{y}) + \phi'_{ii}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \\ \phi_{ij}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) &\propto \frac{\psi_i(\mathbf{x})\psi_j(\mathbf{y}) + \psi_i(\mathbf{y})\psi_j(\mathbf{x})}{\sqrt{2}} + \phi'_{ij}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \quad (j < i)\end{aligned}\quad (3.126)$$

ce que l'on peut aussi exprimer à l'aide de fonctions de corrélation multiplicatives :

$$\begin{aligned}\phi_{ii}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) &\propto \psi_i(\mathbf{x})\psi_i(\mathbf{y})\varphi_{ii}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \\ \phi_{ij}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) &\propto \frac{\psi_i(\mathbf{x})\psi_j(\mathbf{y}) + \psi_i(\mathbf{y})\psi_j(\mathbf{x})}{\sqrt{2}}\varphi_{ij}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \quad (j < i)\end{aligned}\quad (3.127)$$

On appellera ces fonctions de corrélation φ les *fonctions d'onde de paire réduites*¹². Pour des interactions suffisamment localisées, on peut raisonnablement penser qu'il existe un *principe d'atténuation des corrélations*, c'est-à-dire qu'un atome est quasiment indépendant lorsqu'ils est à suffisamment grande distance des autres (car il n'interagit plus). Dans ce cas, pour de grandes séparations interatomiques, les termes de corrélation ϕ' doivent tendre vers 0 et les fonctions d'onde réduites φ doivent tendre vers 1.

Notons que les fonctions d'ondes (3.126-3.127) sont supposées être une sorte de prolongement par continuité des fonctions d'onde d'atomes indépendants lorsqu'on "branche" l'interaction. Elles ont la même forme asymptotique (ce qui permet de conserver la même numérotation) et correspondent intuitivement à des états de diffusion (états libres asymptotiquement). Pour que cette classification asymptotique garde un sens, il faut que les corrélations s'atténuent sur des distances plus petites que l'extension spatiale des modes à un corps (typiquement donnée par la taille du confinement de piégeage des forces extérieures). Par ailleurs, l'interaction peut aussi induire des états liés, n'ayant pas de forme asymptotique correspondant à des atomes indépendants. La forme générale de la matrice-densité à 2 corps en présence d'interaction est donc :

$$\rho_2(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{x}', \mathbf{y}') = \sum_{j \leq i}^{\infty} M_{ij} \phi_{ij}^*(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \phi_{ij}(\mathbf{x}', \mathbf{y}') + \sum_{\nu} M_{\nu} \phi_{\nu}^*(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \phi_{\nu}(\mathbf{x}', \mathbf{y}')$$

où les ϕ_{ij} sont les états de diffusion d'un atome (asymptotiquement) dans l'état i et d'un atome dans l'état j , et les ϕ_{ν} correspondent aux états liés (de limite asymptotique nulle).

3.3.1.2 Fonctions d'onde effectives dans un condensat

Comme on l'a déjà vu, il y a condensation lorsqu'un mode à un corps ψ_0 est occupé de manière macroscopique : $N_0 \gg \sum_{i \neq 0} N_i$. Quelle conséquence cela a-t-il sur la forme des fonctions d'onde effectives du système? La question semble avoir été abordée de manière détaillée pour la première fois dans l'article de A. Yu. Cherny [Cherny1998], où les expressions des premières fonctions d'onde de paire ont été explicitement calculées dans le cadre d'un condensat uniforme en utilisant la prescription de Bogolioubov. Nous avons par la suite généralisé ces expressions [Naidon2003] au cas de système non-uniformes, pour les fonctions d'onde effectives de paires et de triplets. L'intérêt de ces expressions est qu'elles permettent de représenter la plupart des quantités intervenant dans les équations (moyennes d'opérateurs-champs) directement comme des sommes et produits de fonctions d'onde effectives. On aboutit ainsi à une structure beaucoup plus claire des équations et une vision plus intuitive du système.

¹²Il peut y avoir un problème de définition des φ dans le cas où les fonctions $\psi_i(\mathbf{x})\psi_i(\mathbf{y})$ ou $\frac{\psi_i(\mathbf{x})\psi_j(\mathbf{y}) + \psi_i(\mathbf{y})\psi_j(\mathbf{x})}{\sqrt{2}}$ s'annulent. On supposera qu'il est toujours possible de prolonger les fonctions φ par continuité au voisinage des points d'annulation.

$$\begin{aligned}
& \underbrace{\Psi_0^*(\mathbf{w})\Psi_0^*(\mathbf{z})\Psi_0(\mathbf{x})\Psi_0(\mathbf{y}) + \Psi_0^*(\mathbf{w})\Psi_0^*(\mathbf{z})\langle\hat{\theta}(\mathbf{x})\hat{\theta}(\mathbf{y})\rangle + \langle\hat{\theta}^\dagger(\mathbf{w})\hat{\theta}^\dagger(\mathbf{z})\rangle\Psi_0(\mathbf{x})\Psi_0(\mathbf{y})}_{\text{grisé au-dessous}} \\
& \left(\Psi_0^*(\mathbf{w})\Psi_0^*(\mathbf{z}) + \langle\hat{\theta}^\dagger(\mathbf{w})\hat{\theta}^\dagger(\mathbf{z})\rangle\right)\left(\Psi_0(\mathbf{x})\Psi_0(\mathbf{y}) + \langle\hat{\theta}(\mathbf{x})\hat{\theta}(\mathbf{y})\rangle\right) - \langle\hat{\theta}^\dagger(\mathbf{w})\hat{\theta}^\dagger(\mathbf{z})\rangle\langle\hat{\theta}(\mathbf{x})\hat{\theta}(\mathbf{y})\rangle \\
& \underbrace{+ \langle\hat{\theta}^\dagger(\mathbf{w})\rangle\Psi_0^*(\mathbf{z})\Psi_0(\mathbf{x})\Psi_0(\mathbf{y}) + \langle\hat{\theta}^\dagger(\mathbf{z})\rangle\Psi_0^*(\mathbf{w})\Psi_0(\mathbf{x})\Psi_0(\mathbf{y})}_{\text{grisé au-dessous}} \\
& \underbrace{+ \Psi_0^*(\mathbf{w})\Psi_0^*(\mathbf{z})\Psi_0(\mathbf{x})\langle\hat{\theta}(\mathbf{y})\rangle + \Psi_0^*(\mathbf{w})\Psi_0^*(\mathbf{z})\Psi_0(\mathbf{y})\langle\hat{\theta}(\mathbf{x})\rangle}_{\text{grisé au-dessous}} \\
& \underbrace{+ \Psi_0^*(\mathbf{w})\Psi_0(\mathbf{x})\langle\hat{\theta}^\dagger(\mathbf{z})\hat{\theta}(\mathbf{y})\rangle + \Psi_0^*(\mathbf{w})\Psi_0(\mathbf{y})\langle\hat{\theta}^\dagger(\mathbf{z})\hat{\theta}(\mathbf{x})\rangle}_{\text{grisé au-dessous}} \\
& \underbrace{+ \Psi_0^*(\mathbf{z})\Psi_0(\mathbf{x})\langle\hat{\theta}^\dagger(\mathbf{w})\hat{\theta}(\mathbf{y})\rangle + \Psi_0^*(\mathbf{z})\Psi_0(\mathbf{y})\langle\hat{\theta}^\dagger(\mathbf{w})\hat{\theta}(\mathbf{x})\rangle}_{\text{grisé au-dessous}} \\
& \sum_{i \neq 0} \begin{pmatrix} \Psi_0^*(\mathbf{w})\Psi_0(\mathbf{x})\Psi_i^*(\mathbf{z})\Psi_i(\mathbf{y}) & + \Psi_0^*(\mathbf{w})\Psi_0(\mathbf{y})\Psi_i^*(\mathbf{z})\Psi_i(\mathbf{x}) \\ + \Psi_0^*(\mathbf{z})\Psi_0(\mathbf{x})\Psi_i^*(\mathbf{w})\Psi_i(\mathbf{y}) & + \Psi_0^*(\mathbf{z})\Psi_0(\mathbf{y})\Psi_i^*(\mathbf{w})\Psi_i(\mathbf{x}) \end{pmatrix} \\
& = \sum_{i \neq 0} \left(\Psi_0(\mathbf{w})\Psi_i(\mathbf{z}) + \Psi_0(\mathbf{z})\Psi_i(\mathbf{w})\right)^* \left(\Psi_0(\mathbf{x})\Psi_i(\mathbf{y}) + \Psi_0(\mathbf{y})\Psi_i(\mathbf{x})\right) \\
& \underbrace{+ \Psi_0^*(\mathbf{w})\langle\hat{\theta}^\dagger(\mathbf{z})\hat{\theta}(\mathbf{x})\hat{\theta}(\mathbf{y})\rangle + \Psi_0^*(\mathbf{z})\langle\hat{\theta}^\dagger(\mathbf{w})\hat{\theta}(\mathbf{x})\hat{\theta}(\mathbf{y})\rangle}_{\text{grisé au-dessous}} \\
& \underbrace{+ \Psi_0^*(\mathbf{x})\langle\hat{\theta}^\dagger(\mathbf{w})\hat{\theta}^\dagger(\mathbf{z})\hat{\theta}(\mathbf{y})\rangle + \Psi_0^*(\mathbf{y})\langle\hat{\theta}^\dagger(\mathbf{w})\hat{\theta}^\dagger(\mathbf{z})\hat{\theta}(\mathbf{x})\rangle}_{\text{grisé au-dessous}} \\
& \sum_{i,j,k \neq 0} \langle\hat{a}_i^\dagger \hat{a}_j \hat{a}_k\rangle \left(\Psi_0^*(\mathbf{w})\psi_i^*(\mathbf{z})\psi_j(\mathbf{x})\psi_k(\mathbf{y}) + \Psi_0^*(\mathbf{z})\psi_i^*(\mathbf{w})\psi_j(\mathbf{x})\psi_k(\mathbf{y})\right) \\
& + \sum_{i,j,k \neq 0} \langle\hat{a}_i^\dagger \hat{a}_j^\dagger \hat{a}_k\rangle \left(\Psi_0(\mathbf{x})\psi_i^*(\mathbf{w})\psi_j^*(\mathbf{z})\psi_k(\mathbf{y}) + \Psi_0(\mathbf{y})\psi_i^*(\mathbf{w})\psi_j^*(\mathbf{z})\psi_k(\mathbf{x})\right) \\
& = \sum_{i \neq 0} \left(\Psi_0(\mathbf{w})\Psi_i(\mathbf{z}) + \Psi_0(\mathbf{z})\Psi_i(\mathbf{w})\right)^* \left(\sum_{j,k \neq 0} \frac{\langle\hat{a}_i^\dagger \hat{a}_j \hat{a}_k\rangle}{\sqrt{N_i N_j N_k}} \Psi_j(\mathbf{x})\Psi_k(\mathbf{y})\right) \\
& + \sum_{k \neq 0} \left(\sum_{i,j \neq 0} \frac{\langle\hat{a}_k^\dagger \hat{a}_j \hat{a}_i\rangle}{\sqrt{N_k N_j N_i}} \Psi_j(\mathbf{w})\Psi_k(\mathbf{z})\right)^* \left(\Psi_0(\mathbf{x})\Psi_i(\mathbf{y}) + \Psi_0(\mathbf{y})\Psi_i(\mathbf{x})\right) \\
& + \langle\hat{\theta}^\dagger(\mathbf{w})\hat{\theta}^\dagger(\mathbf{z})\hat{\theta}(\mathbf{x})\hat{\theta}(\mathbf{y})\rangle
\end{aligned}$$

Encadré 3.3.1: Développement de $G(\mathbf{w}, \mathbf{z}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) = \langle\hat{\psi}^\dagger(\mathbf{w})\hat{\psi}^\dagger(\mathbf{z})\hat{\psi}(\mathbf{x})\hat{\psi}(\mathbf{y})\rangle$

Fonctions d'onde effectives à deux corps

Le calcul pour obtenir l'expression des fonctions d'ondes effectives de paire consiste simplement à écrire la matrice-densité à deux corps en seconde quantification, et à développer cette expression en utilisant la prescription de Bogolioubov $\hat{\psi} = \Psi_0 + \hat{\theta}$. Sur les 16 termes du développement, les quatre impliquant un seul opérateur $\hat{\theta}$ sont nuls, car la moyenne de $\hat{\theta}$ est nulle. Le détail des autres termes est donné dans l'encadré 3.3.1. Dans la première ligne en noir, on reconnaît les trois premiers termes du développement d'un produit de deux sommes (explicité en grisé au-dessous). L'idée essentielle est alors de factoriser ces termes, en supposant que le terme manquant du développement est en fait contenu dans le terme de corrélation résiduel en dernière ligne. Cela peut paraître arbitraire de prime abord, mais il y a plusieurs raisons qui justifient une telle hypothèse. Tout d'abord, on sait que la matrice-densité a la forme factorisée (3.125) dans sa représentation diagonale. Ensuite, une expansion de Wick (ou de manière équivalente, une expansion en cumulants) du terme de corrélation résiduel fait précisément apparaître le terme manquant au développement du produit :

$$\langle\hat{\theta}^\dagger(\mathbf{w})\hat{\theta}^\dagger(\mathbf{z})\hat{\theta}(\mathbf{x})\hat{\theta}(\mathbf{y})\rangle \approx \langle\hat{\theta}^\dagger(\mathbf{w})\hat{\theta}^\dagger(\mathbf{z})\rangle\langle\hat{\theta}(\mathbf{x})\hat{\theta}(\mathbf{y})\rangle + \langle\hat{\theta}^\dagger(\mathbf{w})\hat{\theta}(\mathbf{x})\rangle\langle\hat{\theta}^\dagger(\mathbf{z})\hat{\theta}(\mathbf{y})\rangle + \langle\hat{\theta}^\dagger(\mathbf{w})\hat{\theta}(\mathbf{y})\rangle\langle\hat{\theta}^\dagger(\mathbf{z})\hat{\theta}(\mathbf{x})\rangle$$

De la même façon, on reconnaît dans les lignes suivantes les trois premiers termes du développement d'un produit. Cela conduit à écrire la matrice-densité à deux corps sous la forme semi-factorisée :

$$\rho_2(\mathbf{w}, \mathbf{z}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) = \left(\frac{\Psi_0(\mathbf{w})\Psi_0(\mathbf{z})}{\sqrt{2}} + \Phi'_{00}(\mathbf{w}, \mathbf{z}) \right)^* \left(\frac{\Psi_0(\mathbf{x})\Psi_0(\mathbf{y})}{\sqrt{2}} + \Phi'_{00}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \right) \quad (3.128)$$

$$+ \sum_{i \neq 0}^{\infty} \left(\frac{\Psi_0(\mathbf{w})\Psi_i(\mathbf{z}) + \Psi_0(\mathbf{z})\Psi_i(\mathbf{w})}{\sqrt{2}} + \Phi'_{0i}(\mathbf{w}, \mathbf{z}) \right)^* \left(\frac{\Psi_0(\mathbf{x})\Psi_i(\mathbf{y}) + \Psi_0(\mathbf{y})\Psi_i(\mathbf{x})}{\sqrt{2}} + \Phi'_{0i}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \right) \quad (3.129)$$

$$+ \frac{1}{2} \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{w})\hat{\theta}^\dagger(\mathbf{z})\hat{\theta}(\mathbf{x})\hat{\theta}(\mathbf{y}) \rangle - \Phi'^*_{00}(\mathbf{w}, \mathbf{z})\Phi'_{00}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) - \sum_{i \neq 0}^{\infty} \Phi'^*_{0i}(\mathbf{w}, \mathbf{z})\Phi'_{0i}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \quad (3.130)$$

Avec :

$$\Phi'_{00}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = \frac{\langle \hat{\theta}(\mathbf{x})\hat{\theta}(\mathbf{y}) \rangle}{\sqrt{2}} = \sum_{j, k \neq 0} \frac{\langle \hat{a}_j \hat{a}_k \rangle}{\sqrt{2N_j N_k}} \Psi_j(\mathbf{x})\Psi_k(\mathbf{y})$$

$$\Phi'_{0i}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = \int d^3\mathbf{z} \frac{\Psi_i(\mathbf{z})\langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{z})\hat{\theta}(\mathbf{x})\hat{\theta}(\mathbf{y}) \rangle}{\sqrt{2N_i}} = \sum_{j, k \neq 0} \frac{\langle \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_j \hat{a}_k \rangle}{\sqrt{2N_i N_j N_k}} \Psi_j(\mathbf{x})\Psi_k(\mathbf{y}) \quad (\text{pour } i \neq 0)$$

Par comparaison avec la forme générale attendue (3.126), on déduit que l'on a obtenu l'expression explicite des premières fonctions d'ondes à deux corps dans le système : la fonction d'onde pour deux atomes du condensat et les fonctions d'onde pour un atome du condensat et un atome dans un état non-condensé. On peut donc écrire :

$$G(\mathbf{x}, \mathbf{w}, \mathbf{z}, \mathbf{y}) = 2\rho_2(\mathbf{x}, \mathbf{w}, \mathbf{z}, \mathbf{y}) = 2 \sum_{i, j=0}^{\infty} \Phi'^*_{ij}(\mathbf{x}, \mathbf{w})\Phi_{ij}(\mathbf{z}, \mathbf{y}) + 2 \sum_{\nu} \Phi'^*_{\nu}(\mathbf{x}, \mathbf{w})\Phi_{\nu}(\mathbf{z}, \mathbf{y}) \quad (3.131)$$

avec :

$$\Phi_{00}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = \frac{\Psi_0(\mathbf{x})\Psi_0(\mathbf{y})}{\sqrt{2}} + \Phi'_{00}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = \frac{1}{\sqrt{2}} \langle \hat{\psi}(\mathbf{x})\hat{\psi}(\mathbf{y}) \rangle$$

$$\Phi_{0i}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = \frac{\Psi_0(\mathbf{x})\Psi_i(\mathbf{y}) + \Psi_0(\mathbf{y})\Psi_i(\mathbf{x})}{\sqrt{2}} + \Phi'_{0i}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \quad (i \neq 0)$$

En revanche, on n'obtient pas d'expression explicite pour les modes suivants, c'est-à-dire les fonctions d'onde $\Phi_{i \neq 0, j \neq 0}$ pour deux atomes dans des états non-condensés, et les fonctions d'onde Φ_{ν} pour des paires d'atomes liés (s'il y en a). On suppose que ces fonctions sont contenues dans le dernier terme non-diagonalisé (3.130).

Il convient de noter que Φ_{00} est directement reliée à la corrélation anormale Φ définie par (4.21). On obtient donc une interprétation "physique" plus claire de cette corrélation : c'est la fonction d'onde de diffusion de deux atomes condensés. Φ_{00} constitue par ailleurs la contribution principale à la matrice-densité à deux corps, avec un nombre d'occupation $\int |\Phi_{00}|^2 \sim \frac{N_0^2}{2}$ correspondant au nombre de paires d'atomes condensés. La condensation, qui a été définie à partir des modes individuels du système, se retrouve donc aussi au niveau des comportements de paire : dans un système condensé, la plupart des paires d'atomes sont dans le même état (autrement dit, un condensat d'atomes est aussi un condensat de paires d'atomes).

$$\Phi_{00} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{array}{c} \Psi_0 \\ \circ \end{array} \cdots \begin{array}{c} \Psi_0 \\ \circ \end{array}$$

$$\Phi_{0i} = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\begin{array}{c} \Psi_0 \\ \circ \end{array} \cdots \begin{array}{c} \Psi_i \\ \bullet \end{array} + \begin{array}{c} \Psi_i \\ \bullet \end{array} \cdots \begin{array}{c} \Psi_0 \\ \circ \end{array} \right)$$

FIG. 3.2 – Représentation schématique des premières fonctions d'onde effective à deux corps (fonctions d'onde de paire).

Voyons maintenant comment les fonctions de paire obtenues permettent d'exprimer la moyenne K (4.24). Comme précédemment, on développe K en utilisant la prescription de Bogolioubov :

$$\begin{aligned} \langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{x}) \hat{\psi}(\mathbf{y}) \hat{\psi}(\mathbf{z}) \rangle &= \Psi_0^*(\mathbf{x}) \underbrace{\langle \hat{\psi}(\mathbf{y}) \hat{\psi}(\mathbf{z}) \rangle}_{\sqrt{2}\Phi_{00}(\mathbf{y}, \mathbf{z})} \\ &+ \Psi_0(\mathbf{z}) \underbrace{\langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{x}) \hat{\theta}(\mathbf{y}) \rangle}_{\sum_{i \neq 0} \Psi_i^*(\mathbf{x}) \Psi_i(\mathbf{y})} + \Psi_0(\mathbf{y}) \underbrace{\langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{x}) \hat{\theta}(\mathbf{z}) \rangle}_{\sum_{i \neq 0} \Psi_i^*(\mathbf{x}) \Psi_i(\mathbf{z})} + \underbrace{\langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{x}) \hat{\theta}(\mathbf{y}) \hat{\theta}(\mathbf{z}) \rangle}_{\sum_{ij, k \neq 0} \langle \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_j \hat{a}_k \rangle \psi_i^*(\mathbf{x}) \psi_j(\mathbf{y}) \psi_k(\mathbf{z})} \\ &= \sqrt{2} \Psi_0^*(\mathbf{x}) \Phi_{00}(\mathbf{y}, \mathbf{z}) \\ &+ \sqrt{2} \sum_{i \neq 0} \Psi_i^*(\mathbf{x}) \left(\frac{\Psi_0(\mathbf{y}) \Psi_i(\mathbf{z}) + \Psi_0(\mathbf{z}) \Psi_i(\mathbf{y})}{\sqrt{2}} + \sum_{j, k \neq 0} \frac{\langle \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_j \hat{a}_k \rangle}{\sqrt{2N_i N_j N_k}} \Psi_j(\mathbf{y}) \Psi_k(\mathbf{z}) \right) \end{aligned}$$

K s'exprime donc de manière exacte :

$$K(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{z}) = \sqrt{2} \sum_{i=0}^{\infty} \Psi_i^*(\mathbf{x}) \cdot \Phi_{0i}(\mathbf{y}, \mathbf{z}) \quad (3.132)$$

Fonctions d'onde effectives à trois corps

De manière similaire, l'expansion de la moyenne F (4.25) va naturellement introduire des fonctions d'onde effectives à trois corps. Le développement est détaillé dans l'encadré 3.3.2. On a développé le dernier terme sous la forme de son développement de Wick, plus un terme résiduel $\langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{w}) \hat{\theta}(\mathbf{z}) \hat{\theta}(\mathbf{x}) \hat{\theta}(\mathbf{y}) \rangle^c$, si bien que l'expression obtenue est équivalente à un développement en cumulants. En factorisant les différentes contributions, on peut mettre $F(\mathbf{w}, \mathbf{z}, \mathbf{x}, \mathbf{y})$ sous la forme :

$$\begin{aligned} &\Psi_0^*(\mathbf{w}) \left(\Psi_0(\mathbf{z}) \Psi_0(\mathbf{x}) \Psi_0(\mathbf{y}) (1 + \varphi'_{00}(\mathbf{z}, \mathbf{x}) + \varphi'_{00}(\mathbf{z}, \mathbf{y}) + \varphi'_{00}(\mathbf{x}, \mathbf{y})) + \langle \hat{\theta}(\mathbf{z}) \hat{\theta}(\mathbf{x}) \hat{\theta}(\mathbf{y}) \rangle^c \right) \\ &+ \sum_{i \neq 0} \Psi_i^*(\mathbf{w}) \left(\begin{array}{l} \Psi_i(\mathbf{z}) \Psi_0(\mathbf{x}) \Psi_0(\mathbf{y}) (1 + \varphi'_{0i}(\mathbf{z}, \mathbf{x}) + \varphi'_{0i}(\mathbf{z}, \mathbf{y}) + \varphi'_{00}(\mathbf{x}, \mathbf{y})) \\ + \Psi_i(\mathbf{y}) \Psi_0(\mathbf{z}) \Psi_0(\mathbf{x}) (1 + \varphi'_{00}(\mathbf{z}, \mathbf{x}) + \varphi'_{0i}(\mathbf{z}, \mathbf{y}) + \varphi'_{0i}(\mathbf{x}, \mathbf{y})) \\ + \Psi_i(\mathbf{x}) \Psi_0(\mathbf{z}) \Psi_0(\mathbf{y}) (1 + \varphi'_{0i}(\mathbf{z}, \mathbf{x}) + \varphi'_{00}(\mathbf{z}, \mathbf{y}) + \varphi'_{0i}(\mathbf{x}, \mathbf{y})) \end{array} \right) + \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{w}) \hat{\theta}(\mathbf{z}) \hat{\theta}(\mathbf{x}) \hat{\theta}(\mathbf{y}) \rangle^c \end{aligned}$$

À nouveau, le point essentiel est de reconnaître dans chaque ligne les quatre premiers termes du développement d'un produit. Par exemple :

$$\varphi_{0i}(\mathbf{z}, \mathbf{x}) \cdot \varphi_{0i}(\mathbf{z}, \mathbf{y}) \cdot \varphi_{00}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = 1 + \varphi'_{0i}(\mathbf{z}, \mathbf{x}) + \varphi'_{0i}(\mathbf{z}, \mathbf{y}) + \varphi'_{00}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + \dots \text{termes suivants} \quad (3.133)$$

$$\begin{aligned}
&= \Psi_0^*(\mathbf{w}) \underbrace{\langle \hat{\psi}(\mathbf{z}) \hat{\psi}(\mathbf{x}) \hat{\psi}(\mathbf{y}) \rangle}_{\Omega(\mathbf{z}, \mathbf{x}, \mathbf{y})} \\
&\quad \Omega(\mathbf{z}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) = \Psi_0(\mathbf{z}) \Psi_0(\mathbf{x}) \Psi_0(\mathbf{y}) \\
&\quad \quad + \Psi_0(\mathbf{z}) \langle \hat{\theta}(\mathbf{x}) \hat{\theta}(\mathbf{y}) \rangle + \Psi_0(\mathbf{x}) \langle \hat{\theta}(\mathbf{z}) \hat{\theta}(\mathbf{y}) \rangle + \Psi_0(\mathbf{y}) \langle \hat{\theta}(\mathbf{z}) \hat{\theta}(\mathbf{x}) \rangle \\
&\quad \quad + \langle \hat{\theta}(\mathbf{z}) \hat{\theta}(\mathbf{x}) \hat{\theta}(\mathbf{y}) \rangle \\
&+ \underbrace{\langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{w}) \hat{\theta}(\mathbf{z}) \rangle \Psi_0(\mathbf{x}) \Psi_0(\mathbf{y}) + \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{w}) \hat{\theta}(\mathbf{x}) \rangle \Psi_0(\mathbf{z}) \Psi_0(\mathbf{y}) + \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{w}) \hat{\theta}(\mathbf{y}) \rangle \Psi_0(\mathbf{z}) \Psi_0(\mathbf{x})}_{\sum_{i \neq 0} \Psi_i^*(\mathbf{w}) \left(\Psi_i(\mathbf{z}) \Psi_0(\mathbf{x}) \Psi_0(\mathbf{y}) + \Psi_i(\mathbf{x}) \Psi_0(\mathbf{z}) \Psi_0(\mathbf{y}) + \Psi_i(\mathbf{y}) \Psi_0(\mathbf{z}) \Psi_0(\mathbf{x}) \right)} \\
&+ \underbrace{\langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{w}) \hat{\theta}(\mathbf{z}) \hat{\theta}(\mathbf{x}) \rangle \Psi_0(\mathbf{y}) + \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{w}) \hat{\theta}(\mathbf{z}) \hat{\theta}(\mathbf{y}) \rangle \Psi_0(\mathbf{x}) + \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{w}) \hat{\theta}(\mathbf{x}) \hat{\theta}(\mathbf{y}) \rangle \Psi_0(\mathbf{z})}_{\sum_{i \neq 0} \Psi_i^*(\mathbf{w}) \left(\begin{array}{l} \Psi_i(\mathbf{z}) \Psi_0(\mathbf{x}) + \Psi_i(\mathbf{x}) \Psi_0(\mathbf{z}) \\ \Psi_i(\mathbf{z}) \Psi_0(\mathbf{y}) + \Psi_i(\mathbf{y}) \Psi_0(\mathbf{z}) \\ \Psi_i(\mathbf{x}) \Psi_0(\mathbf{y}) + \Psi_i(\mathbf{y}) \Psi_0(\mathbf{x}) \end{array} \right) \varphi'_{0i}(\mathbf{z}, \mathbf{x}) \Psi_0(\mathbf{y})} \\
&+ \underbrace{\langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{w}) \hat{\theta}(\mathbf{z}) \hat{\theta}(\mathbf{x}) \hat{\theta}(\mathbf{y}) \rangle}_{\langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{w}) \hat{\theta}(\mathbf{z}) \hat{\theta}(\mathbf{x}) \hat{\theta}(\mathbf{y}) \rangle^c} \\
&\quad + \underbrace{\langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{w}) \hat{\theta}(\mathbf{z}) \rangle \langle \hat{\theta}(\mathbf{x}) \hat{\theta}(\mathbf{y}) \rangle + \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{w}) \hat{\theta}(\mathbf{x}) \rangle \langle \hat{\theta}(\mathbf{z}) \hat{\theta}(\mathbf{y}) \rangle + \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{w}) \hat{\theta}(\mathbf{y}) \rangle \langle \hat{\theta}(\mathbf{z}) \hat{\theta}(\mathbf{x}) \rangle}_{\sum_{i \neq 0} \Psi_i^*(\mathbf{w}) \left(\begin{array}{l} \Psi_i(\mathbf{z}) \Psi_0(\mathbf{x}) \Psi_0(\mathbf{y}) \varphi'_{0i}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \\ + \Psi_i(\mathbf{y}) \Psi_0(\mathbf{z}) \Psi_0(\mathbf{x}) \varphi'_{0i}(\mathbf{z}, \mathbf{x}) \\ + \Psi_i(\mathbf{x}) \Psi_0(\mathbf{z}) \Psi_0(\mathbf{y}) \varphi'_{0i}(\mathbf{z}, \mathbf{y}) \end{array} \right)}
\end{aligned}$$

Encadré 3.3.2: Développement de $\langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{w}) \hat{\psi}(\mathbf{z}) \hat{\psi}(\mathbf{x}) \hat{\psi}(\mathbf{y}) \rangle$

Pour des interactions arbitrairement fortes, on s'attend à ce que ce produit soit la contribution à retenir en priorité. En effet, on sait que pour de telles interactions, la probabilité de trouver deux atomes à des distances arbitrairement proches tend vers zéro, ce qui se traduit par :

$$\varphi(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \xrightarrow{|\mathbf{x}-\mathbf{y}| \rightarrow 0} 0 \quad \text{ie } \varphi'(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \xrightarrow{|\mathbf{x}-\mathbf{y}| \rightarrow 0} -1$$

Cette propriété reste vraie pour trois atomes : la probabilité de trouver trois atomes très proches les uns des autres tend vers zéro. Cette idée se retrouve dans la fonction d'onde à N corps approchée de R. Jastrow [Jastrow1955] factorisée en fonctions à deux atomes, ainsi que dans la notion de « blessures » de la fonction d'onde à N corps discutée par K. Huang [Huang1987].

Si l'on se fie aux quatre premiers termes du développement (second membre de la relation (3.133)) et qu'on les évalue pour $\mathbf{x}=\mathbf{y}=\mathbf{z}$, on trouve -2, alors que le terme factorisé dans le premier membre donne bien zéro. On est donc conduit faire apparaître ce terme factorisé et à rejeter les derniers termes du développement dans les corrélations résiduelles. On peut alors mettre F sous la forme :

$$F(\mathbf{w}, \mathbf{z}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) = \sqrt{3!} \sum_{i=0}^{\infty} \Psi_i^*(\mathbf{w}) \cdot \Omega_{00i}(\mathbf{z}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) \quad (3.134)$$

Avec les fonctions d'onde effectives à trois corps :

$$\begin{aligned}
 \Omega_{000}(\mathbf{z}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) &\equiv \frac{1}{\sqrt{3!}} \Psi_0(\mathbf{z}) \Psi_0(\mathbf{x}) \Psi_0(\mathbf{y}) \varphi_{00}(\mathbf{z}, \mathbf{x}) \varphi_{00}(\mathbf{z}, \mathbf{y}) \varphi_{00}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + \Omega'_{000}(\mathbf{z}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) \\
 \Omega_{00i}(\mathbf{z}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) &\equiv \frac{1}{\sqrt{3!}} \left(\begin{aligned} &\Psi_i(\mathbf{z}) \Psi_0(\mathbf{x}) \Psi_0(\mathbf{y}) \varphi_{0i}(\mathbf{z}, \mathbf{x}) \varphi_{0i}(\mathbf{z}, \mathbf{y}) \varphi_{00}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \\ &+ \Psi_i(\mathbf{y}) \Psi_0(\mathbf{z}) \Psi_0(\mathbf{x}) \varphi_{00}(\mathbf{z}, \mathbf{x}) \varphi_{0i}(\mathbf{z}, \mathbf{y}) \varphi_{0i}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \\ &+ \Psi_i(\mathbf{x}) \Psi_0(\mathbf{z}) \Psi_0(\mathbf{y}) \varphi_{0i}(\mathbf{z}, \mathbf{x}) \varphi_{00}(\mathbf{z}, \mathbf{y}) \varphi_{0i}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \end{aligned} \right) + \Omega'_{00i}(\mathbf{z}, \mathbf{x}, \mathbf{y})
 \end{aligned}
 \tag{3.135}$$

où les Ω' correspondent aux corrélations résiduelles. L'interprétation de ces fonctions d'onde à trois corps est claire (voir figure 3.3). $\Omega_{000} = \frac{1}{\sqrt{3!}} \langle \hat{\psi}(\mathbf{z}) \hat{\psi}(\mathbf{x}) \hat{\psi}(\mathbf{y}) \rangle$ est la fonction d'onde pour trois atomes dans l'état condensé ; c'est le comportement de triplet prépondérant dans le système condensé. Ω_{00i} est la fonction d'onde pour deux atomes condensés et un atome dans l'état non-condensé i . L'expression de ces fonctions est naturelle : la partie explicite est construite à partir des fonctions d'onde individuelles, corrélée par le produit de toutes les corrélations de paire, et symétrisée. La partie implicite (les Ω') est censée traduire les corrélations à trois corps ne pouvant se construire à partir des corrélations de paire.

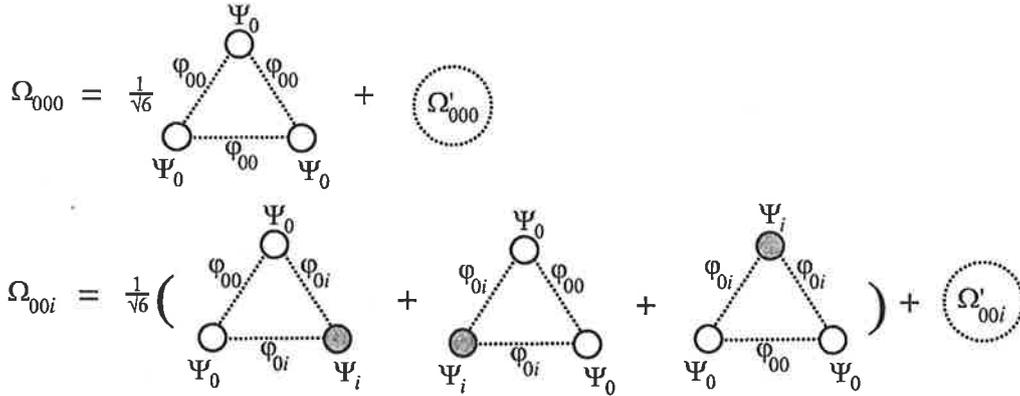


FIG. 3.3 – Représentation schématique des premières fonctions d'onde effectives à trois corps (3.135).

Équations d'évolution

Si l'on reprend maintenant les équations d'évolution exactes (3.34-3.35) que nous avons considérées précédemment et qu'on les réécrit à l'aide des fonctions d'onde effectives, on obtient :

$$i\hbar \frac{\partial \Psi_0}{\partial t}(\mathbf{x}) = H_x \Psi_0(\mathbf{x}) + \sqrt{2} \sum_{i=0}^{\infty} \int d^3 \mathbf{z} \Psi_i^*(\mathbf{z}) U(\mathbf{x}-\mathbf{z}) \Phi_{0i}(\mathbf{z}, \mathbf{x}) \tag{3.136}$$

$$i\hbar \frac{\partial \Phi_{00}}{\partial t}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = [H_y + H_x + U(\mathbf{x}-\mathbf{y})] \Phi_{00}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + \sqrt{3} \sum_{i=0}^{\infty} \left[\int d^3 \mathbf{z} \Psi_i^*(\mathbf{z}) U(\mathbf{z}-\mathbf{y}) \Omega_{00i}(\mathbf{z}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) \right]_{+\{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\}} \tag{3.137}$$

$$i\hbar \frac{\partial R}{\partial t}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = [H_y - H_x] R(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + 2 \sum_{i,j=0}^{\infty} \left[\int d^3 \mathbf{z} \Phi_{ij}^*(\mathbf{x}, \mathbf{z}) U(\mathbf{z}-\mathbf{y}) \Phi_{ij}(\mathbf{z}, \mathbf{y}) \right]_{-\{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\}^*} \tag{3.138}$$

Ces équations ont une interprétation très simple. L'équation (3.136) donne l'évolution de la fonction d'onde pour un atome condensé : le premier terme du second membre correspond à son évolution individuelle sous l'action de l'hamiltonien à un corps H_x , et le second terme

(intégral) correspond à un “champ moyen” dû aux interactions avec les autres atomes. Ce champ moyen reçoit une contribution de chaque diffusion de l’atome condensé avec un atome dans un autre mode quelconque, comme le suggère la somme sur tous les modes. Ces différentes contributions ont une forme rappelant une amplitude de diffusion, faisant intervenir la fonction d’onde individuelle de l’atome diffusé, le potentiel d’interaction et la fonction d’onde des deux atomes en interaction.

De manière similaire, l’équation (3.137) donne l’évolution de la fonction d’onde pour une paire d’atomes condensés. Le premier terme du second membre correspond à l’évolution de la paire isolée du reste du système, alors que le second terme correspond au champ moyen dû aux interactions entre la paire et le milieu. Ici encore, le champ moyen reçoit une contribution pour chaque collision de la paire condensée avec un autre atome dans l’état i , faisant intervenir la fonction d’onde à trois corps Ω_{00i} .

Jusqu’à présent, nous n’avons pas fait d’approximations essentielles, et les manipulations précédentes n’ont été qu’un jeu de réécriture des équations exactes en termes de fonctions d’onde. Malgré leur élégance, les équations (3.136-3.138) ne suffisent pas pour résoudre la dynamique du condensat. Il nous manque en effet les équations d’évolution des fonctions d’onde Φ_{0i} pour un atome condensé et un atome non-condensé, ainsi que des fonctions d’onde Ω_{00i} pour deux atomes condensés et un atome non-condensé. Si nous cherchons la forme explicite de ces équations, nous verrons apparaître de nouvelles fonctions d’onde à 4, 5 corps. Comme toujours, il faut tronquer le système infini d’équations. L’intérêt d’avoir écrit les équations exactes en termes de fonctions d’onde effectives est de nous guider dans la manière de tronquer les équations, notamment en nous assurant que la troncation est compatible avec l’utilisation de potentiels arbitrairement forts à courte distance.

3.3.1.3 Approximation de Hartree-Fock-Bogolioubov

Revenons tout d’abord sur l’approximation de Hartree-Fock-Bogolioubov (3.2.3). On peut maintenant interpréter cette approximation en termes de fonctions d’onde effectives. On peut en effet retrouver (3.95) à partir des expressions générales (3.131-3.132-3.134) en faisant l’approximation :

$$\boxed{\Phi'_{ij}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \approx 0} \quad \text{pour } i \neq 0 \text{ ou } j \neq 0$$

$$\text{et } \Phi_\nu(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \approx 0 \quad \forall \nu$$

Autrement dit, on permet à deux atomes condensés de se corrélérer du fait de leur interaction, mais on néglige les corrélations pour toutes les paires faisant intervenir au moins un atome non-condensé. Cette interprétation rejoint l’idée initiale de considérer que les atomes non-condensés forment un gaz parfait (sans corrélations), conduisant aux développements de Wick (3.92-3.94). On comprend que cette approximation n’est pas satisfaisante pour une interaction forte, car les termes faisant intervenir les atomes non-condensés deviennent divergents, puisqu’il manque la corrélation régularisant le potentiel.

3.3.1.4 Approximation de paire

Pour tenir compte de l’influence des atomes non-condensés de manière satisfaisante avec un potentiel fort, il faut aller au-delà de l’approximation de Hartree-Fock-Bogolioubov. Par exemple, si on se limite à l’influence des collisions entre atomes condensés et atomes non-condensés, il faut inclure explicitement les termes Φ'_{0i} (ou, ce qui revient au même, les fonctions de paire réduites φ_{0i}) dans les équations. Malheureusement, nous n’avons pas d’équation d’évolution pour ces quantités. Nous allons donc supposer que l’ensemble des corrélations du système peut

se construire à partir de la fonction d'onde de paire réduite φ entre deux atomes condensés :

$$\varphi(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \equiv \varphi_{00}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = \frac{\langle \hat{\psi}(\mathbf{x}) \hat{\psi}(\mathbf{y}) \rangle}{\langle \hat{\psi}(\mathbf{x}) \rangle \langle \hat{\psi}(\mathbf{y}) \rangle}$$

Cela conduit à faire les approximations suivantes :

$$\begin{aligned} \varphi_{0i} &\approx \varphi \\ \Omega'_{000} &\approx 0 \\ \Omega'_{00i} &\approx 0 \end{aligned}$$

Cela signifie qu'on suppose d'une part que la corrélation entre un atome condensé et un atome non-condensé est la même qu'entre deux atomes condensés, et on néglige d'autre part les corrélations à 3 corps ne se construisant pas à partir des corrélations de paire. On peut exprimer ces approximations sur les fonctions K , F et G :

<i>Approximations de paire</i>	
$K(\mathbf{w}, \mathbf{z}, \mathbf{y}) \approx \Psi^*(\mathbf{w})\Phi(\mathbf{z}, \mathbf{y}) \left(1 + r'(\mathbf{w}, \mathbf{z}) + r'(\mathbf{w}, \mathbf{y}) \right)$	(a)
$G(\mathbf{x}, \mathbf{w}, \mathbf{z}, \mathbf{y}) \approx \Phi^*(\mathbf{x}, \mathbf{w})\Phi(\mathbf{z}, \mathbf{y}) \left(1 + r'(\mathbf{w}, \mathbf{z}) + r'(\mathbf{w}, \mathbf{y}) + r'(\mathbf{x}, \mathbf{z}) + r'(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \right)$	(b)
$F(\mathbf{w}, \mathbf{z}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) \approx \Psi^*(\mathbf{w}) \frac{\Phi(\mathbf{z}, \mathbf{x})\Phi(\mathbf{z}, \mathbf{y})\Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y})}{\Psi(\mathbf{x})\Psi(\mathbf{y})\Psi(\mathbf{z})} \left(1 + r'(\mathbf{w}, \mathbf{z}) + r'(\mathbf{w}, \mathbf{x}) + r'(\mathbf{w}, \mathbf{y}) \right)$	(c)

(3.139)

où l'on a posé : $r'(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = \frac{R'(\mathbf{x}, \mathbf{y})}{\Psi^*(\mathbf{x})\Psi(\mathbf{y})}$. Notons que ces approximations respectent toutes les symétries des quantités K , F et G vis-à-vis des positions \mathbf{w} , \mathbf{x} , \mathbf{y} et \mathbf{z} . On obtient pour F' et G' :

$$\begin{aligned} G'(\mathbf{x}, \mathbf{w}, \mathbf{z}, \mathbf{y}) &\approx \Phi'^*(\mathbf{x}, \mathbf{w})\Phi(\mathbf{z}, \mathbf{y}) \left(1 + r'(\mathbf{x}, \mathbf{z}) + r'(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + r'(\mathbf{w}, \mathbf{z}) + r'(\mathbf{w}, \mathbf{y}) \right) \\ &\quad + \Psi^*(\mathbf{x})\Psi^*(\mathbf{w})\Phi(\mathbf{z}, \mathbf{y}) \left(r'(\mathbf{x}, \mathbf{z}) + r'(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \right) \\ F'(\mathbf{w}, \mathbf{z}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) &\approx \Psi^*(\mathbf{w})\Phi(\mathbf{z}, \mathbf{y}) \left(\frac{\Phi'(\mathbf{x}, \mathbf{y})}{\Psi(\mathbf{y})} + \frac{\Phi'(\mathbf{z}, \mathbf{x})}{\Psi(\mathbf{z})} + \frac{\Phi'(\mathbf{z}, \mathbf{x})\Phi'(\mathbf{x}, \mathbf{y})}{\Psi(\mathbf{x})\Psi(\mathbf{y})\Psi(\mathbf{z})} \right) \left(1 + r'(\mathbf{w}, \mathbf{z}) + r'(\mathbf{w}, \mathbf{x}) + r'(\mathbf{w}, \mathbf{y}) \right) \\ &\quad + \Psi^*(\mathbf{w})\Phi(\mathbf{z}, \mathbf{y})\Psi(\mathbf{x})r'(\mathbf{w}, \mathbf{x}) \end{aligned} \quad (3.140)$$

Avec ces approximations, la fonction de paire réduite φ obéit à l'équation suivante :

$$i\hbar \frac{\partial \varphi}{\partial t}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = \left[-\frac{\hbar^2}{2m} (\nabla_y^2 + \nabla_x^2) + U(\mathbf{x} - \mathbf{y}) + \mathcal{C}_y + \mathcal{C}_x + \mathcal{M}_y + \mathcal{M}_x \right] \varphi(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \quad (3.141)$$

avec :

$$\begin{aligned} \mathcal{C}_y &= -\frac{\hbar^2}{m} \vec{\nabla}_y \ln \Psi(\mathbf{y}) \cdot \vec{\nabla}_y \\ \mathcal{M}_y &= \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{z} - \mathbf{y}) \varphi(\mathbf{z}, \mathbf{y}) |\Psi(\mathbf{z})|^2 \left(\varphi'(\mathbf{z}, \mathbf{x}) \{ 1 + r'(\mathbf{z}, \mathbf{z}) + r'(\mathbf{z}, \mathbf{x}) + r'(\mathbf{z}, \mathbf{y}) \} + r'(\mathbf{z}, \mathbf{x}) \right) \end{aligned}$$

Sans les quantités \mathcal{C}_y et \mathcal{M}_y , l'équation sur φ est simplement l'équation de Schrödinger à deux corps interagissant (dans le vide) avec le potentiel U . Notons en particulier que le potentiel de piégeage n'apparaît plus explicitement. En revanche, il se fait sentir par l'intermédiaire de la fonction d'onde du condensat qui induit les termes de courbure \mathcal{C}_y et de champ-moyen \mathcal{M}_y .

3.3.1.5 Approximation de paire et analogie avec Bogolioubov : prescription de l'interaction effective

À présent, le système peut-être décrit totalement par les variables Ψ , Φ et R' , comme dans le modèle de Bogolioubov. Il serait intéressant de trouver un cas-limite qui généraliserait les équations de Bogolioubov. En particulier, on aimerait trouver une relation analogue à (3.79) entre la distribution R' des modes non-condensés et la la corrélation de paire Φ' . Cela permettrait de s'affranchir de calculer R' explicitement, par exemple, et garantirait la positivité des nombres d'occupation des modes non-condensés à tout instant. En comparant attentivement les termes des approximations (3.139-3.140) avec ceux de (3.76), on est conduit à retenir les termes suivants (les termes qu'on néglige dans les relations (3.140) ont été indiqués en grisé) :

Approximations de paire + Analogie Bogolioubov

$$K(\mathbf{w}, \mathbf{z}, \mathbf{y}) \approx \Psi^*(\mathbf{w})\Phi(\mathbf{z}, \mathbf{y}) + \frac{\Phi(\mathbf{z}, \mathbf{y})}{\Psi(\mathbf{z})} R'(\mathbf{w}, \mathbf{z}) + \frac{\Phi(\mathbf{z}, \mathbf{y})}{\Psi(\mathbf{y})} R'(\mathbf{w}, \mathbf{y}) \quad (a)$$

$$F'(\mathbf{w}, \mathbf{z}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) \approx \underbrace{R'(\mathbf{w}, \mathbf{x})\Phi(\mathbf{z}, \mathbf{y})}_{F1} + \underbrace{\frac{\Psi^*(\mathbf{w})\Phi(\mathbf{z}, \mathbf{y})}{\Psi(\mathbf{z})} \Phi'(\mathbf{x}, \mathbf{z})}_{F2} + \underbrace{\frac{\Psi^*(\mathbf{w})\Phi(\mathbf{z}, \mathbf{y})}{\Psi(\mathbf{y})} \Phi'(\mathbf{x}, \mathbf{y})}_{F3} \quad (b)$$

$$G'(\mathbf{x}, \mathbf{w}, \mathbf{z}, \mathbf{y}) \approx \underbrace{\Phi'^*(\mathbf{x}, \mathbf{w})\Phi(\mathbf{z}, \mathbf{y})}_{G1} + \underbrace{\frac{\Psi^*(\mathbf{w})\Phi(\mathbf{z}, \mathbf{y})}{\Psi(\mathbf{z})} R'(\mathbf{x}, \mathbf{z})}_{G2} + \underbrace{\frac{\Psi^*(\mathbf{w})\Phi(\mathbf{z}, \mathbf{y})}{\Psi(\mathbf{y})} R'(\mathbf{x}, \mathbf{y})}_{G3} \quad (c)$$

(3.142)

Cela conduit aux équations suivantes :

$$i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t}(\mathbf{x}) = \left(H_x + M(\mathbf{x}) + M'(\mathbf{x}) \right) \Psi(\mathbf{x}) \quad (3.143)$$

$$i\hbar \frac{\partial \Phi'}{\partial t}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = \left(H_y + M(\mathbf{y}) + H_x + M(\mathbf{x}) \right) \Phi'(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + U(\mathbf{x}-\mathbf{y})\Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \leftarrow F3 \quad (3.144)$$

$$+ \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{y}-\mathbf{z}) \frac{\Psi^*(\mathbf{z})\Phi(\mathbf{z}, \mathbf{y})}{\Psi(\mathbf{z})} \Phi'(\mathbf{x}, \mathbf{z}) + \{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\} \leftarrow F2$$

$$+ \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{y}-\mathbf{z}) \Phi(\mathbf{z}, \mathbf{y}) R'(\mathbf{z}, \mathbf{x}) + \{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\} \leftarrow F1$$

$$i\hbar \frac{\partial R'}{\partial t}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = \left(H_y + M(\mathbf{y}) - H_x - M^*(\mathbf{x}) \right) R'(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \leftarrow G3 \quad (3.145)$$

$$+ \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{y}-\mathbf{z}) \frac{\Psi^*(\mathbf{z})\Phi(\mathbf{z}, \mathbf{y})}{\Psi(\mathbf{z})} R'(\mathbf{x}, \mathbf{z}) - \{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\}^* \leftarrow G'2$$

$$+ \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{y}-\mathbf{z}) \Phi(\mathbf{z}, \mathbf{y}) \Phi'^*(\mathbf{z}, \mathbf{x}) - \{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\}^* \leftarrow G1$$

avec les potentiels de champ moyen :

$$M(\mathbf{x}) = \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{x}-\mathbf{z}) \frac{\Psi^*(\mathbf{z})\Phi(\mathbf{z}, \mathbf{x})}{\Psi(\mathbf{x})} = \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{x}-\mathbf{z}) \varphi(\mathbf{x}-\mathbf{z}) |\Psi(\mathbf{z})|^2 \quad (3.146)$$

$$M'(\mathbf{x}) = \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{x}-\mathbf{z}) \varphi(\mathbf{x}-\mathbf{z}) \left(R'(\mathbf{z}, \mathbf{z}) + \frac{\Psi(\mathbf{z})}{\Psi(\mathbf{x})} R'(\mathbf{z}, \mathbf{x}) \right) \quad (3.147)$$

Le potentiel M correspond au champ moyen subi par les atomes condensés sous l'influence des autres atomes condensés, alors que le potentiel M' correspond au champ moyen subi par les atomes condensés sous l'influence des atomes non-condensés.

On constate que les équations (3.144-3.145) s'obtiennent directement à partir des équations de Bogolioubov (3.74-3.75), en remplaçant partout le potentiel « nu » $U(\mathbf{x}-\mathbf{y})$ par le potentiel

« effectif » :

$$\mathcal{U}(\mathbf{x} - \mathbf{y}) = U(\mathbf{x} - \mathbf{y})\varphi(\mathbf{x}, \mathbf{y})$$

Cela semble très raisonnable à première vue, car la fonction de paire réduite φ vient « adoucir » le potentiel. En particulier, $\varphi(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \rightarrow 0$ quand $|\mathbf{x} - \mathbf{y}| \rightarrow 0$, de telle sorte que le mur répulsif du potentiel U à courte distance est annulé. On s'attend à ce que le potentiel \mathcal{U} ait toujours une transformée de Fourier, contrairement à U , et soit suffisamment « doux » pour satisfaire l'approximation de Born. C'est un donc un potentiel adapté au modèle de Bogolioubov. Par ailleurs, sa longueur de diffusion à l'approximation de Born $\frac{m}{4\pi\hbar^2} \int d^3\mathbf{x} \mathcal{U}(\mathbf{x}) = \frac{m}{4\pi\hbar^2} \int d^3\mathbf{x} U(\mathbf{x} - \mathbf{y})\varphi(\mathbf{x}, \mathbf{y})$ est égale à la longueur d'onde de diffusion exacte du potentiel U d'après la formule (2.12), à condition que φ se rapproche à courte distance de la solution du problème stationnaire à deux corps. La formule (3.141) laisse penser que c'est le cas, tout au moins dans les situations *ne dépendant pas trop du temps*, où φ est supposée quasi-stationnaire. L'équation (3.143) sur la fonction d'onde du condensat est alors donnée par :

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t}(\mathbf{x}) &= \left[H_x + \int d^3\mathbf{z} \mathcal{U}(\mathbf{x} - \mathbf{z}) |\Psi(\mathbf{z})|^2 + \int d^3\mathbf{z} \mathcal{U}(\mathbf{x} - \mathbf{z}) \left(R'(\mathbf{z}, \mathbf{z}) + \frac{\Psi(\mathbf{z})}{\Psi(\mathbf{x})} R'(\mathbf{z}, \mathbf{x}) \right) \right] \Psi(\mathbf{x}) \\ &\approx \left(H_x + \frac{4\pi\hbar^2 a}{m} |\Psi(\mathbf{x})|^2 \right) \Psi(\mathbf{x}) \end{aligned}$$

où l'on a négligé l'influence des atomes non-condensés (termes R') et les variations de la fonction d'onde du condensat à l'échelle du potentiel d'interaction. On justifie ainsi l'équation de Gross-Pitaevskiï (3.47) pour une interaction arbitrairement forte.

Relation entre modes non-condensés et corrélation de paire

Dans les situations *ne dépendant pas trop fortement du temps*, la prescription $U \rightarrow \mathcal{U}$ dans les équations de Bogolioubov implique le remplacement de la longueur de diffusion à l'approximation de Born a_0 par la longueur de diffusion exacte a , de la même manière que lorsqu'on remplace le potentiel U par une interaction de contact effective U_δ . Cette analyse a été confirmée dans le régime stationnaire (cf. résultats de [Cherny2001, Leggett2003]). Cependant, il existe deux différences fondamentales entre l'interaction effective \mathcal{U} et l'interaction de contact effective U_δ .

D'une part, la transformée de Fourier $\tilde{\mathcal{U}}(\mathbf{k})$ tend vers zéro pour les grandes impulsions \mathbf{k} , alors $\tilde{U}_\delta(\mathbf{k}) = g$ est indépendant de l'impulsion. L'interaction effective U_δ conduit donc à des problèmes de divergences ultraviolettes, ce qui n'est pas avec l'interaction effective \mathcal{U} , pour laquelle toutes les quantités restent finies.

D'autre part, dans les situations dépendant plus fortement du temps, la fonction d'onde de paire réduite φ peut être amenée à évoluer et prendre des valeurs complexes. Par conséquent, \mathcal{U} peut aussi dépendre du temps et prendre des valeurs complexes. Ce n'est pas le cas de U_δ qui reste inchangé au cours du temps. Cela peut avoir des conséquences très importantes sur la dynamique du système. Par exemple, bien que les équations (3.144-3.145) soient formellement complètement similaires aux équations de Bogolioubov (3.74-3.75) avec le remplacement $U \rightarrow \mathcal{U}$, on ne peut plus dériver la relation (3.79) entre modes non-condensés et corrélation. La raison est que le potentiel \mathcal{U} est *a priori* complexe, ce qui fait apparaître des termes supplémentaires empêchant l'identification entre $S(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = \int d^3\mathbf{z} \Phi'^*(\mathbf{z}, \mathbf{x}) \Phi'(\mathbf{z}, \mathbf{y})$ et $\Gamma(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = R'(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + \int d^3\mathbf{z} R'^*(\mathbf{z}, \mathbf{x}) R'(\mathbf{z}, \mathbf{y})$ introduits au paragraphe 3.2.2.4. En effet, si l'on reprend la dérivation des équations pour S et

Γ à partir des équations (3.143-3.145), on obtient :

$$\begin{aligned}
i\hbar \frac{dS}{dt}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) &= \left(H_y + M(\mathbf{y}) - H_x - M^*(\mathbf{x}) \right) S(\mathbf{x}, \mathbf{y}) && \leftarrow F3 \\
&+ \int d^3\mathbf{z} \left(M(\mathbf{z}) - M^*(\mathbf{z}) \right) \Phi'^*(\mathbf{x}, \mathbf{z}) \Phi'(\mathbf{z}, \mathbf{y}) && \leftarrow F3 \\
&+ \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{y} - \mathbf{z}) \Phi(\mathbf{z}, \mathbf{y}) \Phi'^*(\mathbf{x}, \mathbf{z}) - \{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\}^* \\
&+ \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{y} - \mathbf{z}) \frac{\Psi^*(\mathbf{z}) \Phi(\mathbf{z}, \mathbf{y})}{\Psi(\mathbf{z})} S(\mathbf{x}, \mathbf{z}) - \{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\}^* && \leftarrow F2 \\
&+ \int d^3\mathbf{z} d^3\mathbf{w} U(\mathbf{w} - \mathbf{z}) \frac{\Psi^*(\mathbf{z}) \Phi(\mathbf{w}, \mathbf{z})}{\Psi(\mathbf{z})} \Phi'^*(\mathbf{w}, \mathbf{x}) \Phi'(\mathbf{z}, \mathbf{y}) - \{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\}^* && \leftarrow F2 \\
&+ \int d^3\mathbf{z} d^3\mathbf{w} U(\mathbf{w} - \mathbf{z}) \Phi(\mathbf{w}, \mathbf{z}) \Phi'^*(\mathbf{w}, \mathbf{x}) R'(\mathbf{z}, \mathbf{y}) - \{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\}^* && \leftarrow F1 \\
&+ \int d^3\mathbf{z} d^3\mathbf{w} U(\mathbf{w} - \mathbf{y}) \Phi(\mathbf{w}, \mathbf{y}) \Phi'^*(\mathbf{x}, \mathbf{z}) R'(\mathbf{w}, \mathbf{z}) - \{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\}^* && \leftarrow F1 \\
\end{aligned} \tag{3.148}$$

et

$$\begin{aligned}
i\hbar \frac{d\Gamma}{dt}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) &= \left(H_y + M(\mathbf{y}) - H_x - M^*(\mathbf{x}) \right) \Gamma(\mathbf{x}, \mathbf{y}) && \leftarrow G3 \\
&+ \int d^3\mathbf{z} \left(M(\mathbf{z}) - M^*(\mathbf{z}) \right) R'(\mathbf{x}, \mathbf{z}) R'(\mathbf{z}, \mathbf{y}) && \leftarrow G3 \\
&+ \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{y} - \mathbf{z}) \Phi(\mathbf{z}, \mathbf{y}) \Phi'^*(\mathbf{x}, \mathbf{z}) - \{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\}^* && \leftarrow G1 \\
&+ \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{y} - \mathbf{z}) \frac{\Psi^*(\mathbf{z}) \Phi(\mathbf{z}, \mathbf{y})}{\Psi(\mathbf{z})} \Gamma(\mathbf{x}, \mathbf{z}) - \{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\}^* && \leftarrow G2 \\
&+ \int d^3\mathbf{z} d^3\mathbf{w} U(\mathbf{w} - \mathbf{z}) \frac{\Psi^*(\mathbf{z}) \Phi(\mathbf{w}, \mathbf{z})}{\Psi(\mathbf{z})} R'(\mathbf{x}, \mathbf{w}) R'(\mathbf{z}, \mathbf{y}) - \{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\}^* && \leftarrow G2 \\
&+ \int d^3\mathbf{z} d^3\mathbf{w} U(\mathbf{w} - \mathbf{z}) \Phi(\mathbf{w}, \mathbf{z}) \Phi'^*(\mathbf{w}, \mathbf{x}) R'(\mathbf{z}, \mathbf{y}) - \{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\}^* && \leftarrow G1 \\
&+ \int d^3\mathbf{z} d^3\mathbf{w} U(\mathbf{w} - \mathbf{y}) \Phi(\mathbf{w}, \mathbf{y}) \Phi'^*(\mathbf{w}, \mathbf{z}) R'(\mathbf{x}, \mathbf{z}) - \{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\}^* && \leftarrow G1 \\
\end{aligned} \tag{3.149}$$

où l'on voit apparaître de nouveaux termes (indiqués en bleu) qui ne s'annulent que lorsque $M = M^*$, c'est-à-dire lorsque la fonction d'onde de paire réduite est réelle (stationnaire). La relation (3.79) n'est donc plus satisfaite dans le régime non-stationnaire, contrairement au modèle de Bogolioubov. Cela signifie que nous n'avons malheureusement pas de preuve directe que ces équations maintiennent la positivité des populations des modes non-condensés au cours de l'évolution.

État fondamental du système uniforme

Dans le cas d'un état stationnaire, et *a fortiori* dans l'état fondamental, les champs moyens M sont réels, et les termes gênants des équations (3.148) et (3.149) disparaissent. L'analogie avec les équations (3.77) et (3.78) est alors complète, et on peut supposer que la relation (3.79) est satisfaite pour l'état fondamental. Cherchons à déterminer explicitement la fonction d'onde de paire réduite φ et la distribution des modes non-condensés R' dans l'état fondamental du système infini uniforme.

Dans le cas d'un système uniforme (invariant par translation), la fonction d'onde du condensat devient uniforme $\Psi(\mathbf{x}) = \Psi$, et les fonctions $\Phi'(\mathbf{x}, \mathbf{y})$ et $R'(\mathbf{x}, \mathbf{y})$ ne dépendent plus que de la position relative des atomes $\mathbf{r} = \mathbf{y} - \mathbf{x}$, si bien qu'on peut les noter $\Phi'(\mathbf{r})$ et $R'(\mathbf{r})$. Par conséquent, les potentiels de champ moyen deviennent également uniformes $M = \int d^3\mathbf{r} U(\mathbf{r}) \varphi(\mathbf{r}) |\Psi|^2$ et $M' = \int d^3\mathbf{r} U(\mathbf{r}) \varphi(\mathbf{r}) (R'(0) + R'(\mathbf{r}))$. Les équations (3.143) et (3.144) se simplifient donc de la manière suivante :

$$i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t} = (M + M') \Psi$$

$$i\hbar \frac{\partial \Phi'}{\partial t}(\mathbf{r}) = \left(-\frac{\hbar^2 \nabla^2}{m} + 2M \right) \Phi'(\mathbf{r}) + U(\mathbf{r}) \Phi(\mathbf{r}) + 2 \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{z}) \Phi(\mathbf{z}) \left(\frac{\Psi^*}{\Psi} \Phi'(\mathbf{r} - \mathbf{z}) + R'(\mathbf{r} - \mathbf{z}) \right)$$

On obtient des solutions stationnaires avec Ψ et Φ' de la forme $\bar{\Psi} e^{-i\mu t/\hbar}$ et $\bar{\Phi}' e^{-i2\mu t/\hbar}$, où μ

est identifié avec le potentiel chimique. Cela conduit à :

$$\begin{aligned} \mu &= M + M' \\ 2\mu\bar{\Phi}'(\mathbf{r}) &= \left(-\frac{\hbar^2\nabla^2}{m} + 2M\right)\bar{\Phi}'(\mathbf{r}) + U(\mathbf{r})\bar{\Phi}'(\mathbf{r}) + 2\int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{z})\bar{\Phi}'(\mathbf{z})\left(\bar{\Phi}'(\mathbf{r}-\mathbf{z}) + \bar{R}'(\mathbf{r}-\mathbf{z})\right) \end{aligned}$$

On constate que la contribution du potentiel chimique dans le membre de gauche de la dernière équation vient compenser (pratiquement) le potentiel de champ moyen dans le membre de droite. La compensation n'est que partielle, à cause de la correction M' au potentiel chimique. En fait, cette correction M' est superflue, compte tenu des approximations que nous avons par ailleurs faites sur F' . Elle n'aurait d'intérêt que si l'on avait exprimé F' avec moins d'approximation, par exemple avec l'approximation de paire (3.140), car des termes supplémentaires provenant de F' viendraient alors se compenser avec M' . Il serait donc logique de négliger la contribution M' pour ce calcul précis. Néanmoins, si nous voulons calculer par ailleurs l'énergie du système, nous devons absolument tenir compte de cette contribution M' au potentiel chimique.

C'est une des difficultés principales de ce genre de modèles. Les approximations que l'on fait au départ (telles que (3.140) ou (3.142)) sont parfois trop fines pour le calcul de certaines quantités, car toutes les quantités à calculer ne dépendent pas de la même manière du degré d'approximation. On est donc tenté de refaire des approximations lors du calcul de quantités intermédiaires. Mais en faisant cela, on ne reste plus dans le cadre du modèle approché qu'on s'était fixé au départ. Même si ces approximations intermédiaires sont physiquement justifiées, on risque de perdre la cohérence mathématique du modèle. Ceci peut être dangereux, en particulier si l'on tient à résoudre numériquement les équations. En effet, un ordinateur ne sait résoudre que des équations fixées une fois pour toutes, et n'est pas capable de faire des approximations « physiquement justifiées » en cours de calcul. C'est pour cette raison que nous garderons la contribution M' pour ne pas sortir du cadre des approximations (3.142). On gardera à l'esprit qu'elle n'a pas de « sens physique » dans ce calcul particulier, et on s'assurera que son influence reste minime.

On obtient donc :

$$0 = \left(-\frac{\hbar^2\nabla^2}{m} - 2M'\right)\bar{\Phi}'(\mathbf{r}) + \underbrace{U(\mathbf{r})\rho_0\varphi(\mathbf{r})}_{\rho_0\mathcal{U}(\mathbf{r})} + 2\int d^3\mathbf{z} \underbrace{U(\mathbf{z})\rho_0\varphi(\mathbf{z})}_{\rho_0\mathcal{U}(\mathbf{z})} \left(\bar{\Phi}'(\mathbf{r}-\mathbf{z}) + \bar{R}'(\mathbf{r}-\mathbf{z})\right)$$

où $M' = \int d^3\mathbf{r} \mathcal{U}(\mathbf{r})(R'(0) + R'(\mathbf{r}))$ et $\rho_0 = \bar{\Psi}^2$ est la densité d'atomes condensés.

On peut réécrire cette équation en représentation impulsion (par transformation de Fourier) :

$$0 = \left(-\frac{\hbar^2\mathbf{k}^2}{m} - 2M'\right)\tilde{\Phi}'(\mathbf{k}) + \rho_0\tilde{\mathcal{U}}(\mathbf{k}) + 2\rho_0\tilde{\mathcal{U}}(\mathbf{k})\left(\tilde{\Phi}'(\mathbf{k}) + \tilde{R}'(\mathbf{k})\right) \quad (3.150)$$

avec $M' = \int \frac{d^3\mathbf{k}}{(2\pi)^3} (\tilde{\mathcal{U}}(0) + \tilde{\mathcal{U}}(\mathbf{k}))\tilde{R}'(\mathbf{k})$.

Ecrivons maintenant la relation de Bogolioubov à température nulle (3.79) en représentation impulsion :

$$\tilde{R}'(\mathbf{k})\left(\tilde{R}'(\mathbf{k}) + 1\right) = \tilde{\Phi}'^2(\mathbf{k}) \quad (3.151)$$

En combinant les relations (3.150) et (3.151), on obtient les expressions de R' et Φ' :

$$\tilde{\Phi}'(\mathbf{k}) = -\frac{1}{2} \frac{\rho_0\tilde{\mathcal{U}}(\mathbf{k})}{E_{\mathbf{k}}} \quad (3.152)$$

$$\tilde{R}'(\mathbf{k}) = \frac{1}{2} \left(\frac{\tilde{T}_{\mathbf{k}} + \rho_0\tilde{\mathcal{U}}(\mathbf{k})}{E_{\mathbf{k}}} - 1 \right) \quad (3.153)$$

avec $E_{\mathbf{k}} = \sqrt{\tilde{T}_{\mathbf{k}}(\tilde{T}_{\mathbf{k}} + 2\rho_0\tilde{U}(\mathbf{k}))}$, et $\tilde{T}_{\mathbf{k}} = \frac{\hbar^2 k^2}{2m} - M'$. Notons que les relations (3.150-3.152-3.153) s'obtiennent à partir des expressions pour l'état fondamental de Bogolioubov en utilisant simplement les prescription $U \rightarrow \mathcal{U}$ et $\frac{\hbar^2 k^2}{2m} \rightarrow \frac{\hbar^2 k^2}{2m} - M'$. Par ailleurs, elles sont analogues à celles dérivées par A. Yu Cherny et A. A. Shanenko - voir les Eqs. (56-57-58) dans la Réf. [Cherny2000].

La présence du terme M' dans le spectre $E_{\mathbf{k}}$ induit un « gap » non-physique, de manière similaire à l'approximation de Hartree-Fock-Bogolioubov (voir le paragraphe 3.2.3.3). Les effets non-physiques de ce « gap » se font sentir aux faibles impulsions, c'est-à-dire aux grandes distances. En deçà d'une certaine impulsion, $\frac{\hbar^2 k^2}{2m}$ est plus petit que M' , et le terme d'énergie cinétique $\tilde{T}_{\mathbf{k}}$ devient négatif, si bien que $\tilde{\Phi}'$ et \tilde{R}' deviennent complexes. On peut estimer l'ordre de grandeur de M' par :

$$M' \approx \tilde{U}(0)2R'(0) \approx \frac{4\pi\hbar^2 a}{m} \rho_0 \zeta$$

où $\zeta = \frac{\rho - \rho_0}{\rho}$ représente la fraction d'atomes non-condensés. Par conséquent, l'impulsion typique pour laquelle le terme $\frac{\hbar^2 k^2}{2m}$ devient de l'ordre de M' est $k = \sqrt{8\pi a \rho_0 \zeta} = \frac{1}{\xi} \sqrt{2\zeta}$, où ξ est la longueur de relaxation du système (3.4). Comme la fraction non-condensée est supposée faible ($\zeta \ll 1$), l'influence non-physique de M' apparaît pour des distances grandes devant la longueur de relaxation. Cette influence n'est donc pas gênante en général, car dans la plupart des expressions qui nous intéressent, les fonctions R' et Φ' sont multipliées par le potentiel U dont la portée r_e (supposée petite devant la longueur de relaxation ξ) vient effacer les effets à grandes distances.

Maintenant que l'on connaît explicitement la corrélation de paire et la distribution des modes non-condensés, on peut déterminer l'énergie associée à l'état fondamental. Dans le cas d'un système uniforme, la moyenne $G(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{y}, \mathbf{x})$ ne dépend plus que de $\mathbf{x} - \mathbf{y}$ et peut donc se noter $G(\mathbf{x} - \mathbf{y})$. L'énergie moyenne du système (3.27) s'écrit alors :

$$E = V \int \frac{d^3 \mathbf{k}}{(2\pi)^3} \frac{\hbar^2 k^2}{2m} \tilde{R}'(\mathbf{k}) + \frac{V}{2} \int d^3 \mathbf{r} \tilde{U}(\mathbf{r}) G(\mathbf{r})$$

où $V = \int d^3 \mathbf{x}$ est le volume du système. En utilisant l'approximation (3.142), on obtient $G(\mathbf{r}) = \tilde{\Phi}(\mathbf{r}) (\tilde{\Phi}(\mathbf{r}) + 2R'(0) + 2R'(\mathbf{r}))$, ce qui conduit à :

$$E = \frac{1}{2} V \rho_0^2 \tilde{U}(0) + V \int \frac{d^3 \mathbf{k}}{(2\pi)^3} \left[\frac{\hbar^2 k^2}{2m} \tilde{R}'(\mathbf{k}) + \frac{1}{2} \rho_0 \tilde{U}(\mathbf{k}) \tilde{\Phi}'(\mathbf{k}) + \rho_0 (\tilde{U}(0) + \tilde{U}(\mathbf{k})) \tilde{R}'(\mathbf{k}) \right] \quad (3.154)$$

En remplaçant $\tilde{\Phi}'$ et R' par leurs expressions (3.152-3.153), on obtient explicitement :

$$E_0 = \frac{1}{2} V \rho_0^2 \tilde{U}(0) + \frac{1}{2} V \int \frac{d^3 \mathbf{k}}{(2\pi)^3} \left[\frac{\hbar^2 k^2}{2m} \left(\frac{\tilde{T}_{\mathbf{k}} + \rho_0 \tilde{U}(\mathbf{k})}{E_{\mathbf{k}}} - 1 \right) - \frac{1}{2} \frac{\rho_0^2 \tilde{U}^2(\mathbf{k})}{E_{\mathbf{k}}} \right] + \frac{1}{2} V \rho_0 \int \frac{d^3 \mathbf{k}}{(2\pi)^3} (\tilde{U}(0) + \tilde{U}(\mathbf{k})) \left(\frac{\tilde{T}_{\mathbf{k}} + \rho_0 \tilde{U}(\mathbf{k})}{E_{\mathbf{k}}} - 1 \right) \quad (3.155)$$

Notons que contrairement aux formules (3.152-3.153), l'expression (3.155) n'a pas la même structure que l'expression (3.87) de l'énergie dans l'approximation de Bogolioubov. En particulier, on ne peut pas la déduire de celle-ci en utilisant la prescription $U \rightarrow \mathcal{U}$. En utilisant le changement de variables effectué au paragraphe 3.2.2.5 pour calculer l'énergie fondamentale de Bogolioubov, et en utilisant le fait que la longueur de relaxation est grande devant la portée du potentiel effectif \mathcal{U} , on obtient les expressions approchées :

$$\frac{1}{2} V \int \frac{d^3 \mathbf{k}}{(2\pi)^3} \left[\frac{\hbar^2 k^2}{2m} \left(\frac{\tilde{T}_{\mathbf{k}} + \rho_0 \tilde{U}(\mathbf{k})}{E_{\mathbf{k}}} - 1 \right) - \frac{1}{2} \frac{\rho_0^2 \tilde{U}^2(\mathbf{k})}{E_{\mathbf{k}}} \right] \approx \frac{1}{2} V \rho_0^2 \tilde{U}(0) \left(-\frac{24}{5\sqrt{\pi}} \sqrt{\rho_0 \left(\frac{m\tilde{U}(0)}{4\pi\hbar^2} \right)^3} \right)$$

$$\frac{1}{2}V\rho_0 \int \frac{d^3\mathbf{k}}{(2\pi)^3} (\tilde{\mathcal{U}}(0) + \tilde{\mathcal{U}}(\mathbf{k})) \left(\frac{\tilde{T}_{\mathbf{k}} + \rho_0 \tilde{\mathcal{U}}(\mathbf{k})}{E_{\mathbf{k}}} - 1 \right) \approx \frac{1}{2}V\rho_0^2 \tilde{\mathcal{U}}(0) \left(+ \frac{32}{3\sqrt{\pi}} \sqrt{\rho_0 \left(\frac{m\tilde{\mathcal{U}}(0)}{4\pi\hbar^2} \right)^3} \right)$$

si bien que :

$$E_0 = \frac{1}{2}V\rho_0^2 \tilde{\mathcal{U}}(0) \left(1 + \frac{8}{15} \sqrt{\frac{\rho_0}{\pi} \left(\frac{m\tilde{\mathcal{U}}(0)}{4\pi\hbar^2} \right)^3} \right)$$

On montre à partir de l'équation (3.152) que (voir [Cherny2000]) :

$$\tilde{\mathcal{U}}(0) = \frac{4\pi\hbar^2 a}{m} \left(1 + \frac{8}{\sqrt{\pi}} \sqrt{\rho_0 a^3} \right)$$

et par ailleurs, on a :

$$\rho_0 = \rho - \int \frac{d^3\mathbf{k}}{(2\pi)^3} \tilde{R}'(\mathbf{k}) \approx \rho \left(1 - \frac{8}{3\sqrt{\pi}} \sqrt{\rho_0 \left(\frac{m\tilde{\mathcal{U}}(0)}{4\pi\hbar^2} \right)^3} \right)$$

si bien qu'au premier ordre en $\sqrt{\rho a^3}$, on retrouve le résultat (3.90) [Lee1957b] :

$$E_0 \approx \frac{1}{2}V\rho^2 \frac{4\pi\hbar^2 a}{m} \left(1 + \frac{128}{15\sqrt{\pi}} \sqrt{\rho a^3} \right)$$

Cela montre que les termes que nous avons retenus dans les approximations (3.142) sont suffisants pour reproduire l'énergie de Lee-Yang. Notons que dans cette dérivation, il n'y a aucun problème de divergence ou de renormalisation. La dérivation de l'énergie de Lee-Yang par A. Yu Cherny et A. A. Shanenko [Cherny2000] se base sur une approximation un peu moins forte, proche de l'*approximation de paire* (3.139) : la structure du calcul est très similaire, mais fait apparaître deux termes supplémentaires qui se compensent de manière subtile si l'on utilise une version étendue de la relation de Bogolioubov de la forme :

$$\tilde{R}'(\mathbf{k}) \left(\tilde{R}'(\mathbf{k}) + 1 \right) = \tilde{\Phi}'^2(\mathbf{k}) (1 + 2\zeta)$$

État fondamental du système non-uniforme

On peut reprendre les calculs précédent en utilisant l'approximation locale : on suppose que localement, tout se passe comme dans un système uniforme et la dépendance de la position dans le piège est prise comme une dépendance paramétrique. En évaluant le potentiel chimique dans l'approximation de Thomas-Fermi :

$$\mu \approx V(\mathbf{x}) + M(\mathbf{x}) + M'(\mathbf{x})$$

nous trouvons l'expression des quantités $\tilde{\Phi}'(\mathbf{R}, \mathbf{k}) = \int d^3\mathbf{r} \tilde{\Phi}'(\mathbf{R}, \mathbf{r}) e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}$ et $\tilde{R}'(\mathbf{R}, \mathbf{k}) = \int d^3\mathbf{r} R'(\mathbf{R}, \mathbf{r}) e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}$:

$$\begin{aligned} \tilde{\Phi}'(\mathbf{R}, \mathbf{k}) &= -\frac{1}{2} \frac{\rho_0(\mathbf{R}) \tilde{\mathcal{U}}(\mathbf{R}, \mathbf{k})}{E_{\mathbf{k}}(\mathbf{R})} \\ \tilde{R}'(\mathbf{R}, \mathbf{k}) &= \frac{1}{2} \left(\frac{\tilde{T}_{\mathbf{k}} + \rho_0(\mathbf{R}) \tilde{\mathcal{U}}(\mathbf{R}, \mathbf{k})}{E_{\mathbf{k}}(\mathbf{R})} - 1 \right) \end{aligned}$$

avec $E_{\mathbf{k}}(\mathbf{R}) = \sqrt{\tilde{T}_{\mathbf{k}}(\mathbf{R})\left(\tilde{T}_{\mathbf{k}}(\mathbf{R}) + 2\rho_0\tilde{U}(\mathbf{R}, \mathbf{k})\right)}$, $\tilde{T}_{\mathbf{k}}(\mathbf{R}) = \frac{\hbar^2 k^2}{2m} - M'(\mathbf{R})$, et $U(\mathbf{R}, \mathbf{r}) = U(\mathbf{r})\varphi(\mathbf{R}, \mathbf{r})$. En reportant ces résultats dans les expressions (3.146-3.147) des potentiels de champ moyen, on trouve que l'équation pour la fonction d'onde du condensat devient :

$$\left(-\frac{\hbar^2 \nabla_{\mathbf{x}}^2}{2m} + V(\mathbf{x}) + \frac{4\pi\hbar^2 a}{m}\rho(\mathbf{x})\left(1 + \frac{32}{\sqrt{\pi}}\sqrt{\rho(\mathbf{x})}a^3\right)\right)\Psi(\mathbf{x}) = \mu\Psi(\mathbf{x}) \quad (3.156)$$

qui constitue une généralisation de l'équation de Gross-Pitaevskiï stationnaire. Cette formule est à rapprocher de celle obtenue par Eric Braaten et Augustin Nieto [Braaten1997] par une méthode de renormalisation (voir également [Timmermans1997]) et vérifiée ultérieurement par des calculs de diffusion Monté-Carlo [Blume2001]. Pour un faible paramètre $\sqrt{\rho}a^3$, la formule (3.156) se réduit à l'équation de Gross-Pitaevskiï. Dans les conditions de la plupart des expériences, les déviations par rapport aux résultats de l'équation de Gross-Pitaevskiï sont de l'ordre du pourcent [Dalfovo1999].

3.3.1.6 Au-delà de l'analogie directe avec Bogolioubov

Nous avons essayé de rapprocher directement les équations obtenues dans l'approximation de paire avec le modèle de Bogolioubov, dans l'espoir d'obtenir la relation de Bogolioubov entre corrélation de paire et distribution des modes non-condensés. Le résultat de cette analogie est prometteur mais encore incomplet. En effet, nous obtenons des expressions stationnaires très semblables à celles du modèle de Bogolioubov, une énergie fondamentale correspondant à l'énergie de Lee-Yang, et nous retrouvons également les équations de Gross-Pitaevskiï. Néanmoins, la relation entre corrélation de paire et distribution des modes non-condensés n'est plus vérifiée dans le cas dépendant du temps.

À ce stade, deux conclusions sont possibles. Si l'on considère la relation (3.79) comme fondamentale à basse température, même dans les situations dépendant du temps, le résultat précédent indique que les approximations (3.142) ne sont pas satisfaisantes, au moins dans le régime non-stationnaire. Cela signifie que la prescription $U \rightarrow \mathcal{U}$ n'est pas valide dans les situations dépendant du temps. La structure des approximations doit alors être changée et ne se déduit pas de manière directe des modèles à interaction douce. L'approximation de paire (3.139), un peu moins forte, semble une bonne base de travail dans cette direction.

Si en revanche, on estime que la prescription $U \rightarrow \mathcal{U}$ est raisonnable pour passer des modèles à interaction douce aux modèles à interaction arbitrairement forte, même dans le cas non-stationnaire, alors les approximations (3.142) constituent une bonne approche mais on considère alors que la relation (3.79) n'est plus valable en général. Dans ce cas, on s'attend à des différences notables avec les modèles à interactions de contact dans le cas non-stationnaire.

Nous n'avons pas encore pu trancher clairement sur cette question.

3.3.2 Calculs avec des interactions réalistes

L'approche des fonctions d'onde effectives montre que dans le cas général, l'interaction induit de fortes corrélations à courtes distances entre les atomes. Pour des interactions douces, on peut négliger une grande partie de ces corrélations, comme nous l'avons vu dans la partie 3.2. En revanche, la prise en compte de ces fonctions est essentielle pour une interaction réaliste présentant un fort coeur répulsif à courte distance. Une condition *nécessaire* pour qu'un modèle soit adapté à l'utilisation d'interactions réalistes est que le potentiel soit toujours multiplié par un facteur traduisant la corrélation de paire. Ce n'est pas le cas des modèles de Bogolioubov et Hartree-Fock-Bogolioubov ; ces modèles divergent si on les utilise avec une interaction réaliste. On note en revanche que dans les équations des cumulants au premier ordre (3.110-3.114) le

potentiel est toujours multiplié par la fonction de paire Φ . On n'a donc pas de problèmes de divergence si l'on utilise la méthode des cumulants avec une interaction réaliste.

On peut alors se poser la suivante : les corrélations retenues dans l'approximation des cumulants au 1er ordre sont elles suffisantes pour décrire correctement le comportement des atomes à courtes distances interagissant avec des potentiels réalistes ? Nous avons déjà noté que dans le cas stationnaire et pour certaines valeurs du potentiel chimique, les équations sont problématiques et ne redonnent pas l'équation de Gross-Pitaevskiï stationnaire. On remarquera que l'approximation des cumulants au premier ordre est un cas particulier de l'approximation de paire dans l'analogie avec Bogolioubov (3.142), lorsqu'on néglige les termes $F1, F2, F3, G2, G3$. On a vu que dans le cas stationnaire, ces termes permette de retrouver l'équation de Gross-Pitaevskiï stationnaire généralisée. De manière générale, la prise en compte de ces corrélations supplémentaires conduit-elle à des différences sensibles ? La question est importante, en particulier dans le cas des résonances de Feshbach ou de la photoassociation, car ces phénomènes se produisent précisément à courtes distances, où les atomes sont fortement corrélés. Pour répondre à cette question, nous n'avons pas pu directement utiliser les équations générales (3.140) ou (3.142). Nous avons donc dû choisir une version simplifiée de l'approximation de paire qui conserve quelques propriétés importantes et soit facilement utilisable numériquement.

3.3.2.1 Approximation de la paire réduite

Un critère important que ne vérifie pas strictement l'approximation des cumulants au 1er ordre est que dans la limite où la dynamique de paire ne joue pas un rôle essentiel, les équations redonnent l'équation de Gross-Pitaevskiï, que l'on sait valide dans un grand nombre de situations expérimentales. Il suffit pour cela d'imposer que la fonction de paire réduite φ obéisse simplement à l'équation de Schrödinger habituelle :

$$i\hbar \frac{\partial \varphi}{\partial t}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = \left[-\frac{\hbar^2}{2m}(\nabla_{\mathbf{y}}^2 + \nabla_{\mathbf{y}}^2) + U(\mathbf{x} - \mathbf{y}) \right] \varphi(\mathbf{x}, \mathbf{y})$$

On néglige donc les termes C_y et M_y traduisant l'influence du milieu. De cette façon, on s'assure que dans la limite où φ est quasi-stationnaire, on retrouve systématiquement l'équation de Gross-Pitaevskiï. Cela revient à ne retenir que les termes $F3, G1$ et $G3$ de l'approximation de paire (3.142) :

Approximations de la paire réduite		
$K(\mathbf{w}, \mathbf{z}, \mathbf{x})$	$\approx \Psi^*(\mathbf{w})\Phi(\mathbf{z}, \mathbf{x})$	(a)
$G(\mathbf{x}, \mathbf{w}, \mathbf{z}, \mathbf{y})$	$\approx \Phi^*(\mathbf{x}, \mathbf{w})\Phi(\mathbf{z}, \mathbf{y}) + \frac{\Psi^*(\mathbf{w})\Phi(\mathbf{z}, \mathbf{y})}{\Psi(\mathbf{y})} R'(\mathbf{x}, \mathbf{y})$	(b)
$F(\mathbf{w}, \mathbf{z}, \mathbf{x}, \mathbf{y})$	$\approx \frac{\Psi^*(\mathbf{w})\Phi(\mathbf{z}, \mathbf{y})\Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y})}{\Psi(\mathbf{y})}$	(c)

(3.157)

soit :

Approximations de la paire réduite		
$K(\mathbf{w}, \mathbf{z}, \mathbf{x})$	$\approx \Psi^*(\mathbf{w})\Phi(\mathbf{z}, \mathbf{x})$	(a)
$G'(\mathbf{x}, \mathbf{w}, \mathbf{z}, \mathbf{y})$	$\approx \underbrace{\Phi^*(\mathbf{x}, \mathbf{w})\Phi(\mathbf{z}, \mathbf{y})}_{G1} + \underbrace{\frac{\Psi^*(\mathbf{w})\Phi(\mathbf{z}, \mathbf{y})}{\Psi(\mathbf{y})} R'(\mathbf{x}, \mathbf{y})}_{G3}$	(b)
$F'(\mathbf{w}, \mathbf{z}, \mathbf{x}, \mathbf{y})$	$\approx \underbrace{\frac{\Psi^*(\mathbf{w})\Phi(\mathbf{z}, \mathbf{y})}{\Psi(\mathbf{y})} \Phi'(\mathbf{x}, \mathbf{y})}_{F3}$	(c)

(3.158)

Il n'est pas clair si l'on doit tenir compte du terme $G3$ ou non. Nous avons vu que ce terme est en général associé à $F3$, mais ici on a tronqué les autres termes. Si l'on tient compte du terme $G3$, la conservation du nombre total d'atomes n'est plus assurée. Afin de garder cette propriété, nous négligerons donc le terme $G3$ dans l'approximation (3.158-b). En outre, il faut noter que l'approximation de la paire réduite ne conserve pas l'énergie moyenne en général. Le principal avantage cette approximation est de redonner l'équation de Gross-Pitaevskiï, tout en étant simple à résoudre numériquement. Il s'agit donc avant tout d'un outil pour mesurer l'influence du terme de corrélation $F3$, plus qu'un modèle parfaitement cohérent sur le plan physique.

Comparaison avec l'approximation des cumulants au 1er ordre

Les approximations (3.158) sont très proches des approximations des cumulants au premier ordre (3.115). La seule différence est qu'on tient compte du terme $F3$ qui induit les champs moyens M supplémentaires dans les équations sur Φ' :

$$i\hbar \frac{d\Phi'}{dt}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = \left(H_y + M(\mathbf{y}) + H_x + M(\mathbf{x}) \right) \Phi'(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + U(\mathbf{x}-\mathbf{y})\Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \quad (3.159)$$

L'équation sur la fonction d'onde de paire totale Φ s'écrit donc :

$$i\hbar \frac{d\Phi}{dt}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = \left(H_y + M(\mathbf{y}) + H_x + M(\mathbf{x}) + U(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \right) \Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \quad (3.160)$$

L'influence du condensat sur la paire d'atomes condensés se traduit maintenant par un potentiel de champ moyen $M(\mathbf{x}) + M(\mathbf{y})$, alors qu'il s'agissait d'un terme source dans les équations des cumulants au premier ordre. C'est précisément ce point qui résout les problèmes de divergence rencontré dans les équations des cumulants au premier ordre, et conduit correctement à l'équation de Gross-Pitaevskiï.

En termes de fonctions d'onde effectives à trois corps, l'approximation de la paire réduite correspond à :

$$\Omega_{000}(\mathbf{z}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) \approx \frac{\Phi(\mathbf{z}, \mathbf{x})\Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y})}{\Psi(\mathbf{y})} = \Psi(\mathbf{x})\Psi(\mathbf{y})\Psi(\mathbf{z})\varphi(\mathbf{z}, \mathbf{x})\varphi(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \quad (3.161)$$

alors que l'approximation des cumulants au premier ordre correspond à :

$$\Omega_{000}(\mathbf{z}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) \approx \Phi(\mathbf{z}, \mathbf{x})\Psi(\mathbf{y}) = \Psi(\mathbf{x})\Psi(\mathbf{y})\Psi(\mathbf{z})\varphi(\mathbf{x}, \mathbf{z}) \quad (3.162)$$

On peut interpréter ces approximations de la manière suivante : lorsqu'une paire d'atomes condensés en (\mathbf{x}, \mathbf{y}) interagit avec un autre atome condensé en \mathbf{z} , on tient compte de la *corrélation existant entre les atomes de la paire considérée* dans l'approximation de la paire réduite, alors que ce n'est pas le cas dans l'approximation des cumulants au premier ordre. Idéalement, il faudrait également considérer les trois corrélations possibles, comme le montre les formules générales (3.135).

3.4 Conclusion

Dans la suite de cette thèse, nous avons utilisé l'*approximation de la paire réduite* (3.157) et l'*approximation des cumulants au premier ordre* (3.116) pour étudier numériquement un système de voies moléculaires couplées dans un condensat. Nous récapitulons ici la démarche qui nous a conduit à ces choix.

Théorie pour des interactions douces

Approches :

Hartree-Fock	
avec un potentiel doux U	✓
avec un potentiel de contact U_δ	✓
avec un potentiel réaliste U	✗

Bogolioubov	
avec un potentiel doux U	✓
avec un potentiel de contact U_δ	✓✗
problème énergie fondamentale	
avec un potentiel réaliste U	✗

Hartree-Fock-Bogolioubov	
avec un potentiel doux U	✓
avec un potentiel de contact U_δ	✓✗
problème énergie fondamentale	
avec un potentiel réaliste U	✗

Méthode des cumulants	
avec un potentiel doux U	✓
avec un potentiel réaliste U	?

Théorie pour des interactions arbitrairement fortes

Condition nécessaire : le potentiel d'interaction U doit toujours être adouci à courte distance, c'est-à-dire multiplié par des corrélations.

Approches :

Fonctions d'onde effectives avec un potentiel réaliste U	✓
---	---

Appr. de paires

Appr. de paires-Bogolioubov ?

Appr. de la paire réduite ✗ positivité, conservation de l'énergie

Éq. de Gross-Pitaevskii

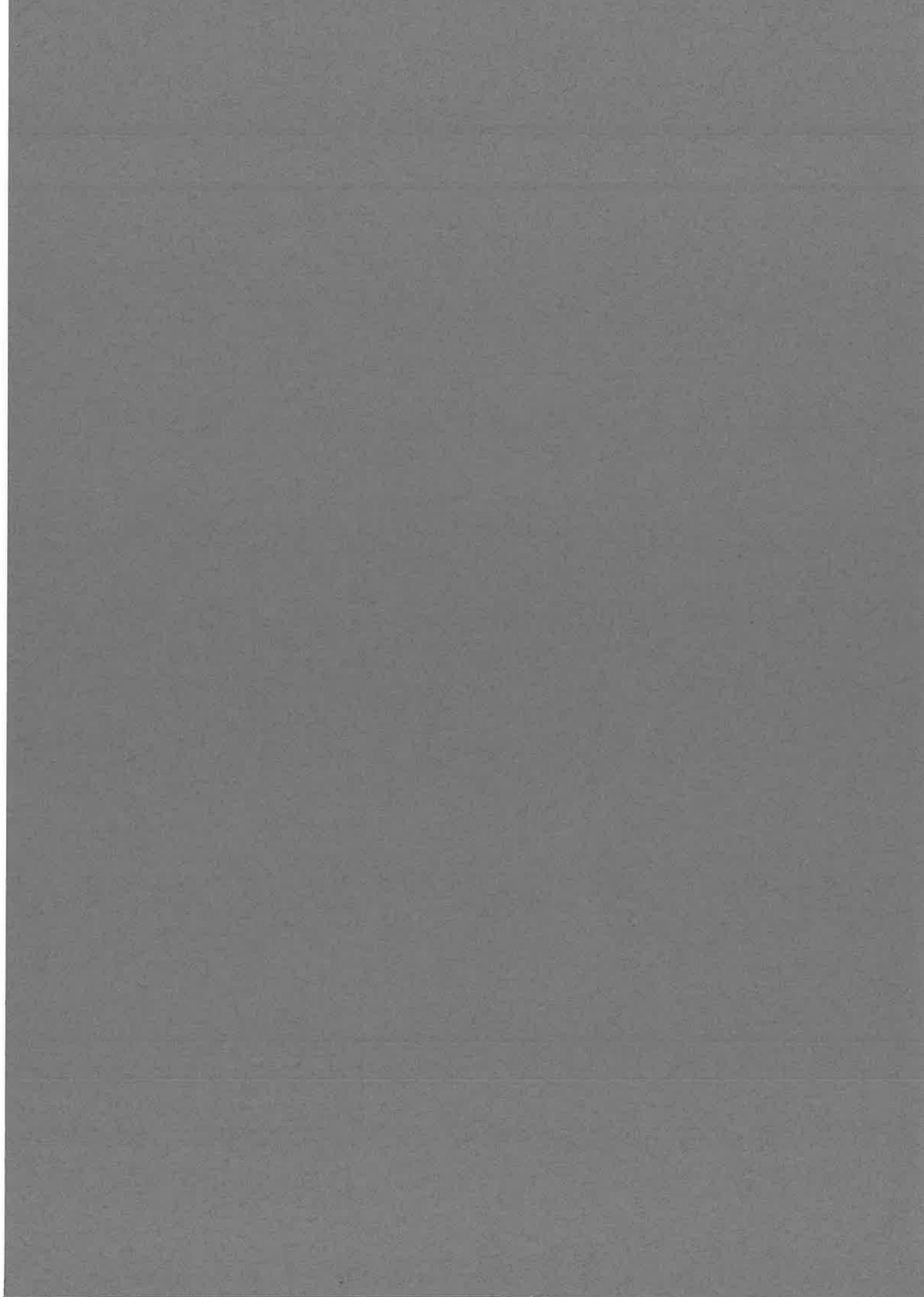
✗ problème des états stationnaires

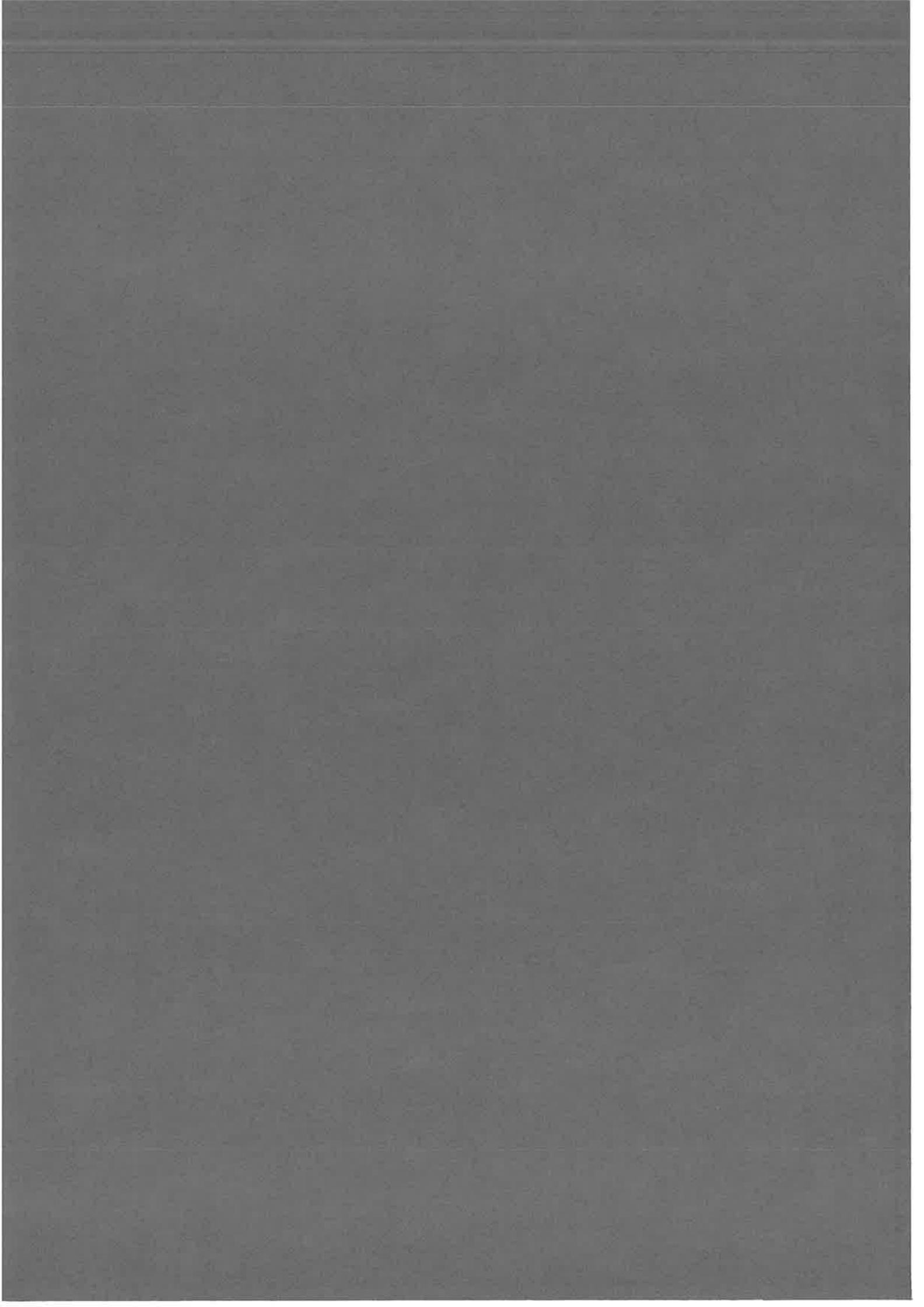
Appr. Cumulants au 1er ordre
avec un potentiel réaliste U

Nous avons d'abord d'abord considéré quelques modèles usuels contruits de manière perturbative pour des interactions douces. Ces modèles ne sont en général pas applicables pour une interaction réaliste. Nous avons analysé les effets du remplacement de l'interaction par une interaction de contact effective dans ces modèles, et mis en évidence quelques problèmes, en particulier en ce qui concerne le calcul de l'énergie fondamentale. Nous avons ensuite cherché à élaborer un modèle prenant en compte les effets d'une interaction réaliste. Nous nous sommes basés sur l'*approche des fonctions d'onde effectives*, que nous avons étendue au cas non-uniforme dépendant du temps. Nous avons montré comment la structure générale des corrélations à courte distance conduit à une énergie fondamentale correcte et à l'*équation de Gross-Pitaevskii*. Nous nous sommes inter-

rogés sur le rôle dynamique des corrélations à courte distance, et avons considéré une version minimale des équations que nous avons appelée approximation de la paire réduite. Cette approximation perd un certain nombre de propriétés de conservation, mais reste compatible avec l'équation de Gross-Pitaevskiï. La *méthode des cumulants au premier ordre* donne des équations similaires, plus cohérentes, et également utilisables avec des interactions réalistes. Elles ne sont néanmoins pas toujours compatibles avec l'équation de Gross-Pitaevskiï. La différence entre les deux approximations tient dans la manière de prendre en compte les corrélations entre trois atomes condensés. Nous étudierons numériquement les effets de cette différence au chapitre 6.

3.5 **Projet d'article**





Contact interactions and the paradox of Gross-Pitaevskii and Bogoliubov energies

Pascal Naidon and Arkady A. Shanenkov

We comment on the paradox of the Gross-Pitaevskii and Bogoliubov ground-state energies of a uniform dilute Bose gas recently analysed by A. J. Leggett [New J. of Phys. 5 p.103 (2003)]. The Bogoliubov energy is expected to be lower than the Gross-Pitaevskii energy, but standard textbook results using effective contact interactions seem to violate this property. We show that the paradox is simply due to the fact that the Bogoliubov ground-state energy is not evaluated correctly. In particular, we show that the standard formula obtained with Fermi's pseudopotential $g\delta^3(\mathbf{r})\frac{\partial}{\partial r}(r\cdot)$ does not correspond to the Bogoliubov ground-state.

I. THE PARADOX

The simplest way of estimating the ground-state energy of a dilute atomic Bose gas with repulsive interactions is to use a Hartree-Fock ansatz, *ie* to assume that all the atoms of the gas are in the same state of motion. For a uniform gas in a large box, this leads to the following ground-state energy:

$$E_0^{(HF)} = \frac{1}{2}\rho N \int d^3\mathbf{r} U(\mathbf{r}) \equiv \frac{1}{2}\rho N \frac{4\pi\hbar^2 a_0(U)}{m} \quad (1)$$

where ρ is the density of the gas, N the number of atoms, U the interatomic potential, m the mass of each atom, and $a_0(U) = \frac{m}{4\pi\hbar^2} \int d^3\mathbf{r} U(\mathbf{r})$ is the scattering length of the potential U in the Born approximation [1, 2]. A more elaborate way is the Bogoliubov approach [1–3] which enables pairs of atoms to be correlated. The Bogoliubov mean energy of the system reads:

$$E^{(Bog)} = E_0^{(HF)} + \sum_{\mathbf{k} \neq 0} \left(T_k n_{\mathbf{k}} + \frac{\rho}{2} \tilde{U}(\mathbf{k})(2n_{\mathbf{k}} + x_{\mathbf{k}} + x_{\mathbf{k}}^*) \right) \quad (2)$$

where \mathbf{k} is the wave vector, $T_k = \frac{\hbar^2 \mathbf{k}^2}{2m}$ the kinetic energy associated to it, \tilde{U} the Fourier transform of U , $n_{\mathbf{k}} = \langle \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}} \rangle$ the momentum distribution, and $x_{\mathbf{k}} = \langle \hat{a}_{\mathbf{k}} \hat{a}_{-\mathbf{k}} \rangle$ the anomalous pair correlation. Performing the Bogoliubov transformation:

$$\begin{aligned} \hat{a}_{\mathbf{k}} &= u_{\mathbf{k}} \hat{\alpha}_{\mathbf{k}} + v_{\mathbf{k}} \hat{\alpha}_{-\mathbf{k}}^\dagger \\ \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger &= u_{\mathbf{k}} \hat{\alpha}_{\mathbf{k}}^\dagger + v_{\mathbf{k}} \hat{\alpha}_{-\mathbf{k}} \end{aligned} \quad (3)$$

with:

$$\begin{aligned} u_{\mathbf{k}}^2 &= \frac{1}{2} \left(\frac{T_k + \rho \tilde{U}(\mathbf{k})}{E_k} + 1 \right) \\ v_{\mathbf{k}}^2 &= \frac{1}{2} \left(\frac{T_k + \rho \tilde{U}(\mathbf{k})}{E_k} - 1 \right) \\ E_k &= \sqrt{T_k(T_k + 2\rho \tilde{U}(\mathbf{k}))} \end{aligned}$$

one finds:

$$E^{(Bog)} = E_0^{(HF)} - \sum_{\mathbf{k} \neq 0} E_k v_{\mathbf{k}}^2 + \sum_{\mathbf{k} \neq 0} E_k \langle \hat{\alpha}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{\alpha}_{\mathbf{k}} \rangle$$

where the operators $\hat{\alpha}_{\mathbf{k}}^\dagger$ and $\hat{\alpha}_{\mathbf{k}}$ create and annihilate quasiparticles of wave vector \mathbf{k} . The Bogoliubov ground-state energy $E_0^{(Bog)}$ is therefore obtained for the vacuum of quasiparticles $\langle \hat{\alpha}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{\alpha}_{\mathbf{k}} \rangle = 0$:

$$E_0^{(Bog)} = E_0^{(HF)} - \sum_{\mathbf{k} \neq 0} E_k v_{\mathbf{k}}^2 \quad (4)$$

Ref. [4, p.6] shows that for low densities this energy can be approximated by:

$$E_0^{(Bog)} \underset{\rho \rightarrow 0}{\approx} \frac{1}{2} \rho N \frac{4\pi\hbar^2}{m} \left(a_0(U) + a_1(U) + \frac{128\sqrt{\rho} a_0^5(U)}{15\sqrt{\pi}} \right) \quad (5)$$

where $a_1(U) = -\frac{m}{4\pi\hbar^2} \int \frac{d^3\mathbf{k}}{(2\pi)^3} \frac{(\tilde{U}(\mathbf{k}))^2}{2T_k} \leq 0$ is the first correction to the scattering length in the Born series:

$$a(U) = a_0(U) + a_1(U) + a_2(U) + \dots \equiv \bar{a} \quad (6)$$

$a(U)$ being the “full” scattering length of the potential U , which we note \bar{a} for convenience.

As can be checked directly, both expressions (4) and (5) (for low densities) give an energy smaller than the Hartree-Fock energy (1):

$$E_0^{(Bog)} \leq E_0^{(HF)} \quad (7)$$

This is expected because the Hartree-Fock method looks for the minimum energy in a restricted subspace of many-body wave functions. This is necessarily an upper limit of the global minimum in the full Hilbert space. Therefore, any improved estimation (such as the Bogoliubov energy) has to be lower than the Hartree-Fock energy.

However, the real interaction U is very often replaced by an effective contact interaction, such as the delta potential:

$$U_\delta(\mathbf{r}) = g\delta^3(\mathbf{r}) \quad (8)$$

or the regularized delta potential (a.k.a Fermi's pseudopotential) [5, 6]:

$$U_{reg}(\mathbf{r}) = g\delta^3(\mathbf{r}) \frac{\partial}{\partial r}(r\cdot) \quad (9)$$

where the coupling constant $g = \frac{4\pi\hbar^2 \bar{a}}{m}$. It is generally admitted [1, 2, 5] that both of these effective potentials

lead to the following Hartree-Fock energy (which we will refer to as the Gross-Pitaevskii energy):

$$E_0^{(GP)} = \frac{1}{2}\rho N \frac{4\pi\hbar^2\bar{a}}{m} \quad (10)$$

and the following Bogoliubov energy (which we will refer to as the Lee-Yang energy):

$$E_0^{(LY)} = \frac{1}{2}\rho N \frac{4\pi\hbar^2\bar{a}}{m} \left(1 + \frac{128\sqrt{\rho\bar{a}^3}}{15\sqrt{\pi}} \right) \quad (11)$$

which was first obtained by Lee and Yang [7] with the binary collision expansion method applied to the hard-sphere potential.

Other methods [4, 8, 9] have confirmed that the Lee-Yang energy (11) is the correct estimation of the true ground-state energy to the first order in the diluteness parameter $\sqrt{\rho\bar{a}^3}$. The Gross-Pitaevskii energy (10) therefore corresponds to the zeroth order.

One now faces a paradox [9] because the Lee-Yang energy (11) is obviously larger than the Gross-Pitaevskii energy (10), which contradicts the fact that the Bogoliubov energy must be smaller than the Hartree-Fock energy. As we will explain, the paradox comes from the fact that either the Hartree-Fock or the Bogoliubov energy is not evaluated correctly (either $E_0^{(HF)} \neq E_0^{(GP)}$ or $E_0^{(Bog)} \neq E_0^{(LY)}$).

II. CALCULATION WITH A BARE CONTACT POTENTIAL

It is clear that the replacement of U by U_δ in the Hartree-Fock energy (1) leads to the Gross-Pitaevskii energy $\frac{1}{2}\rho Ng = \frac{1}{2}\rho N \frac{4\pi\hbar^2\bar{a}}{m}$. If we now replace U by U_δ (ie $\tilde{U}(\mathbf{k}) = g$) in the Bogoliubov energy (4), we find (for any density) the expression (5) with:

$$a_0(U_\delta) = \frac{m}{4\pi\hbar^2}g \equiv \bar{a} \quad (12)$$

$$a_1(U_\delta) = -\frac{m}{4\pi\hbar^2}g^2 \int \frac{d^3\mathbf{k}}{(2\pi)^3} \frac{1}{2T_{\mathbf{k}}} \equiv -\infty \quad (13)$$

which leads to an ultraviolet divergence, as the integration is carried out over all momenta. This is simply because the Born series (6) diverges for a delta potential. Even if the result $E_0^{(Bog)} = -\infty$ is unphysical, it does not violate (7) at this stage.

It is usually argued that the divergent quantity $a_1(U_\delta)$ is not relevant because it is already taken into account when one replaces U by U_δ . Indeed, the potential U_δ is constructed to replace the scattering length in the Born approximation $a_0(U)$ by the full scattering length \bar{a} . This is useful for perturbative models of the first order (like the Hartree-Fock model) where the final formulae depend only on $a_0(U)$. For higher-order models

(like the Bogoliubov model) which involve the quantities $a_0(U)$ and $a_1(U)$ (see Eq. (5)), the potential U_δ is too crude because it replaces $a_0(U) + a_1(U) \approx \bar{a}$ by $a_0(U_\delta) + a_1(U_\delta) = a_0(U) + a_1(U) + a_2(U) + \dots + a_1(U_\delta)$, so that the correction a_1 is accounted for twice. Thus, one needs to find a new effective contact potential U'_δ such that $a_0(U'_\delta) + a_1(U'_\delta) \approx \bar{a}$. This is usually done by either renormalizing the coupling constant of the contact interaction [1, 2], or using a regularized contact potential [5].

III. CALCULATION WITH A RENORMALIZED CONTACT POTENTIAL

The renormalization procedure is carried out as follows. One first considers that there is maximum momentum K in the system, which can be arbitrarily large but finite. This means that the divergent integral $\int \frac{d^3\mathbf{k}}{(2\pi)^3} \frac{1}{2T_{\mathbf{k}}} \equiv \frac{mK}{2\pi^2\hbar^2}$ and all the related quantities have now a finite value depending on K (but of course diverge in the limit $K \rightarrow \infty$). Then one redefines the effective contact interaction by replacing the coupling constant g by a new value $g'(K)$ which depends on K in such a way that the final expressions for the physical quantities (such as the scattering length or the energy) do not depend on K any more. The limit $K \rightarrow \infty$ can then be taken safely. In other words, one tries to absorb the divergence into the effective interaction. For instance, the scattering length \bar{a} is correctly reproduced in the two-body problem if we use an delta potential having the following renormalized coupling constant (see for instance Eq. (32) in Ref.[10]):

$$g'(K) = \frac{4\pi\hbar^2\bar{a}}{m} \cdot \left(1 - \frac{2}{\pi}K\bar{a} \right)^{-1}$$

However, if one replaces g by $g'(K)$ in expressions (12) and (13) and takes the limit $K \rightarrow \infty$, one finds $a_0(U_\delta) = 0$ and $a_1(U_\delta) = 0$, which leads to $E_0^{(HF)} = 0$ and $E_0^{(Bog)} = 0$. Again, the relation (7) is satisfied, but this naive renormalization scheme yields unphysical energies.

At this point, it is often assumed [1] that the limit $K \rightarrow \infty$ is not necessary as long as the final results do not depend on K . One therefore chooses a finite cut-off momentum $K \ll \frac{\pi}{2\bar{a}}$ such that the product $K\bar{a}$ can be treated as a small perturbation. To first order in $K\bar{a}$, we have:

$$g'(K) \approx \frac{4\pi\hbar^2\bar{a}}{m} \cdot \left(1 + \frac{2}{\pi}K\bar{a} \right) \quad (14)$$

and the following energies:

$$E_0^{(HF)} \approx E_0^{(GP)} \cdot \left(1 + \frac{2}{\pi}K\bar{a} \right) \quad (15)$$

$$E_0^{(Bog)} \approx E_0^{(GP)} \cdot \left(1 + I(K)\sqrt{\rho\bar{a}^3} \left(1 + \frac{5}{\pi}K\bar{a} \right) \right) \quad (16)$$

whith:

$$I(K) = 8\sqrt{\frac{2}{\pi}} \int_0^{\frac{K\bar{a}}{\sqrt{8\pi\rho\bar{a}^3}}} x^2(x\sqrt{x^2+2} - x^2 - 1 + \frac{1}{2x^2}) dx$$

The only way to remove the dependence in K completely would be to perform the limit $K\bar{a} \rightarrow 0$ in these expressions. However, when $K\bar{a} \ll \sqrt{\rho\bar{a}^3}$, then $I(K) \approx \frac{2}{\pi} \frac{K\bar{a}}{\sqrt{\rho\bar{a}^3}}$, so in the limit $K\bar{a} \rightarrow 0$, one actually finds $E_0^{(HF)} = E_0^{(Bog)} = E_0^{(GP)}$. In order to keep the numerical factor $I(K)$ close to its limit $\frac{128}{15\sqrt{\pi}}$ obtained for $K \rightarrow \infty$, one has to impose $K\bar{a} \gg \sqrt{\rho\bar{a}^3}$ while still having $K\bar{a} \ll 1$. In this case, we finally have $E_0^{(Bog)} \approx E_0^{(LY)}$ but $E_0^{(HF)} \gg E_0^{(LY)}$, so that the relation (7) is still fulfilled, which solves the paradox.

We stress however that in this case the renormalization procedure is not completed, because the value of $E_0^{(HF)}$ and other quantities still depend explicitly on the cut-off momentum K . For instance, the kinetic energy of the gas has the arbitrary value $\frac{2}{\pi} K\bar{a} \cdot E_0^{(GP)} \ll E_0^{(GP)}$ while it is expected to be usually much larger than the Gross-Pitaevskii energy in the alkali condensates [11]. It seems therefore that this derivation of the Lee-Yang energy is not satisfactory. The only way to obtain this energy exactly with a delta potential would be to remove the divergent term $a_1(U_\delta)$ "by hand" in Eq. (5), which is not justified, as the Bogoliubov kinetic energy would become negative [4].

IV. CALCULATION WITH A REGULARIZED CONTACT POTENTIAL

It is believed since the paper by Lee, Huang and Yang [5] that the removal of the divergence can be achieved elegantly using the pseudopotential U_{reg} (9). The use of this pseudopotential is thought to be equivalent to the renormalization procedure and to justify the previous calculations rigorously. One could be confident that the pseudopotential does lead to the Lee-Yang energy without any divergence problem, because it has a well defined Born series with no divergence:

$$a_0(U_{reg}) = \frac{m}{4\pi\hbar^2} g \equiv \bar{a}$$

$$a_1(U_{reg}) = 0$$

If these values were inserted in Eqs. (1) and (5), one would find immediately the Gross-Pitaevskii (10) and Lee-Yang energy (11). However, we are not allowed to use Eq. (5), nor Eq. (2) because they have been derived for a local potential and the regularizing part $\frac{\partial}{\partial r}(r \cdot)$ of the pseudopotential makes it nonlocal. Therefore, we must start from the many-body hamiltonian written with a pseudopotential binary interaction. Treating carefully the regularizing part, we arrive at the following mean

energy:

$$E^{(Bog)} = E_0^{(HF)} + \sum_{\mathbf{k} \neq 0} \left(T_{\mathbf{k}} n_{\mathbf{k}} + \frac{1}{2} \rho g x_{\mathbf{k}}^* \right) + \frac{1}{2} \rho g \lim_{r \rightarrow 0} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \cdot \sum_{\mathbf{k} \neq 0} (2n_{\mathbf{k}} \cos \frac{\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}}{2} + x_{\mathbf{k}} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}}) \right)$$

Assuming that the number of noncondensed atoms $\sum_{\mathbf{k} \neq 0} n_{\mathbf{k}}$ is convergent, we can take it out of the regularizing part:

$$E^{(Bog)} = E_0^{(HF)} + \sum_{\mathbf{k} \neq 0} \left((T_{\mathbf{k}} + \rho g) n_{\mathbf{k}} + \frac{1}{2} \rho g x_{\mathbf{k}}^* \right) + \frac{1}{2} \rho g \lim_{r \rightarrow 0} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \cdot \sum_{\mathbf{k} \neq 0} x_{\mathbf{k}} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} \right) \quad (17)$$

Interestingly, this expression is not equivalent to Eq. (21) of the original paper by Lee, Huang and Yang [5], which actually diverges towards $+\infty$ in the vacuum of quasiparticles. However, the mistake is corrected in Eq. (22) of the same reference, as it is equivalent to the expression (17) provided one can include the first sum of (17) inside the regularised part:

$$E^{(Bog)} = E_0^{(HF)} + \lim_{r \rightarrow 0} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \cdot \sum_{\mathbf{k} \neq 0} \{ (T_{\mathbf{k}} + \rho g) n_{\mathbf{k}} + \rho g \frac{x_{\mathbf{k}}^* + x_{\mathbf{k}}}{2} \} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} \right) \quad (18)$$

Now, performing the Bogoliubov transformation (3), one finds:

$$E^{(Bog)} = E_0^{(HF)} + \lim_{r \rightarrow 0} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \cdot \sum_{\mathbf{k} \neq 0} \{ -E_{\mathbf{k}} v_{\mathbf{k}}^2 + E_{\mathbf{k}} \langle \hat{\alpha}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{\alpha}_{\mathbf{k}} \rangle \} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} \right)$$

The authors of [5] assumed that the Bogoliubov ground-state could still be obtained for the vacuum of quasiparticles $\langle \hat{\alpha}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{\alpha}_{\mathbf{k}} \rangle = 0$. This leads indeed to the Lee-Yang energy, as the divergence is now cancelled by the regularizing operator. However, the vacuum of quasiparticles is not the ground-state any more. It would be the ground state if the term $\sum_{\mathbf{k} \neq 0} E_{\mathbf{k}} \langle \hat{\alpha}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{\alpha}_{\mathbf{k}} \rangle$ was always finite and could be taken out of the regularized part, to form the excitation part of the Hamiltonian. However this term may be divergent in general. A simple example is the Hartree-Fock state satisfying $\langle \hat{a}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}} \rangle = 0$, $\langle \hat{a}_{-\mathbf{k}} \hat{a}_{\mathbf{k}} \rangle = 0$, so that $\langle \hat{\alpha}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{\alpha}_{\mathbf{k}} \rangle = v_{\mathbf{k}}^2$. In this case, $\sum_{\mathbf{k} \neq 0} E_{\mathbf{k}} \langle \hat{\alpha}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{\alpha}_{\mathbf{k}} \rangle = \sum_{\mathbf{k} \neq 0} E_{\mathbf{k}} v_{\mathbf{k}}^2$ is divergent but cancels with the other term in the regularized part, so that the mean energy is simply the Hartree-Fock ground-state energy.

The fact that the Lee-Yang energy is not the Bogoliubov ground-state energy for a pseudopotential solves again the paradox, but in a different way than previously. The remaining question is why the vacuum of quasiparticles is not the Bogoliubov ground-state for a pseudopotential? It is known that the pseudopotential supports a single bound state. One may argue that the Bogoliubov ground-state is in fact some kind of cluster state, while the vacuum of quasiparticles is the physically relevant

$U(\mathbf{r})$	$a(U)$	$a_0(U)$	$a_1(U)$	$E_0^{(HF)}$	$E_0^{(Bog)}$
weak-coupling potential	\bar{a}	a_0	a_1	$\frac{1}{2}\rho N \frac{4\pi\hbar^2 a_0}{m}$	$\frac{1}{2}\rho N \frac{4\pi\hbar^2}{m} \left(a_0 + a_1 + a_0 \frac{128\sqrt{\rho a_0^3}}{15\sqrt{\pi}} \right)$
singular potential	\bar{a}	$+\infty$	$-\infty$	$+\infty$	$+\infty$
$g\delta^3(\mathbf{r})$	0	\bar{a}	$-\infty$	$E_0^{(GP)}$	$-\infty$
$g'(K)\delta^3(\mathbf{r}) \quad K \rightarrow \infty$	\bar{a}	0	0	0	0
$g'(K)\delta^3(\mathbf{r}) \quad \sqrt{\rho\bar{a}^3} \ll K\bar{a} \ll 1$	\bar{a}	$\approx \bar{a}(1 + \frac{2}{\pi}K\bar{a})$	$\approx -\frac{2}{\pi}K\bar{a}^2$	$\approx E_0^{(GP)}(1 + \frac{2}{\pi}K\bar{a})$	$\approx E_0^{(LY)}$
$g'(K)\delta^3(\mathbf{r}) \quad K\bar{a} \rightarrow 0$	\bar{a}	\bar{a}	0	$E_0^{(GP)}$	$E_0^{(GP)}$
$g\delta^3(\mathbf{r}) \frac{\partial}{\partial r}(r \cdot)$	\bar{a}	\bar{a}	0	$E_0^{(GP)}$	$? \leq E_0^{(GP)}$

TABLE I: Comparison of the Hartre-Fock ($E_0^{(HF)}$) and Bogoliubov ($E_0^{(Bog)}$) energies for different interactions $U(\mathbf{r})$. “weak-coupling” means that the potential U satisfies the Born approximation $a(U) \approx a_0(U)$; “singular” means that the potential has a nonintegrable repulsive hard core. In all cases $E_0^{(Bog)}$ is lower than $E_0^{(HF)}$, which solves the paradox expressed in the introduction.

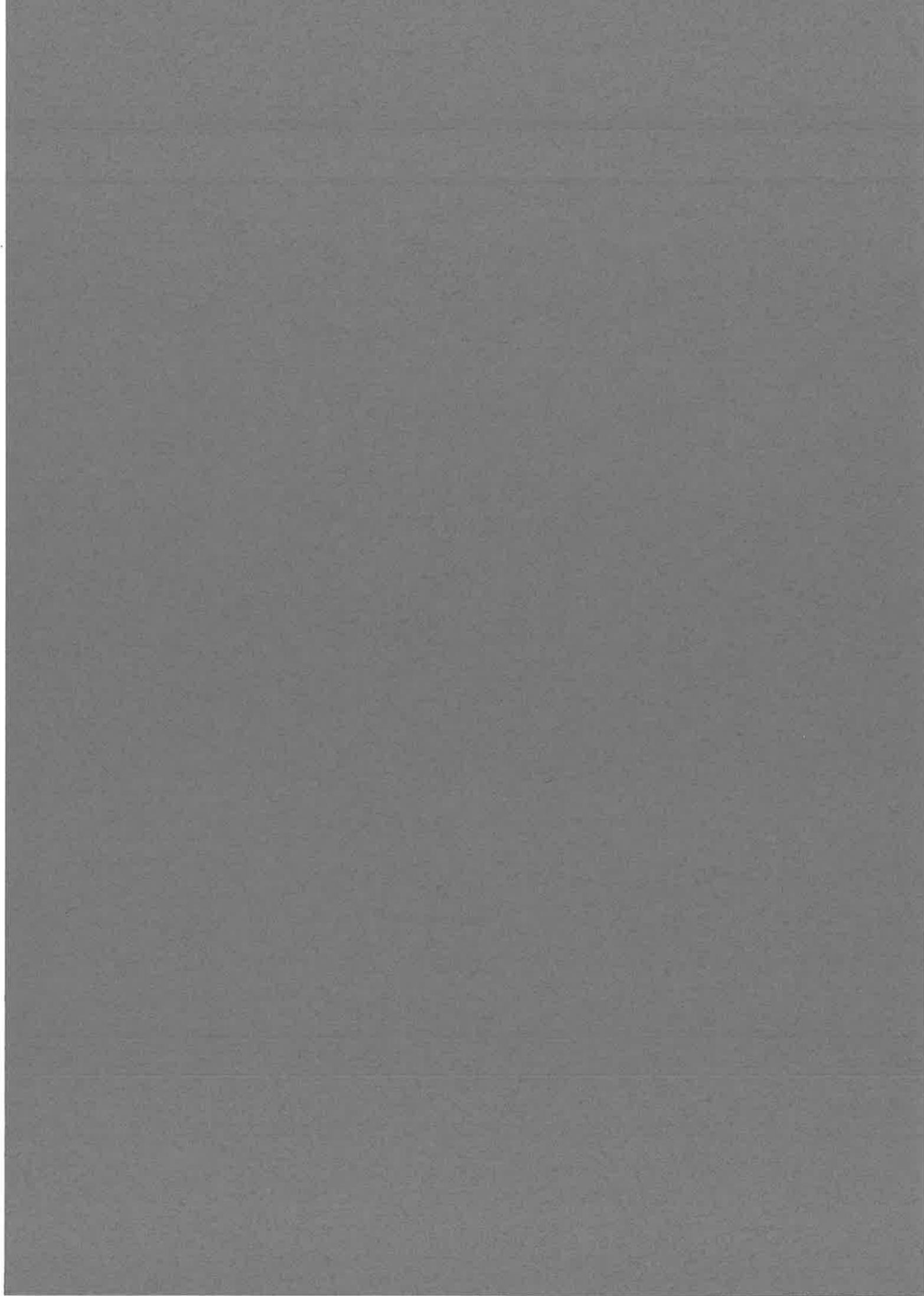
metastable state observed experimentally. However, it would be quite unexpected to find bound states, which are not a general feature of the Bogoliubov model. It should be also noted that the Hartree-Fock state (which contains no bound state) has already an energy lower than that of the vacuum of quasiparticles. Therefore, it is not clear whether the vacuum of quasiparticles is the relevant many-body scattering state in this context.

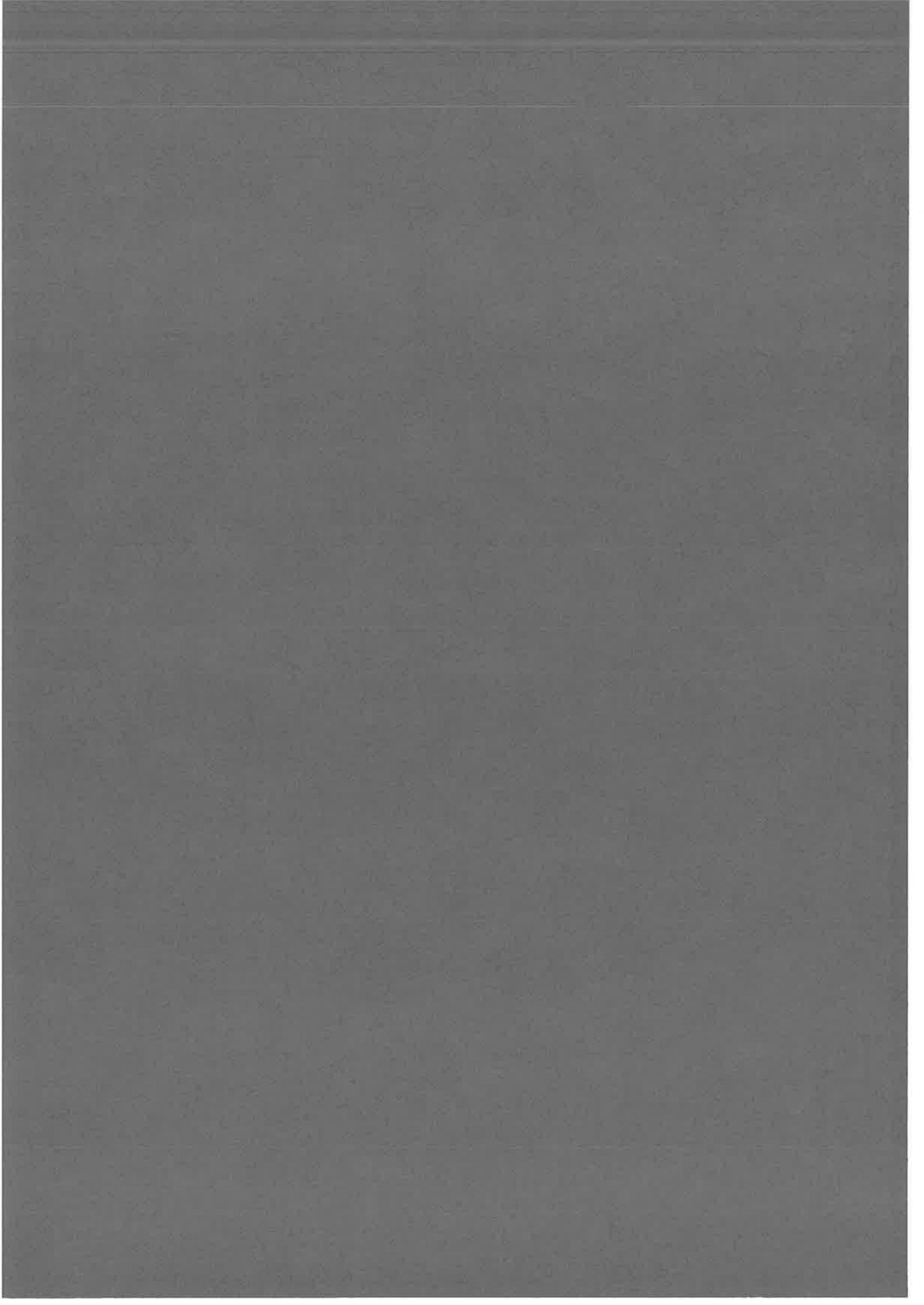
Conclusion

We have analysed the standard calculation of the Bogoliubov ground-state energy with different effective contact potentials (see a summary in Tab. I) and have shown explicitly that it is always lower than the Hartree-Fock ground-state energy, solving the paradox expressed in the introduction. Moreover, we showed that the usual derivations of the Lee-Yang energy (11) with these effective contact potentials are not completely satisfactory.

More generally for any potential, the Bogoliubov ground-state energy is not the full Lee-Yang energy (11) but only the first terms of its perturbative expansion (5). The reason is that the Bogoliubov model is a perturbative method which gives physical results only for local potentials satisfying the Born approximation. For instance, using this model with singular potentials (having a strong repulsive hard core) leads to infinite results (see Tab. I). Using the Bogoliubov model with effective interactions such as (8) and (9) is not justified either. It may lead to the Lee-Yang energy, but in artificial ways which are not general features of the Bogoliubov model. To our knowledge, the only way to derive the Lee-Yang energy properly is to use a method which treats the interaction beyond the Born approximation and is able to cope with any (possibly singular) potential. Some examples are the binary collision expansion method [7], the Beliaev method [8], the In-medium pair wave function method [4, 12], as well as the renormalized Bogoliubov method described in [9].

-
- [1] C. J. Pethick and H. Smith, *Bose-Einstein Condensation in dilute gases* (Cambridge, 2002).
 - [2] L. Pitaevskii and S. Stringari, *Bose-Einstein Condensation* (Oxford University Press, 2003).
 - [3] N. N. Bogoliubov, J. Phys. (USSR) **11** (1947), reprinted in *The many-body problem*, edited by D. Pines (W. A. Benjamin, New York, 1961).
 - [4] A. Y. Cherny and A. A. Shanenko, Phys. Rev. E **62**, 1646 (2000).
 - [5] T. D. Lee, K. Huang, and C. N. Yang, Phys. Rev. **106**, 1135 (1957).
 - [6] K. Huang, *Statistical Mechanics* (Wiley, New-York, 1987).
 - [7] T. D. Lee and C. N. Yang, Phys. Rev. **105**, 1119 (1957).
 - [8] S. T. Beliaev, Sov. Phys. JETP **7**, 299 (1958), reprinted in *The Many-Body Problem*, edited by D. Pines (W. A. Benjamin, New York, 1961).
 - [9] A. J. Leggett, New Journal of Physics **5**, 103.1 (2003).
 - [10] S. Kokkelmans, J. Milstein, M. Chiofalo, R. Walser, and M. Holland, Phys. Rev. A **65**, 053617 (2002).
 - [11] A. Y. Cherny and A. A. Shanenko, Phys. Lett. A **293**, 287 (2002).
 - [12] P. Naidon and F. Masnou-Seeuws, Phys. Rev. A **68**, 033612 (2003).





Chapitre 4

Voies couplées dans un condensat

La possibilité expérimentale de coupler les voies de collision dans un condensat (notamment par résonance de Feshbach) a conduit à de nouvelles modélisations théoriques pour traiter correctement ce phénomène. En effet, la description usuelle en terme de champ moyen donnée par l'équation de Gross-Pitaevskii n'est parfois plus suffisante, car celle-ci suppose qu'une seule courbe de potentiel décrit la collision des atomes dans le condensat. De nouveaux modèles se sont donc attachés à introduire les effets de la collision à plusieurs voies couplées. Pour la plupart, il s'agit de généralisations des approches théoriques que nous avons introduites dans le chapitre précédent. Nous allons passer en revue ces différents modèles, avant de présenter celui sur lequel nous avons travaillé, basé sur la méthode des fonctions d'onde effectives.

4.1 Généralités

4.1.1 Effets des voies couplées dans un condensat

4.1.1.1 Contrôle de l'interaction

Une caractéristique importante d'un système de voies couplées est la possibilité de changer la longueur de diffusion de paires d'atomes en collision. Par exemple, au voisinage d'une résonance de Feshbach, on a le comportement dispersif suivant de la longueur de diffusion (2.40) :

$$a = \bar{a} \left(1 - \frac{\Delta B}{B - B_0} \right) \quad (4.1)$$

où B est le champ magnétique qu'on applique pour induire la résonance, \bar{a} est la longueur de diffusion hors-résonance, B_0 correspond à la valeur du champ magnétique à résonance, et ΔB est la largeur de la résonance. De même, on a vu au paragraphe 2.2.4.3 que la photoassociation vers un état lié isolé induit également une modification de la longueur de diffusion de la forme :

$$a = \bar{a} - \frac{\alpha}{\delta - i\frac{\gamma}{2}} \quad (4.2)$$

où δ est le désaccord (en fréquence) du laser par rapport à la position de la résonance avec l'état lié, et γ est lié à la durée de vie de l'état lié.

On sait par ailleurs que la nature globale (attractive ou répulsive) et l'intensité des interactions dans un gaz froid est donnée en grande partie par la longueur de diffusion (voir le paragraphe 2.1.2.2). En couplant les voies de collision dans un condensat par photoassociation ou résonance de Feshbach, on s'attend donc à pouvoir contrôler les interactions. Notons qu'il est assez rare en physique d'avoir la possibilité de contrôler les interactions d'une assemblée de particules. Bien souvent, l'expérimentateur doit s'accommoder des interactions telles qu'elles sont naturellement (forces coulombiennes, interaction gravitationnelle, etc).

Expériences de « Bosenova » : destruction d'un condensat atomique au voisinage d'une résonance magnétique

L'une des premières expériences [Inouye1998] ayant mis en évidence la possibilité de résonance de Feshbach magnétique dans les atomes froids avait la particularité d'être réalisée dans un condensat. Les physiciens ont pu exploiter très rapidement ce contrôle de l'interaction dans les condensats. On a vu au paragraphe 3.1.1 que la longueur de diffusion est un paramètre essentiel dans la description des condensats. Son signe est par exemple déterminant vis-à-vis de la stabilité du condensat. Les expérimentateurs ont donc utilisé les résonances de Feshbach pour changer le signe de la longueur de diffusion. D'une part, cela permet de condenser plus facilement des espèces dont la longueur de diffusion « naturelle » n'est pas favorable à la formation d'un condensat stable, comme le rubidium 85 [Cornish2000] ou le césium 133 [Weber2002]. D'autre part, on peut faire passer brutalement la longueur de diffusion d'une valeur positive où le condensat est stable à une valeur négative où il devient instable. On s'attend à ce que le condensat implose sur lui-même, l'interaction rapprochant les atomes les uns des autres. La fréquence des collisions à trois corps est alors fortement amplifiée, ce qui est censé détruire le condensat.

De telles expériences ont été menées au MIT [Stenger1998] pour les résonances à 853 G et 907 G dans le ^{23}Na , et au JILA [Cornish2000, Donley2001] pour la résonance à 155 G dans le ^{85}Rb . Une perte importante des atomes du condensat a en effet été observée, mais elle s'est accompagnée d'une "bouffée" d'atomes, d'une température de l'ordre de 200 nK. Au final, le système comprend un résidu du condensat entouré d'un nuage thermique. L'équipe du JILA a qualifié ces expériences de "Bosenovae", par analogie avec les supernovae. On a d'abord invoqué les collisions inélastiques à trois corps pour expliquer ces phénomènes. Néanmoins, la dépendance de la perte d'atomes vis-à-vis du champ magnétique ne correspond pas aux celles attendues pour des pertes à trois corps, et les températures des atomes éjectés sont trop faibles par rapport aux énergies libérées par la formation de molécules diatomiques lors d'une collision à trois corps. Les études théoriques actuelles [vA1999, Milstein2003, Köhler2004] montrent qu'il s'agirait plutôt d'un phénomène à deux corps mettant en jeu le couplage transitoire avec un condensat moléculaire.

4.1.1.2 Formation de condensats moléculaires

Les expériences de Bosenova ont amené à l'idée suggérée par E. Timmermans *et al.* [Timmermans1999] que les résonances de Feshbach pouvaient conduire à un couplage avec un condensat moléculaire. En effet, le peuplement d'états liés au cours des collisions est une caractéristique générale d'un système de voies couplées. On peut s'attendre à ce que le couplage entre les voies préserve la cohérence du système, c'est-à-dire la phase des fonctions d'onde en jeu. C'est le cas des résonances de Feshbach magnétiques ou de la réaction de photoassociation à condition que l'émission spontanée de la voie excitée peut être contournée. Si les atomes en collision forment initialement un condensat (dont la fonction d'onde a une phase bien définie), on s'attend donc à ce que les états liés peuplés forment aussi un condensat de paires liées, c'est-à-dire un condensat moléculaire.

Expérience d'oscillations entre atomes et molécules dans un condensat atomique

La première expérience indiquant la possibilité d'un couplage avec un condensat moléculaire est l'expérience du JILA [Donley2002, Claussen2003] effectuée dans la continuité des expériences précédentes [Cornish2000, Donley2001]. Au lieu de traverser la résonance de Feshbach, les expérimentateurs du JILA ont appliqué une rampe sophistiquée de champ magnétique. La longueur de diffusion reste toujours positive mais varie de la manière suivante : elle devient très grande (de l'ordre de 8000 unités atomiques) pendant une dizaine de microsecondes (1er pulse magnétique), puis est abaissée à quelques centaines d'unités atomiques pendant un certain temps, remontée à une grande valeur pendant une dizaine de microsecondes (second pulse magnétique), et enfin

ramenée à une petite valeur. On observe alors des explosions d'atomes, de la même manière que dans les expériences de Bosenova, bien que la longueur de diffusion reste positive. Les expérimentateurs ont mesuré le nombre d'atomes condensés restants, ainsi que le nombre final d'atomes « chauds » éjectés. La somme de ces deux nombres n'est pas toujours égal au nombre total initial d'atomes. Il semblerait donc qu'une partie des atomes se retrouve dans un état « caché », non accessible par l'imagerie standard de l'expérience.

En traçant le nombre d'atomes condensés restants et le nombre final d'atomes « chauds » en fonction de la durée intermédiaire entre les deux pulses magnétiques, les expérimentateurs ont obtenu des courbes oscillant à une certaine fréquence. Le nombre d'atomes manquants oscille donc lui aussi à cette même fréquence. Il s'est avéré que la fréquence de ces oscillations est en fait reliée à l'énergie du dernier état moléculaire pour la valeur du champ magnétique entre les deux pulses. Ceci a montré que les atomes manquants non-observés correspondent en fait à des paires d'atomes liés. La question était de savoir si ces paires liées formaient un condensat moléculaire. Différents modèles théoriques [Kokkelmans2002a, Mackie2002, ?, Duine2003] basés sur l'hypothèse d'un couplage avec un condensat moléculaire¹ ont été utilisés pour analyser cette expérience et ont confirmé cette interprétation, même si la présence d'un condensat moléculaire n'a pas été démontrée directement.

Formation de condensats moléculaires

La réalisation d'un condensat moléculaire constituait un défi au début des années 2000. Il a finalement été relevé en 2003 par l'équipe de R. Grimm à l'université d'Innsbruck [Jochim2003b] et par celle de D. Jin au JILA [M.Greiner2003], suivie de près par les équipes de W. Ketterle (MIT), de R. Hulet (Rice University), de C. Salomon (ENS), et de G. Rempe (Garching). L'explosion de résultats expérimentaux [Herbig2003, Strecker2003, Cubizolles2003, Xu2003, Zwierlein2003, Regal2004b, Regal2004a, Dürr2004] concernant la formation de molécules condensées a été particulièrement frappantes.

Toutes ont utilisé des résonances de Feshbach magnétiques pour transformer une partie d'un gaz d'atomes fermioniques ou bosoniques en condensat de molécules, mais selon des mécanismes différents. Il s'agit dans certains cas de rampes de Feshbach conduisant adiabatiquement à la formation de molécules, ou de recombinaisons à trois corps au voisinage d'une résonance de Feshbach. Il est important de noter que les premiers condensats moléculaires ont été obtenus à partir de gaz de Fermi, et non de condensats de Bose-Einstein comme on l'imaginait en premier lieu. Par ailleurs, les rendements de formation de molécules dans les gaz de Fermi se sont avérés extrêmement meilleurs (jusqu'à 85% [Cubizolles2003]) que dans les condensats (seulement 5 à 12 %) [Herbig2003, Xu2003, Dürr2004]. On pense actuellement que cette différence marquée est due à une plus grande stabilité des molécules formées à partir de fermions vis-à-vis des collisions, du fait du principe d'exclusion de Pauli [Petrov2004].

4.1.2 Équations générales

Pour rendre compte du contrôle de la longueur de diffusion, on pourrait, en première approche, utiliser l'équation de Gross-Pitaevskiï (3.47) en y remplaçant la longueur de diffusion par l'une des expressions (4.1) ou (4.2). Cela signifierait que le seul effet des voies couplées est de redéfinir l'interaction effective entre atomes du condensat pour chaque valeur du champ magnétique ou

¹Dans les travaux de l'équipe d'Oxford, il est dit que le couplage avec un condensat moléculaire n'est pas présupposé, et n'apparaît que lors de la résolution des équations. Plus précisément, il faudrait dire que c'est la présence de paires liées qui n'est pas présupposée. La description des paires d'atomes est par ailleurs uniquement donnée par un fonction d'onde de paires « cohérentes », correspondant nécessairement à un condensat de paires. Lorsque ces paires ont une composante liée, il s'agit nécessairement d'un condensat moléculaire. Pour véritablement traiter des molécules non-condensées, il faudrait considérer d'autres fonctions d'ondes, à la manière des modes non-condensés pour un condensat atomique.

chaque fréquence du laser. Cependant, jusqu'à quel point le contrôle de l'interaction donné par les équations (4.1) et (4.2) est-il valable ?

Nous allons voir que cette description se justifie lorsque l'on peut considérer la dynamique des atomes en collision comme quasi-statique vis-à-vis de l'évolution du condensat. En revanche, certaines situations dépendant fortement du temps ne peuvent pas être décrites par cette interaction effective et nécessitent de tenir compte plus précisément de la dynamique des atomes lors de la collision.

Comme lorsque nous avons introduit les différents modèles de condensats atomiques (voir 3.1.5, p.58), nous allons tout d'abord donner un ensemble d'équations « générales » décrivant un système de voies couplées dans un condensat, afin de faciliter la comparaison entre les différents modèles autour d'une base commune.

Jusqu'à présent, nous avons considéré que les atomes étaient des particules identiques et indiscernables, car étant tous préparés dans le même état interne (c'est-à-dire le même état électronique). Nous ne nous sommes attachés qu'à décrire l'évolution de leur état externe, c'est-à-dire des positions de leurs centres de masse, par le biais de l'opérateur-champ $\hat{\psi}(\mathbf{x})$ et des fonctions de corrélation qui en découlent. Pour parler de voies couplées, nous devons maintenant tenir compte du fait que les atomes peuvent avoir différents états internes. Il est difficile de donner une description très rigoureuse de ces états internes dans le cadre d'une théorie à N atomes. En principe, il faudrait définir une fonction d'onde à N noyaux et ZN électrons (où Z est le numéro atomique de l'espèce considérée), ce qui serait trop général et intraitable. On partira donc d'une description phénoménologique, en gardant à l'esprit l'image de Born-Oppenheimer des nuages électroniques « enrobant » constamment les noyaux atomiques. Cette description phénoménologique a été introduite dans l'article [Naidon2003].

4.1.2.1 Approche en termes d'opérateurs-champs

Pour chaque état propre $|n\rangle$ de l'hamiltonien électronique d'un atome, on peut définir un champ quantique $\hat{\psi}_n$ tel que $\hat{\psi}_n^\dagger(\mathbf{x})$ crée un atome au point \mathbf{x} dans l'état électronique $|n\rangle$, ce qu'on peut écrire formellement :

$$\hat{\psi}_n^\dagger(\mathbf{x})|\emptyset\rangle = |\mathbf{x}\rangle \otimes |n\rangle \quad (4.3)$$

où $|\emptyset\rangle$ désigne le vide d'atomes. On a alors les relations de commutation :

$$\begin{aligned} [\hat{\psi}_n, \hat{\psi}_p^\dagger] &= \delta_{np} \delta(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \\ [\hat{\psi}_n, \hat{\psi}_p] &= 0 \end{aligned}$$

Ce type d'opérateurs a été introduit dans les références [Naidon2003, Gasenzer2004]. Étudions précisément ce que signifie cette notation.

On peut par exemple construire la fonction d'onde ψ^{noy+el} d'un atome dans l'état électronique $|n\rangle$ de la manière suivante :

$$\psi^{noy+el}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_i) \equiv \langle \mathbf{x}, \mathbf{x}_i | \int d^3\mathbf{z} \psi^{noy}(\mathbf{z}) \hat{\psi}_n^\dagger(\mathbf{z}) |\emptyset\rangle = \psi^{noy}(\mathbf{x}) \psi_n^{el}(\mathbf{x}_i - \mathbf{x})$$

où \mathbf{x} est la position du noyau atomique (assimilable au centre de masse) et les \mathbf{x}_i sont les positions des électrons (dans le référentiel du laboratoire). ψ^{noy} est ici une fonction d'onde quelconque décrivant le mouvement du noyau de l'atome (assimilable à son centre de masse), et ψ_n^{el} est la fonction d'onde électronique associée à l'état propre électronique $|n\rangle$. Notons bien que cette fonction est centrée sur le noyau atomique.

De même, on peut construire une fonction d'onde à deux atomes :

$$\begin{aligned}\phi^{noy+el}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_i; \mathbf{x}', \mathbf{x}'_i) &\equiv \mathcal{N}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_i; \mathbf{x}', \mathbf{x}'_i) \int d^3\mathbf{z} d^3\mathbf{z}' \phi^{noy}(\mathbf{z}, \mathbf{z}') \hat{\psi}_n^\dagger(\mathbf{z}) \hat{\psi}_p^\dagger(\mathbf{z}') |\emptyset\rangle \\ &= \frac{\mathcal{N}}{\sqrt{2}} (\phi^{noy}(\mathbf{z}, \mathbf{z}') \psi_n^{el}(\mathbf{x}_i - \mathbf{x}) \psi_p^{el}(\mathbf{x}'_i - \mathbf{x}') + \phi^{noy}(\mathbf{z}', \mathbf{z}) \psi_n^{el}(\mathbf{x}'_i - \mathbf{x}) \psi_p^{el}(\mathbf{x}_i - \mathbf{x}'))\end{aligned}\quad (4.4)$$

où ϕ^{noy} est une fonction d'onde décrivant le mouvement des deux noyaux, et \mathcal{N} est un facteur de normalisation. En supposant que ϕ^{noy} est symétrique par échange des noyaux (par exemple pour une onde s), on peut écrire :

$$\phi^{noy+el}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_i; \mathbf{x}, \mathbf{x}'_i) \equiv \phi^{noy}(\mathbf{z}, \mathbf{z}') \bar{\phi}_{np}^{el}(\mathbf{x}_i, \mathbf{x}'_i; \mathbf{x}, \mathbf{x}')$$

avec : $\bar{\phi}_{np}^{el}(\mathbf{x}_i, \mathbf{x}'_i; \mathbf{x}, \mathbf{x}') = \frac{\psi_n^{el}(\mathbf{x}_i - \mathbf{x}) \psi_p^{el}(\mathbf{x}'_i - \mathbf{x}') + \psi_n^{el}(\mathbf{x}'_i - \mathbf{x}) \psi_p^{el}(\mathbf{x}_i - \mathbf{x}')}{\sqrt{2}}$. Si ϕ^{noy} et ψ_n^{el} sont normalisés à 1, on en conclut que ϕ^{noy+el} est correctement normalisée à 1 pour $\mathcal{N} = 1$ si $n \neq p$, et $\mathcal{N} = \frac{1}{\sqrt{2}}$ si $n = p$. Les états à deux atomes correctement normalisés sont donc de la forme :

$$\int d^3\mathbf{z} d^3\mathbf{z}' \phi^{noy}(\mathbf{z}, \mathbf{z}') \frac{1}{\sqrt{2}} \hat{\psi}_n^\dagger(\mathbf{z}) \hat{\psi}_n^\dagger(\mathbf{z}') |\emptyset\rangle \quad (4.5)$$

$$\int d^3\mathbf{z} d^3\mathbf{z}' \phi^{noy}(\mathbf{z}, \mathbf{z}') \hat{\psi}_n^\dagger(\mathbf{z}) \hat{\psi}_p^\dagger(\mathbf{z}') |\emptyset\rangle \quad (4.6)$$

Néanmoins, les états électroniques obtenus $\bar{\phi}_{np}^{el}$ ne correspondent pas aux états électroniques moléculaires ϕ_n^{el} que nous avons introduits au chapitre 1. En effet, il ne s'agit ici que d'états électroniques atomiques, centrés sur chacun des atomes et symétrisés par échange des positions des atomes. Cela peut correspondre à une bonne description des paires d'atomes à grande distance, mais pas à courte distance où les nuages électroniques se recouvrent pour former un nuage moléculaire décrit par ϕ_n^{el} . Le problème vient du fait que la définition (4.3) suppose que les états internes des atomes sont indépendants de leurs états externes.

On ne peut donc pas faire apparaître les potentiels moléculaires U_n à partir de cette description. On est donc obligé de les introduire « à la main ». On peut par exemple imposer dans les équations que le produit de deux opérateurs-champs tel que dans l'expression (4.4) génère en fait un état propre de l'hamiltonien électronique moléculaire (ce que nous avons supposé dans l'article [Naidon2003]). On peut aussi directement dire que l'hamiltonien du système s'écrit de manière phénoménologique [Gasenzer2004] :

$$\hat{H} = \sum_n \int d^3\mathbf{x} \hat{\psi}_n^\dagger(\mathbf{x}) H_{n,\mathbf{x}} \hat{\psi}_n(\mathbf{x}) + \frac{1}{2} \sum_{kl,mn} \int d^3\mathbf{x} d^3\mathbf{y} \hat{\psi}_k^\dagger(\mathbf{x}) \hat{\psi}_l^\dagger(\mathbf{y}) U_{kl,mn}(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \hat{\psi}_m(\mathbf{y}) \hat{\psi}_n(\mathbf{x}) \quad (4.7)$$

Où $H_{n,\mathbf{x}} = -\frac{\hbar^2 \nabla_{\mathbf{x}}^2}{2m} + V_n(\mathbf{x}) + E_n$ est l'hamiltonien à un corps pour un atome dans l'état $|n\rangle$, et les $U_{kl,mn}$ correspondent aux potentiels moléculaires permettant à deux atomes initialement dans les états $|m\rangle$ et $|n\rangle$ de se retrouver dans les états $|m\rangle$ et $|n\rangle$ après interaction. Il s'agit en quelque sorte du potentiel multivoie que nous avons introduit au chapitre 1. Néanmoins, l'analogie avec le potentiel multivoie n'est pas complète.

Il faut tout d'abord noter que l'hamiltonien (4.7) peut conduire à des problèmes (non-essentiels) de normalisation des fonctions d'onde, par exemple si on l'utilise pour traiter le problème à deux atomes. La raison est que la fonction d'onde d'une paire d'atomes dans le même état électronique (4.5) n'a pas la même normalisation que celle d'une paire d'atomes dans des états électroniques différents (4.6).

Par ailleurs, tous les potentiels $U_{kl,mn}$ doivent tendre vers 0 aux grandes séparations atomiques, et non vers des énergies de deux atomes isolés comme c'est le cas pour les potentiels

moléculaires multivoies. En effet, le terme d'interaction de l'hamiltonien du système doit s'annuler lorsque tous les atomes sont isolés les uns des autres. La raison est que les énergies individuelles des atomes sont déjà prises en compte dans l'hamiltonien à un corps $H_{n,\mathbf{x}}$, et on ne peut pas s'arranger pour inclure ces énergies individuelles dans les potentiels $U_{kl,mn}$ car on compterait chaque énergie individuelle $N - 1$ fois de trop. Notons bien que *tous* les potentiels $U_{kl,mn}(\mathbf{r})$ doivent tendre vers zéro à grande distance ($r \rightarrow \infty$) : les termes diagonaux $U_{kl,kl}(\mathbf{r})$ (responsables des collisions élastiques dans chaque voie) mais aussi les termes non-diagonaux (responsables des couplages entre voies). Si des couplages existent à grandes distances, cela signifie que la base n'est pas adaptée : en passant dans la base adiabatique (c'est-à-dire en diagonalisant la matrice $U_{kl,mn}(\mathbf{r})$ pour chaque position \mathbf{r} - voir le paragraphe 2.1.1.3, p. 17), on obtient à grandes distances des termes diagonaux qu'il faut inclure l'hamiltonien à un corps, pour ne pas les compter plusieurs fois. Cela pose un problème de méthode si les potentiels $U_{kl,mn}$ ne s'annulent pas à l'infini, et varient dans le temps, car cela signifie qu'il faut adiabatiser le potentiel multivoie à chaque instant pour que la théorie à N corps soit bien définie ! Comment traiter les couplages radiaux dans ce cas ? À défaut de pouvoir donner une théorie propre des voies couplées dans un système à N corps, nous nous contenterons de poser un hamiltonien phénoménologique suffisamment raisonnable.

4.1.2.2 Hamiltonien phénoménologique

Nous n'allons considérer, pour simplifier, que deux voies couplées. La voie fondamentale (1) correspond à la voie électronique de collision pour deux atomes dans leur état électronique fondamental noté $|a\rangle$. La voie excitée (2) correspond à la voie électronique de collision pour deux atomes dans des états électroniques excités $|b\rangle$ et $|c\rangle$ (on peut choisir $b = c$ sans que cela ait de conséquence notable dans les équations qui vont suivre ; il faut juste prendre garde aux facteurs $\sqrt{2}$). Aux faibles énergies de collision caractéristiques d'un condensat, la voie (1) est ouverte et la voie (2) est fermée. On s'attend donc à ce que les atomes dans les états $|b\rangle$ et $|c\rangle$ forme des paires liées, que nous appellerons molécules excitées. Ceci va nous guider dans la formulation de l'hamiltonien.

Dans certains cas, un des états asymptotiques de la voie (2) (par exemple $|b\rangle$) correspond à l'état fondamental $|a\rangle$. C'est le cas par exemple lorsqu'on photoassocie une paire d'atomes dans un état de symétrie $s - s$ vers un état moléculaire $s - p$. Doit-on dans ce cas choisir $b = a$? Il est difficile de répondre à cette question. En effet, il serait logique de choisir $b = a$ si l'on s'intéressait aux états de diffusion dans la voie (2). Néanmoins la voie (2) est fermée dans le cas qui nous occupe, et les états « internes » des atomes liés se mélangent. Il paraît donc plus hasardeux de dire qu'un des atomes de la paire liée est indiscernable des autres atomes libres. C'est un problème lié à la nature composite des atomes que l'hamiltonien phénoménologique ne peut pas résoudre. Comme en pratique nous ne considérerons pas la structure hyperfine dans la suite, il paraît raisonnable de supposer que $b, c \neq a$. Notons que cela n'aura pas de conséquence importante compte-tenu des approximations utilisées : les atomes dans la voie excitée seront toujours considérés comme fortement liés, et on négligera les collisions de ces atomes avec d'autres atomes du milieu.

Pour deux atomes, le potentiel multi-voies s'écrit :

$$U = \begin{bmatrix} U_1 + 2E_a & H_{12} \\ H_{12}^* & U_2 + E_b + E_c \end{bmatrix}$$

où U_1 et U_2 sont les potentiels associés aux deux voies et H_{12} est le potentiel de couplage entre les deux voies. On choisit que U_1 et U_2 tendent vers zéro à grande distance, de manière à faire apparaître explicitement les énergies individuelles atomiques E_a, E_b et E_c .

Compte-tenu des considérations de la section précédente, nous posons l'hamiltonien phénoménologique suivant :

$$\hat{H} = \sum_{n=a,b,c} \int d^3\mathbf{x} \hat{\psi}_n^\dagger(\mathbf{x}) H_{n,\mathbf{x}} \hat{\psi}_n(\mathbf{x}) + \frac{1}{2} \sum_{kl,mn} \int d^3\mathbf{x} d^3\mathbf{y} \begin{bmatrix} \hat{\psi}_a(\mathbf{x}) \hat{\psi}_a(\mathbf{y}) \\ \sqrt{2} \hat{\psi}_b(\mathbf{x}) \hat{\psi}_c(\mathbf{y}) \end{bmatrix}^\dagger \cdot \begin{bmatrix} U_1(\mathbf{x}-\mathbf{y}) & H_{12}(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \\ H_{12}^*(\mathbf{x}-\mathbf{y}) & U_2(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} \hat{\psi}_a(\mathbf{y}) \hat{\psi}_a(\mathbf{x}) \\ \sqrt{2} \hat{\psi}_c(\mathbf{y}) \hat{\psi}_b(\mathbf{x}) \end{bmatrix} \quad (4.8)$$

Où $H_{n,\mathbf{x}} = -\frac{\hbar^2 \nabla_{\mathbf{x}}^2}{2m} + V_n(\mathbf{x}) + E_n$ est l'hamiltonien à un corps pour un atome dans l'état $|n\rangle$. Notons que si $b = c$, le facteur $\sqrt{2}$ n'apparaît pas, et l'hamiltonien (4.8) ci-dessus est une application directe de l'expression (4.7). Notons de plus que cet hamiltonien néglige complètement les collisions entre atomes dans les états $|a\rangle$ et $|b\rangle$, ou $|a\rangle$ et $|c\rangle$ (donc les collisions entre les molécules excités avec les atomes libres), ainsi que les collisions entre atomes $|b\rangle$ et entre atomes $|c\rangle$ (donc une partie des collisions entre molécules excitées). On pourrait tenir compte de ces collisions en considérant une matrice de potentiels incluant toutes les voies à deux corps possibles. Néanmoins, les collisions en question sont des collisions à trois corps où deux d'entre eux (b et c) sont liés. Pour les traiter correctement ces phénomènes à « trois corps rapprochés », il nous faudrait en principe tenir compte des surfaces de potentiel triatomiques en plus des courbes de potentiel moléculaires diatomiques, ce qui serait très largement hors de notre propos.

L'hamiltonien (4.8) est construit de telle sorte qu'il redonne les équations couplées de la physique à deux atomes.

Considérons en effet l'état à deux atomes :

$$|\Omega\rangle = \int d^3\mathbf{z} d^3\mathbf{z}' \left(\phi_1(\mathbf{z}, \mathbf{z}', t) \frac{1}{\sqrt{2}} \hat{\psi}_a^\dagger(\mathbf{z}) \hat{\psi}_a^\dagger(\mathbf{z}') + \phi_2(\mathbf{z}, \mathbf{z}', t) \hat{\psi}_b^\dagger(\mathbf{z}) \hat{\psi}_c^\dagger(\mathbf{z}') \right) |\emptyset\rangle$$

Les fonctions ϕ_1 et ϕ_2 sont les composantes de la fonction d'onde des noyaux sur les voies (1) et (2), respectivement. Elle vérifient la normalisation $\int d^3\mathbf{x} d^3\mathbf{y} (|\phi_1(\mathbf{x}, \mathbf{y})|^2 + |\phi_2(\mathbf{x}, \mathbf{y})|^2) = 1$, ce qui assure la normalisation de l'état $|\Omega\rangle$.

Cet état évolue selon l'équation de Schrödinger :

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\Omega\rangle = \hat{H} |\Omega\rangle$$

qui conduit aux équations suivantes pour Φ_1 et Φ_2 :

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \phi_1(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) &= \left(H_{a,\mathbf{x}} + H_{a,\mathbf{y}} + U_1(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \right) \phi_1(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) + H_{12}(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \phi_2(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) \\ i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \phi_2(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) &= \left(H_{b,\mathbf{x}} + H_{c,\mathbf{y}} + U_2(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \right) \phi_2(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) + H_{12}^*(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \phi_1(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) \end{aligned}$$

On retrouve bien la structure des équations à deux voies couplées pour deux atomes. En particulier, si l'on néglige l'influence du mouvement de centre de masse $\mathbf{R} = \frac{\mathbf{x}+\mathbf{y}}{2}$ dans le piège, on obtient pour le mouvement relatif $\mathbf{r}=\mathbf{y}-\mathbf{x}$:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \begin{bmatrix} \phi_1(\mathbf{r}, t) \\ \phi_2(\mathbf{r}, t) \end{bmatrix} = \left\{ -\frac{\hbar^2}{m} \nabla_{\mathbf{r}}^2 + \begin{bmatrix} U_1(\mathbf{r}) + 2E_a & H_{12}(\mathbf{r}) \\ H_{12}^*(\mathbf{r}) & U_2(\mathbf{r}) + E_b + E_c \end{bmatrix} \right\} \begin{bmatrix} \phi_1(\mathbf{r}, t) \\ \phi_2(\mathbf{r}, t) \end{bmatrix}$$

c'est-à-dire la version dépendant du temps de l'équation (2.4).

4.1.2.3 Expressions générales

À partir de l'hamiltonien phénoménologique (4.8), on peut écrire l'équation du mouvement pour les opérateurs $\hat{\psi}_a(\mathbf{x}, t)$, $\hat{\psi}_a(\mathbf{x}, t)\hat{\psi}_a(\mathbf{y}, t)$, et $\hat{\psi}_b(\mathbf{x}, t)\hat{\psi}_c(\mathbf{y}, t)$ (on omet la dépendance en t pour plus de lisibilité) :

$$i\hbar \frac{\partial \hat{\psi}_a(\mathbf{x})}{\partial t} = H_{a,\mathbf{x}} \hat{\psi}_a(\mathbf{x}) + \int d^3\mathbf{z} \begin{bmatrix} \hat{\psi}_a^\dagger(\mathbf{z}) \\ 0 \end{bmatrix}^\top \cdot \begin{bmatrix} U_1(\mathbf{z}-\mathbf{x}) & H_{12}(\mathbf{z}-\mathbf{x}) \\ H_{12}^*(\mathbf{z}-\mathbf{x}) & U_2(\mathbf{z}-\mathbf{x}) \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} \hat{\psi}_a(\mathbf{z})\hat{\psi}_a(\mathbf{x}) \\ \sqrt{2}\hat{\psi}_b(\mathbf{z})\hat{\psi}_c(\mathbf{x}) \end{bmatrix} \quad (4.9)$$

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial \hat{\psi}_a(\mathbf{x})\hat{\psi}_a(\mathbf{y})}{\partial t} &= (H_{a,\mathbf{x}} + H_{a,\mathbf{y}})\hat{\psi}_b(\mathbf{x})\hat{\psi}_c(\mathbf{y}) \\ &+ \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \end{bmatrix}^\top \cdot \begin{bmatrix} U_1(\mathbf{x}-\mathbf{y}) & H_{12}(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \\ H_{12}^*(\mathbf{x}-\mathbf{y}) & U_2(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} \hat{\psi}_a(\mathbf{y})\hat{\psi}_a(\mathbf{x}) \\ \sqrt{2}\hat{\psi}_c(\mathbf{y})\hat{\psi}_b(\mathbf{x}) \end{bmatrix} \\ &+ \int d^3\mathbf{z} \begin{bmatrix} \hat{\psi}_a^\dagger(\mathbf{z})\hat{\psi}_a(\mathbf{x}) \\ 0 \end{bmatrix}^\top \cdot \begin{bmatrix} U_1(\mathbf{z}-\mathbf{y}) & H_{12}(\mathbf{z}-\mathbf{y}) \\ H_{12}^*(\mathbf{z}-\mathbf{y}) & U_2(\mathbf{z}-\mathbf{y}) \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} \hat{\psi}_a(\mathbf{y})\hat{\psi}_a(\mathbf{z}) \\ \sqrt{2}\hat{\psi}_c(\mathbf{y})\hat{\psi}_b(\mathbf{z}) \end{bmatrix} + \{x \leftrightarrow y\} \end{aligned} \quad (4.10)$$

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial \sqrt{2}\hat{\psi}_b(\mathbf{x})\hat{\psi}_c(\mathbf{y})}{\partial t} &= (H_{b,\mathbf{x}} + H_{c,\mathbf{y}})\sqrt{2}\hat{\psi}_b(\mathbf{x})\hat{\psi}_c(\mathbf{y}) \\ &+ \begin{bmatrix} 0 \\ 1 \end{bmatrix}^\top \cdot \begin{bmatrix} U_1(\mathbf{x}-\mathbf{y}) & H_{12}(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \\ H_{12}^*(\mathbf{x}-\mathbf{y}) & U_2(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} \hat{\psi}_a(\mathbf{y})\hat{\psi}_a(\mathbf{x}) \\ \sqrt{2}\hat{\psi}_c(\mathbf{y})\hat{\psi}_b(\mathbf{x}) \end{bmatrix} \\ &+ \int d^3\mathbf{z} \begin{bmatrix} 0 \\ \hat{\psi}_b^\dagger(\mathbf{z})\hat{\psi}_b(\mathbf{x}) \end{bmatrix}^\top \cdot \begin{bmatrix} U_1(\mathbf{z}-\mathbf{y}) & H_{12}(\mathbf{z}-\mathbf{y}) \\ H_{12}^*(\mathbf{z}-\mathbf{y}) & U_2(\mathbf{z}-\mathbf{y}) \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} \hat{\psi}_a(\mathbf{y})\hat{\psi}_a(\mathbf{z}) \\ \sqrt{2}\hat{\psi}_c(\mathbf{y})\hat{\psi}_b(\mathbf{z}) \end{bmatrix} + \left\{ \begin{array}{l} x \leftrightarrow y \\ b \leftrightarrow c \end{array} \right\} \end{aligned} \quad (4.11)$$

La dernière ligne de l'équation (4.11) traduit des phénomènes à trois corps tels que la collision d'un atome dans l'état $|b\rangle$ avec un autre atome $|b\rangle$ d'une molécule excitée. Comme nous l'avons souligné, les potentiels d'interaction diatomiques ne sont pas suffisants pour traiter ces phénomènes. Nous sommes donc conduits à ignorer la dernière ligne de l'équation (4.11). La conserver dans l'équation ne serait pas cohérent avec le fait que nous avons négligé les autres phénomènes à trois corps rapprochés.

4.1.2.4 Changement d'origine des énergies

Dans le cas d'une résonance de Feshbach

Par commodité, on peut changer l'origine des énergies de telle manière que l'état fondamental $|a\rangle$ d'un atome corresponde à l'énergie zéro. Il suffit pour cela d'effectuer le remplacement suivant pour tous les opérateurs champs :

$$\hat{\psi} \rightarrow \hat{\psi} e^{-\frac{i}{\hbar} E_a t}$$

Ce remplacement est permis car les opérateurs-champs sont définis à un facteur de phase global près. L'hamiltonien (4.8) reste inchangé par ces transformations, de par ses symétries $U(1)$. En revanche, les équations dépendant du temps sont modifiées de la manière suivante :

$$i\hbar \frac{\partial \hat{\psi}}{\partial t} = \dots \rightarrow i\hbar \frac{\partial \hat{\psi}}{\partial t} = \dots - E_a \hat{\psi}$$

Cela a bien pour effet de prendre l'origine des énergie sur E_a . En particulier, on fait apparaître dans l'équation d'évolution de $\hat{\psi}_b\hat{\psi}_c$ la différence d'énergie asymptotiques $\Delta = E_b + E_c - 2E_a$ entre les deux voies (voir Figure).

Dans le cas d'une réaction de photoassociation

Dans le cas de la photoassociation, le terme de couplage H_{12} entre voies dépend du temps de manière oscillante :

$$H_{12}(r, t) = \bar{H}_{12}(r) \cos \omega t$$

où ω est la pulsation du laser. On peut éliminer cette dépendance en temps de manière approchée, en utilisant l'approximation de l'onde tournante, de manière similaire à ce que nous avons fait dans le chapitre 2 (paragraphe 2.2.2.2, p. 33). On se place dans la représentation des champs tournants en effectuant le remplacement suivant :

$$\begin{aligned} \hat{\psi}_a &\rightarrow \hat{\psi}_a e^{-\frac{i}{\hbar} E_a t} \\ \hat{\psi}_b &\rightarrow \hat{\psi}_b e^{-i(\frac{1}{\hbar} E_b - \Delta/2)t} \\ \hat{\psi}_c &\rightarrow \hat{\psi}_c e^{-i(\frac{1}{\hbar} E_c - \Delta/2)t} \end{aligned} \quad (4.12)$$

Avec le désaccord :

$$\Delta = E_b + E_c - 2E_a - \hbar\omega$$

Dans l'hamiltonien, ce remplacement n'affecte que le terme de couplage entre voies de la manière suivante :

$$H_{12}(r, t) \rightarrow \bar{H}_{12}(r) \frac{1 + e^{i2\omega t}}{2}$$

L'approximation de l'onde tournante consiste à négliger l'oscillation rapide à la pulsation 2ω , qui n'est pas en résonance avec la transition souhaitée. Par ailleurs, le remplacement (4.12) induit les transformations suivantes dans les équations d'évolution :

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial \hat{\psi}_a}{\partial t} = \dots &\rightarrow i\hbar \frac{\partial \hat{\psi}_a}{\partial t} = \dots - E_a \hat{\psi}_a \\ i\hbar \frac{\partial \hat{\psi}_b \hat{\psi}_c}{\partial t} = \dots &\rightarrow i\hbar \frac{\partial \hat{\psi}_b \hat{\psi}_c}{\partial t} = \dots - (E_b + E_c - \Delta) \hat{\psi}_a \end{aligned}$$

Equations résultantes

Avec ces transformations, les équations exactes (4.9-4.11) s'écrivent dans tous les cas (résonance de Feshbach ou photoassociation) :

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial \hat{\psi}_a(\mathbf{x})}{\partial t} &= \left(-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla_{\mathbf{x}}^2 + V_a(\mathbf{x}) \right) \hat{\psi}_a(\mathbf{x}) \\ &+ \int d^3 \mathbf{z} \hat{\psi}_a^\dagger(\mathbf{z}) \left(U_1(\mathbf{z}-\mathbf{x}) \hat{\psi}_a(\mathbf{z}) \hat{\psi}_a(\mathbf{x}) + H_{12}(\mathbf{z}-\mathbf{x}) \sqrt{2} \hat{\psi}_b(\mathbf{z}) \hat{\psi}_c(\mathbf{x}) \right) \end{aligned} \quad (4.13)$$

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial \hat{\psi}_a(\mathbf{x}) \hat{\psi}_a(\mathbf{y})}{\partial t} &= \left(-\frac{\hbar^2}{2m} (\nabla_{\mathbf{x}}^2 + \nabla_{\mathbf{y}}^2) + V_a(\mathbf{x}) + V_a(\mathbf{y}) + U_1(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \right) \hat{\psi}_a(\mathbf{x}) \hat{\psi}_a(\mathbf{y}) \\ &+ \underline{H_{12}(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \sqrt{2} \hat{\psi}_b(\mathbf{x}) \hat{\psi}_c(\mathbf{y})} \\ &\int d^3 \mathbf{r} \hat{\psi}_a^\dagger(\mathbf{r}) \hat{\psi}_a(\mathbf{x}) \left(\underline{U(\mathbf{r}-\mathbf{y}) \hat{\psi}_a(\mathbf{r}) \hat{\psi}_a(\mathbf{y})} + \underline{H_{12}(\mathbf{r}-\mathbf{y}) \sqrt{2} \hat{\psi}_c(\mathbf{r}) \hat{\psi}_b(\mathbf{y})} \right) + \{x \leftrightarrow y\} \end{aligned} \quad (4.14)$$

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial \sqrt{2} \hat{\psi}_b(\mathbf{x}) \hat{\psi}_c(\mathbf{y})}{\partial t} &= \left(-\frac{\hbar^2}{2m} (\nabla_{\mathbf{x}}^2 + \nabla_{\mathbf{y}}^2) + V_b(\mathbf{x}) + V_c(\mathbf{y}) + U_2(\mathbf{x}-\mathbf{y}) + \Delta \right) \sqrt{2} \hat{\psi}_b(\mathbf{x}) \hat{\psi}_c(\mathbf{y}) \\ &+ H_{12}^*(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \hat{\psi}_a(\mathbf{x}) \hat{\psi}_a(\mathbf{y}) \end{aligned} \quad (4.15)$$

Dans le cas de la photoassociation, on peut rajouter un terme $-i\gamma/2$ à l'équation (4.15), ce qui revient formellement à considérer un désaccord Δ complexe.

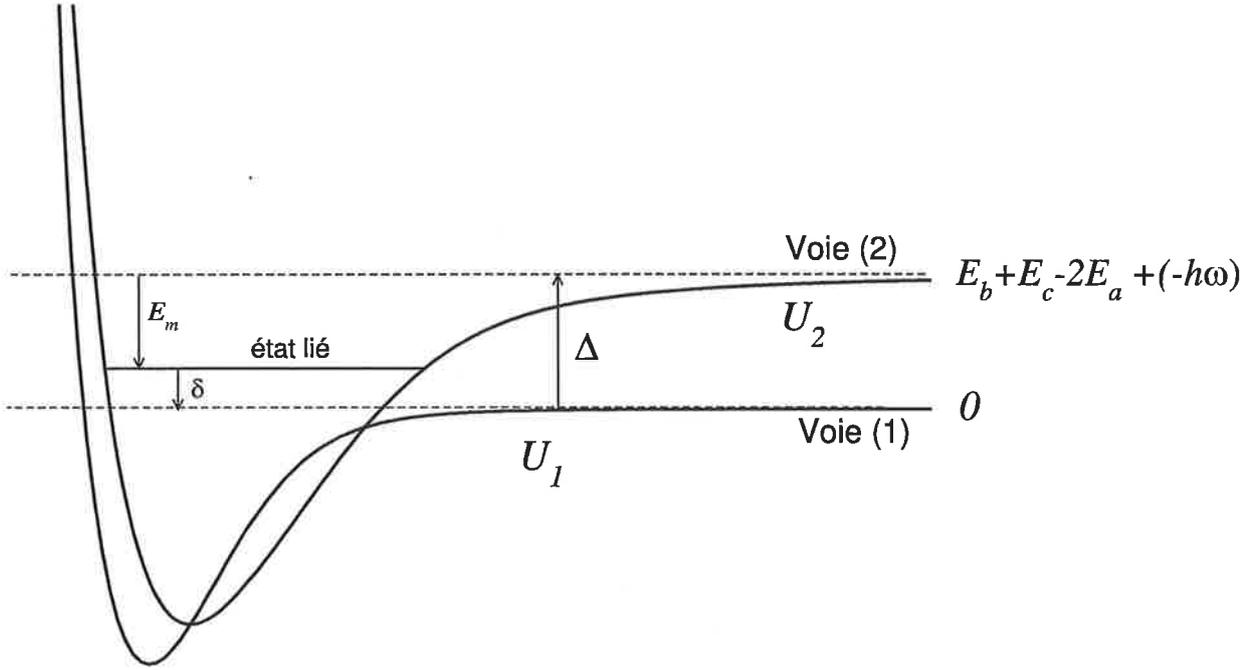


FIG. 4.1 – Courbes de potentiels après changement d’origine des énergies pour une résonance de Feshbach ou une réaction de photoassociation. Dans le cas de la photoassociation, Δ représente à l’écart entre les courbes de potentiels “habillés” par le laser dans la représentation des champs tournants. Il correspond au désaccord du laser avec la transition atomique (voir la figure 2.4).

4.1.2.5 Simplification dans le cas d’une résonance isolée

Nous avons vu au chapitre 2, que souvent les atomes de la voie (1) ne se couplent essentiellement qu’à un seul état moléculaire dans la voie (2). C’est le cas lorsqu’on a une résonance de Feshbach magnétique bien isolée des autres, ou bien lorsqu’on photoassocie les atomes avec un laser continu dont la fréquence est ajustée pour viser un état moléculaire donné. Cet état moléculaire est décrit par une fonction d’onde nucléaire $\phi_m(\mathbf{r})$, normalisée à 1 sur l’espace, et satisfaisant l’équation de Schrödinger :

$$\left(-\frac{\hbar^2}{m} \nabla_{\mathbf{r}}^2 + U_2(\mathbf{r}) \right) \phi_m(\mathbf{r}) = -E_m \phi_m(\mathbf{r}) \quad (4.16)$$

où E_m est l’énergie de liaison de l’état dans le potentiel moléculaire U_1 .

Dans une telle situation, on s’attend à ce que l’opérateur $\hat{\psi}_b(\mathbf{x}, t) \hat{\psi}_c(\mathbf{y}, t)$ puisse être approximé par sa projection sur cet état, de manière analogue à l’équation (2.35) :

$$\hat{\psi}_b(\mathbf{x}, t) \hat{\psi}_c(\mathbf{y}, t) \approx \hat{\psi}_m\left(\frac{\mathbf{x}+\mathbf{y}}{2}, t\right) \phi_m(\mathbf{x}-\mathbf{y})$$

où l’opérateur-coefficient $\hat{\psi}_m(\mathbf{x}, t) = \int d^3\mathbf{r} \phi_m^*(\mathbf{r}) \hat{\psi}_b(\mathbf{x}-\mathbf{r}/2, t) \hat{\psi}_c(\mathbf{x}+\mathbf{r}/2, t)$ définit un champ quantique décrivant le mouvement de centre de masse des paires d’atomes dans l’état lié $|\phi_m\rangle$.

Les équations se simplifient alors de la manière suivante :

$$i\hbar \frac{\partial \hat{\psi}_a(\mathbf{x})}{\partial t} = \left(-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla_{\mathbf{x}}^2 + V_a(\mathbf{x}) \right) \hat{\psi}_a(\mathbf{x}) \quad (4.17)$$

$$+ \int d^3 \mathbf{z} \hat{\psi}_a^\dagger(\mathbf{z}) \left(U_1(\mathbf{z}-\mathbf{x}) \hat{\psi}_a(\mathbf{z}) \hat{\psi}_a(\mathbf{x}) + W^*(\mathbf{z}-\mathbf{x}) \sqrt{2} \hat{\psi}_m \left(\frac{\mathbf{z}+\mathbf{x}}{2} \right) \right)$$

$$i\hbar \frac{\partial \hat{\psi}_a(\mathbf{x}) \hat{\psi}_a(\mathbf{y})}{\partial t} = \left(-\frac{\hbar^2}{2m} (\nabla_{\mathbf{x}}^2 + \nabla_{\mathbf{y}}^2) + V_a(\mathbf{x}) + V_a(\mathbf{y}) + U_1(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \right) \hat{\psi}_a(\mathbf{x}) \hat{\psi}_a(\mathbf{y}) \quad (4.18)$$

$$+ \underline{W^*(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \sqrt{2} \hat{\psi}_m \left(\frac{\mathbf{x}+\mathbf{y}}{2} \right)}$$

$$\int d^3 \mathbf{r} \hat{\psi}_a^\dagger(\mathbf{r}) \hat{\psi}_a(\mathbf{x}) \left(\underline{U(\mathbf{r}-\mathbf{y}) \hat{\psi}_a(\mathbf{r}) \hat{\psi}_a(\mathbf{y})} + \underline{W^*(\mathbf{r}-\mathbf{y}) \sqrt{2} \hat{\psi}_m \left(\frac{\mathbf{r}+\mathbf{y}}{2} \right)} \right) + \{x \leftrightarrow y\}$$

$$i\hbar \frac{\partial \hat{\psi}_m(\mathbf{x})}{\partial t} \approx \left(-\frac{\hbar^2}{4m} \nabla_{\mathbf{x}}^2 + V_b(\mathbf{x}) + V_c(\mathbf{x}) + \delta \right) \hat{\psi}_m(\mathbf{x}) \quad (4.19)$$

$$+ \frac{1}{\sqrt{2}} \int d^3 \mathbf{r} W(\mathbf{r}) \hat{\psi}_a \left(\mathbf{x} + \frac{\mathbf{r}}{2} \right) \hat{\psi}_a \left(\mathbf{x} - \frac{\mathbf{r}}{2} \right)$$

où nous avons introduit le terme d'interaction :

$$W(\mathbf{r}) = H_{21}(\mathbf{r}) \phi_m^*(\mathbf{r})$$

ainsi que la quantité :

$$\delta = \Delta - E_m$$

Cette dernière correspond au désaccord entre la limite de dissociation de la voie (1) et l'énergie du niveau moléculaire en question (voir Figure 4.1). L'équation (4.19) a été obtenue en tenant compte de (4.16), et en supposant que l'extension de l'état moléculaire $|\phi_m\rangle$ est très petite devant celle des potentiels de piègeage V_b et V_c .

4.1.2.6 Formulation générale en termes de moyennes

Nous pouvons maintenant écrire les équations générales sur les fonctions de corrélation ou moyennes d'opérateurs dans le cas d'un condensat. On suppose que les atomes collisionnant dans la voie (1) forment un condensat. Comme dans le chapitre 3, on peut définir différentes moyennes pour les atomes de la voie (1) :

$$\Psi(\mathbf{x}, t) \equiv \langle \hat{\psi}_a(\mathbf{x}, t) \rangle \quad (4.20)$$

$$\Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) \equiv \langle \hat{\psi}_a(\mathbf{x}, t) \hat{\psi}_a(\mathbf{y}, t) \rangle \quad (4.21)$$

$$\Omega(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{z}, t) \equiv \langle \hat{\psi}_a(\mathbf{x}, t) \hat{\psi}_a(\mathbf{y}, t) \hat{\psi}_a(\mathbf{z}, t) \rangle \quad (4.22)$$

⋮

$$R(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) \equiv \langle \hat{\psi}_a^\dagger(\mathbf{x}, t) \hat{\psi}_a(\mathbf{y}, t) \rangle \quad (4.23)$$

$$K(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{z}, t) \equiv \langle \hat{\psi}_a^\dagger(\mathbf{x}, t) \hat{\psi}_a(\mathbf{y}, t) \hat{\psi}_a(\mathbf{z}, t) \rangle \quad (4.24)$$

$$F(\mathbf{w}, \mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{z}, t) \equiv \langle \hat{\psi}_a^\dagger(\mathbf{w}, t) \hat{\psi}_a(\mathbf{x}, t) \hat{\psi}_a(\mathbf{y}, t) \hat{\psi}_a(\mathbf{z}, t) \rangle \quad (4.25)$$

⋮

$$G(\mathbf{w}, \mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{z}, t) \equiv \langle \hat{\psi}_a^\dagger(\mathbf{w}, t) \hat{\psi}_a^\dagger(\mathbf{x}, t) \hat{\psi}_a(\mathbf{y}, t) \hat{\psi}_a(\mathbf{z}, t) \rangle \quad (4.26)$$

⋮

Nous avons vu au chapitre 3 que les paires d'atomes du condensat forment elles-mêmes un condensat de paire : elles sont toutes dans l'état décrit par la fonction Φ . On s'attend donc à ce

que la plupart des paires d'atomes transférées dans la voie (2) soient elles aussi toutes dans le même état, et forment un condensat de paires liées, c'est-à-dire un condensat moléculaire. Les opérateurs $\hat{\psi}_b\hat{\psi}_c$ et $\hat{\psi}_m$ prennent donc des valeurs moyenne non-nulles :

$$\begin{aligned}\Phi_m(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) &\equiv \langle \hat{\psi}_b(\mathbf{x}, t)\hat{\psi}_c(\mathbf{y}, t) \rangle \\ \Psi_m(\mathbf{x}, t) &\equiv \langle \hat{\psi}_m(\mathbf{x}, t) \rangle\end{aligned}$$

Interprétation des moyennes : condensat atomique et condensat moléculaire

Φ_m correspond à la fonction d'onde macroscopique occupée par les paires liées, et Ψ_m correspond à la fonction d'onde macroscopique de leur centre de masse, c'est-à-dire la fonction d'onde du *condensat moléculaire* associé à la voie (2). Il faut néanmoins faire très attention à cette dénomination de condensat moléculaire : s'il est vrai que les paires d'atomes dans la voie (2) sont liées et forment un condensat moléculaire, cela peut être aussi le cas pour les paires d'atomes dans la voie (1) si leur fonction d'onde macroscopique Φ a une composante liée. Physiquement, le condensat moléculaire peut être formé de paires d'atomes dans un état lié du système à deux voies, ayant une composante sur chaque voie. Cette caractéristique importante n'a pas été notée dans les premiers travaux sur les problèmes de résonances dans les condensats [Kokkelmans2002a, Mackie2002], où le condensat moléculaire était uniquement associé à la fonction Φ_m . Ce point a été souligné dans le commentaire [Braaten2003], et corroboré par les travaux du groupe d'Oxford [Köhler2003b].

Nous avons vu en effet que près d'une résonance, la fonction d'onde multivoie pour le mouvement relatif d'une paire d'atomes possède deux composantes : la composante de la voie (1) devient prépondérante très près de la résonance avec un fort caractère lié (voir la figure 2.5). On peut donc s'attendre à ce que le même comportement se produise dans un condensat pour les fonctions d'onde de paire macroscopique Φ et Φ_m . En réalité, il convient de voir ces deux fonctions d'onde comme les composantes d'une fonction d'onde de paire macroscopique multivoie :

$$\begin{bmatrix} \frac{1}{\sqrt{2}}\langle \hat{\psi}_a\hat{\psi}_a \rangle \\ \langle \hat{\psi}_b\hat{\psi}_c \rangle \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \Phi_{00} \\ \Phi_m \end{bmatrix} \quad (4.27)$$

où $\Phi_{00} = \frac{1}{\sqrt{2}}\Phi$ est la fonction de paire macroscopique telle que nous l'avons définie dans la diagonalisation de la matrice-densité à deux corps (3.131). La norme de Φ_{00} correspond aux nombres de paires condensées dans la voie (1). La norme de Φ_m correspond au nombre de paires condensées dans la voie (2). Ces deux fonctions vérifient les conditions asymptotiques :

$$\begin{aligned}\Phi_{00}(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) &\xrightarrow{|\mathbf{x}-\mathbf{y}| \gg a} \frac{1}{\sqrt{2}}\Psi(\mathbf{x}, t)\Psi(\mathbf{y}, t) \\ \Phi_m(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) &\xrightarrow{|\mathbf{x}-\mathbf{y}| \gg r_0} 0\end{aligned}$$

Autrement dit, la fonction Φ_m est supposée être liée, alors que la fonction Φ_{00} correspond à un état libre (au potentiel de confinement près). Néanmoins, cet état peut contenir des molécules, au sens habituel où on l'entend. Étant donné l'hamiltonien $\hat{H}_{(2 \text{ corps})} = -\frac{\hbar^2 \nabla_{\mathbf{r}}^2}{m} + U_1(r)$ décrivant le mouvement relatif de deux corps dans la voie (1), il est toujours possible de projeter la fonction Φ_{00} à tout instant sur le sous-espace des états liés et sur le sous-espace des états libres de $\hat{H}_{(2 \text{ corps})}$:

$$\begin{aligned}\Phi_{00}^{(\text{lié})}(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) &= \sum_{\nu} \left(\int d^3\mathbf{r} \phi_{\nu}^*(\mathbf{r}) \Phi_{00}\left(\frac{\mathbf{x}+\mathbf{y}+\mathbf{r}}{2}, \frac{\mathbf{x}+\mathbf{y}-\mathbf{r}}{2}, t\right) \right) \phi_{\nu}(\mathbf{r}) \xrightarrow{|\mathbf{x}-\mathbf{y}| \gg a} 0 \\ \Phi_{00}^{(\text{libre})}(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) &= \int d^3\mathbf{p} \left(\int d^3\mathbf{r} \phi_{\mathbf{p}}^*(\mathbf{r}) \Phi_{00}\left(\frac{\mathbf{x}+\mathbf{y}+\mathbf{r}}{2}, \frac{\mathbf{x}+\mathbf{y}-\mathbf{r}}{2}, t\right) \right) \phi_{\mathbf{p}}(\mathbf{r}) \xrightarrow{|\mathbf{x}-\mathbf{y}| \gg a} \frac{1}{\sqrt{2}}\Psi(\mathbf{x}, t)\Psi(\mathbf{y}, t)\end{aligned}$$

où les ϕ_ν et ϕ_p sont les états propres respectivement liés et libres de l'hamiltonien $\hat{H}_{(2 \text{ corps})}$. Avec cette définition, le nombre de molécules condensées dans le système est :

$$M^{(\text{lié})} = \underbrace{\iint |\Phi_{00}^{(\text{lié})}|^2}_{M_1^{(\text{lié})}} + \underbrace{\iint |\Phi_m|^2}_{M_2^{(\text{lié})}}$$

où $M_1^{(\text{lié})}$ est le nombre de molécules condensées dans la voie (1) et $M_2^{(\text{lié})}$ est le nombre de molécules condensées dans la voie (2). Le nombre total de paires condensées correspond à :

$$M = \underbrace{\iint |\Phi_{00}^{(\text{lié})}|^2 + \iint |\Phi_{00}^{(\text{lib})}|^2}_{\approx \frac{N_0^2}{2}} + \iint |\Phi_m|^2$$

où N_0 est le nombre d'atomes condensés dans l'état $|a\rangle$, et Φ' est la corrélation de paire. Il n'y a pas de raison que le nombre total de paires condensées soit conservé. On s'attend à ce qu'il varie entre $N(N-1)/2$ (lorsque toutes les paires sont libres) et $N/2$ (lorsque toutes les paires sont liées). La première situation correspond à un condensat atomique pur ($N_0 \approx N$), et la seconde situation correspond à un condensat moléculaire pur. Dans le dernier cas, on a $N_0 = 0$, le condensat a disparu, et $\iint |\Phi_{00}'|^2 + \iint |\Phi_m|^2 = N/2$. Ces idées sont illustrées sur la figure (4.2) dans le cas d'une seule voie.

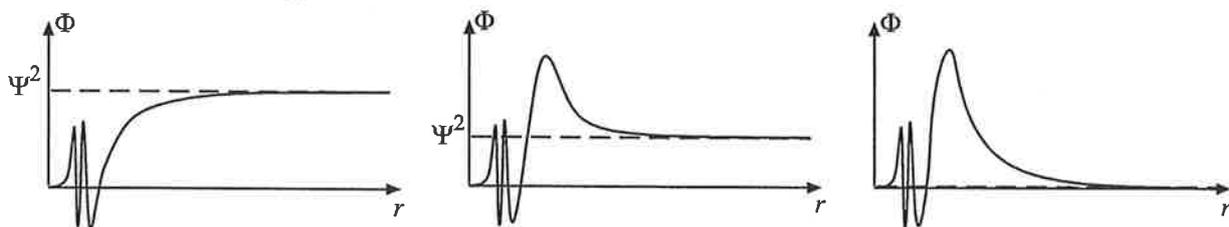


FIG. 4.2 – Représentation schématique de la fonction d'onde de paire Φ_{00} lorsqu'on passe d'un condensat atomique (schéma de gauche) à un condensat moléculaire (schéma de droite). On fait ici abstraction de la voie (2). Dans le premier cas, la fonction d'onde de paire $\Phi_{00}(\mathbf{x}, \mathbf{y})$ tend asymptotiquement vers $\frac{1}{\sqrt{2}}\Psi_0(\mathbf{x})\Psi_0(\mathbf{y})$ pour des distances $r = |\mathbf{x}-\mathbf{y}|$ suffisamment grandes. Φ_{00} décrit un condensat de paires et $\int |\Phi_{00}|^2 \approx N^2/2$ correspond au nombre de paires dans cet état. Dans le cas d'un condensat moléculaire, la fonction d'onde de paire Φ_{00} tend asymptotiquement vers zéro : le condensat atomique ($N_0 \approx 0$) a disparu et Φ_{00} correspond à un état lié. Le nombre de paire dans ce condensat est donné par $\int |\Phi_{00}|^2 \approx N/2$, soit la moitié du nombre d'atomes initial. Le schéma du milieu correspond à une situation intermédiaire.

Équations d'évolution des moyennes

On déduit les équations couplées sur les moyennes à partir des équations (4.13-4.15) :

$$i\hbar \frac{\partial \Psi(\mathbf{x})}{\partial t} = \left(-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla_{\mathbf{x}}^2 + V_a(\mathbf{x}) \right) \Psi(\mathbf{x}) + \int d^3z \left(U_1(\mathbf{z}-\mathbf{x})K(\mathbf{z}, \mathbf{z}, \mathbf{x}) + H_{12}(\mathbf{z}-\mathbf{x})\sqrt{2}K_m(\mathbf{z}, \mathbf{z}, \mathbf{x}) \right) \quad (4.28)$$

$$\begin{aligned}
i\hbar \frac{\partial \Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y})}{\partial t} &= \left(-\frac{\hbar^2}{2m} (\nabla_{\mathbf{x}}^2 + \nabla_{\mathbf{y}}^2) + V_a(\mathbf{x}) + V_a(\mathbf{y}) + U_1(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \right) \Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \\
&+ \underline{H_{12}(\mathbf{x}-\mathbf{y})} \sqrt{2} \Phi_m(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \\
&\int d^3 \mathbf{r} \left(\underline{U(\mathbf{r}-\mathbf{y})} F(\mathbf{r}, \mathbf{r}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) + \underline{H_{12}(\mathbf{r}-\mathbf{y})} F_m(\mathbf{r}, \mathbf{r}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) \right) + \{x \leftrightarrow y\}
\end{aligned} \quad (4.29)$$

$$\begin{aligned}
i\hbar \frac{\partial \sqrt{2} \Phi_m(\mathbf{x}, \mathbf{y})}{\partial t} &= \left(-\frac{\hbar^2}{2m} (\nabla_{\mathbf{x}}^2 + \nabla_{\mathbf{y}}^2) + V_b(\mathbf{x}) + V_c(\mathbf{y}) + U_2(\mathbf{x}-\mathbf{y}) + \Delta \right) \sqrt{2} \Phi_m(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \\
&+ H_{12}^*(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y})
\end{aligned} \quad (4.30)$$

où l'on a introduit les quantités :

$$\begin{aligned}
K_m(\mathbf{w}, \mathbf{z}, \mathbf{x}) &\equiv \langle \hat{\psi}_a^\dagger(\mathbf{w}) \hat{\psi}_b(\mathbf{z}) \hat{\psi}_c(\mathbf{x}) \rangle \\
F_m(\mathbf{w}, \mathbf{z}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) &\equiv \langle \hat{\psi}_a^\dagger(\mathbf{w}) \hat{\psi}_c(\mathbf{z}) \hat{\psi}_a(\mathbf{x}) \hat{\psi}_b(\mathbf{y}) \rangle
\end{aligned}$$

Dans le cas d'une résonance isolée, on obtient à partir des équations (4.17-4.19) :

$$\begin{aligned}
i\hbar \frac{\partial \Psi(\mathbf{x})}{\partial t} &= \left(-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla_{\mathbf{x}}^2 + V_a(\mathbf{x}) \right) \Psi(\mathbf{x}) \\
&+ \int d^3 \mathbf{z} \left(U_1(\mathbf{z}-\mathbf{x}) K(\mathbf{z}, \mathbf{z}, \mathbf{x}) + W^*(\mathbf{z}-\mathbf{x}) \sqrt{2} \tilde{K}_m(\mathbf{z}, \mathbf{x}) \right)
\end{aligned} \quad (4.31)$$

$$\begin{aligned}
i\hbar \frac{\partial \Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y})}{\partial t} &= \left(-\frac{\hbar^2}{2m} (\nabla_{\mathbf{x}}^2 + \nabla_{\mathbf{y}}^2) + V_a(\mathbf{x}) + V_a(\mathbf{y}) + U_1(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \right) \Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \\
&+ \underline{W^*(\mathbf{x}-\mathbf{y})} \sqrt{2} \Psi_m\left(\frac{\mathbf{x}+\mathbf{y}}{2}\right) \\
&\int d^3 \mathbf{r} \left(\underline{U(\mathbf{r}-\mathbf{y})} F(\mathbf{r}, \mathbf{r}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) + \underline{W^*(\mathbf{r}-\mathbf{y})} \sqrt{2} \tilde{F}_m(\mathbf{r}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) \right) + \{x \leftrightarrow y\}
\end{aligned} \quad (4.32)$$

$$\begin{aligned}
i\hbar \frac{\partial \Psi_m(\mathbf{x})}{\partial t} &\approx \left(-\frac{\hbar^2}{4m} \nabla_{\mathbf{x}}^2 + V_b(\mathbf{x}) + V_c(\mathbf{x}) + \delta \right) \Psi_m(\mathbf{x}) \\
&+ \frac{1}{\sqrt{2}} \int d^3 \mathbf{r} W(\mathbf{r}) \Phi\left(\mathbf{x} + \frac{\mathbf{r}}{2}, \mathbf{x} - \frac{\mathbf{r}}{2}\right)
\end{aligned} \quad (4.33)$$

avec :

$$\begin{aligned}
\tilde{K}_m(\mathbf{r}, \mathbf{y}) &\equiv \langle \hat{\psi}_a^\dagger(\mathbf{r}) \hat{\psi}_m\left(\frac{\mathbf{r}+\mathbf{y}}{2}\right) \rangle \\
\tilde{F}_m(\mathbf{r}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) &\equiv \langle \hat{\psi}_a^\dagger(\mathbf{r}) \hat{\psi}_a(\mathbf{x}) \hat{\psi}_m\left(\frac{\mathbf{r}+\mathbf{y}}{2}\right) \rangle
\end{aligned}$$

4.1.2.7 Longueur de diffusion de champ-moyen

On peut écrire l'équation d'évolution de la fonction d'onde de la manière suivante :

$$i\hbar \frac{\partial \Psi(\mathbf{x}, t)}{\partial t} = \left(-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla_{\mathbf{x}}^2 + V_a(\mathbf{x}, t) + M(\mathbf{x}, t) \right) \Psi(\mathbf{x}, t)$$

où le potentiel de champ moyen M est défini par :

$$M(\mathbf{x}, t) = \frac{1}{\Psi(\mathbf{x}, t)} \int d^3 \mathbf{z} \left(U_1(\mathbf{z}-\mathbf{x}) K(\mathbf{z}, \mathbf{z}, \mathbf{x}, t) + H_{12}(\mathbf{z}-\mathbf{x}) \sqrt{2} K_m(\mathbf{z}, \mathbf{z}, \mathbf{x}, t) \right)$$

Afin de représenter l'équation de la fonction d'onde du condensat sous la forme familière d'une équation de Gross-Pitaevskiï, on peut mettre sous la forme :

$$M(\mathbf{x}, t) = \frac{4\pi\hbar^2 a_M(\mathbf{x}, t)}{m} |\Psi(\mathbf{x}, t)|^2 \quad (4.34)$$

ce qui définit la longueur de diffusion de champ moyen a_M . Cette longueur de diffusion rend compte de l'interaction effective entre les atomes du condensat, à chaque instant et en chaque point de l'espace. Sa valeur dépend des quantités K et K_m , c'est-à-dire de la manière dont les atomes se comportent à courtes distances interatomiques.

La partie réelle de la longueur de diffusion de champ moyen n'a pas d'effet sur la norme de Ψ , mais sur sa phase. Elle traduit l'intensité des interactions par collision élastique dans le condensat. La partie imaginaire de la longueur de diffusion de champ moyen n'a en revanche pas d'effet sur la phase de Ψ , mais sur sa norme. Elle traduit l'effet des collisions inélastiques qui viennent dépeupler et (le cas échéant) repeupler le condensat atomique. Dans le cas de la photoassociation, par exemple, on peut relier la partie imaginaire à un taux de photoassociation local et dynamique :

$$K(\mathbf{x}, t) \equiv -\frac{8\pi\hbar}{m} \text{Im}(a_M(\mathbf{x}, t))$$

par analogie avec la formule (2.45) établie dans la théorie à deux corps.

4.2 Théories avec des interactions effectives

Nous allons maintenant expliciter quelques uns des modèles théoriques à N corps élaborés pour décrire le couplage entre un condensat atomique et un condensat moléculaire, ou plus généralement un système de voies couplées dans un condensat. Nous montrons comment ces modèles se rattachent au schéma général que nous avons donné précédemment. Tous ces modèles ont jusqu'à présent été utilisés avec des potentiels d'interaction effectifs.

4.2.1 Approche de Hartree-Fock à $T = 0$: équations de Gross-Pitaevskiï couplées

Le premier travail portant sur la description d'un condensat soumis à une résonance de Feshbach est celui d' E. Timmermans *et al.* [Timmermans1999]. L'idée principale de ce travail est de tenir compte explicitement de l'état lié auquel une paire d'atomes condensés se couple lors d'une collision. Les auteurs font l'hypothèse que l'ensemble des paires liées peuplées lors de collisions forment un condensat de molécule. La résonance de Feshbach dans un condensat est donc décrite comme le couplage d'un condensat atomique avec un condensat moléculaire.

Pour décrire quantitativement cette situation, les auteurs ont appliqué la méthode de Hartree-Fock que nous avons introduite dans la partie 3.2.3. Cela signifie que les atomes et les molécules sont traités comme s'ils étaient tous indépendants les uns des autres. Si l'on brise la symétrie $U(1)$ de l'hamiltonien, cela revient à remplacer tous les opérateurs-champs par leur moyennes quantiques. On fait ainsi apparaître deux fonctions d'ondes : la fonction d'onde du condensat atomique $\Psi_a = \langle \hat{\psi}_a \rangle$ et la fonction d'onde du condensat moléculaire $\Psi_m = \langle \hat{\psi}_m \rangle$. En remplaçant les opérateurs $\hat{\psi}_a$ et $\hat{\psi}_m$ par leurs moyennes quantiques dans les équations (4.17) et (4.19), on obtient les équations suivantes :

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi_a(\mathbf{x}, t) &= \left(-\frac{\hbar^2 \nabla^2}{2m} + V_a(\mathbf{x}) + g_0 |\Psi_a(\mathbf{x}, t)|^2 \right) \Psi_a(\mathbf{x}, t) + \sqrt{2} w_0^* \Psi_a^*(\mathbf{x}, t) \Psi_m(\mathbf{x}, t) \\ i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi_m(\mathbf{x}, t) &= \left(-\frac{\hbar^2 \nabla^2}{4m} + V_b(\mathbf{x}) + V_c(\mathbf{x}) + \delta \right) \Psi_m(\mathbf{x}, t) + \frac{1}{\sqrt{2}} w_0 \Psi_a^2(\mathbf{x}, t) \end{aligned}$$

(4.35)

où les constantes de couplage g_0 et w_0 sont définies par :

$$g_0 = \int d^3\mathbf{r} U_1(\mathbf{r}) = \frac{4\pi\hbar^2 a_0}{m}$$

$$w_0 = \int d^3\mathbf{r} W(\mathbf{r}) = \int d^3\mathbf{r} H_{21}(\mathbf{r}) \phi_m^*(\mathbf{r})$$

Comme dans la partie 3.2.3, les constantes de couplage obtenues correspondent à l'ordre zéro de la perturbation vis-à-vis des potentiels d'interaction U_1 et W , puisqu'on a négligé les corrélations entre particules. Comme on le sait, cet ordre zéro est très mauvais pour les interactions que nous considérons, aussi est-on amené à remplacer les constantes g_0 et w_0 par :

$$g = \int d^3\mathbf{r} U_1(\mathbf{r}) \varphi^{(0)}(\mathbf{r}) = \langle 0 | U_1 | \varphi^{(0)} \rangle = \frac{4\pi\hbar^2 a}{m} \quad (4.36)$$

$$w = \int d^3\mathbf{r} W(\mathbf{r}) \varphi^{(0)}(\mathbf{r}) = \langle \phi_m | H_{21} | \varphi^{(0)} \rangle \quad (4.37)$$

où $|\varphi^{(0)}\rangle$ est la solution du problème de diffusion dans la voie (1) à énergie nulle normalisée asymptotiquement à l'unité, et $|0\rangle$ est l'onde plane d'énergie nulle normalisée de la même façon. Cela revient à remplacer dans les équations (4.35) les potentiels réels par les potentiels de contact effectifs suivants :

$$U_1(\mathbf{r}) \rightarrow g\delta^3(\mathbf{r}) \quad (4.38)$$

$$W(\mathbf{r}) \rightarrow w\delta^3(\mathbf{r}) \quad (4.39)$$

4.2.1.1 Propriétés des équations de Gross-Pitaevskiï couplées

L'équation de Gross-Pitaevskiï (3.47) s'étant avérée très pertinente pour rendre compte de nombreuses quantités expérimentales, la généralisation élégante donnée par les équations de Timmermans *et al.* (4.35) a tout d'abord été accueillie comme un outil naturel pour étudier le couplage résonant dans un condensat. Les propriétés mathématiques des solutions stationnaires et dynamiques ont donc été étudiées de manière approfondie [Cusack2001, Drummond1998]. Le groupe de Javanainen a publié une série d'articles [Javanainen1999, Kostrun2000, Mackie2000a, Mackie2000c, Mackie2000b] transposant la dérivation de Timmermans *et al.* au cas de la photoassociation dans un condensat. Le groupe de Heinzen, en collaboration avec P. Drummond [Drummond2002] ont également utilisé le formalisme des équations de Gross-Pitaevskiï couplées pour décrire la photoassociation à plusieurs couleurs dans un condensat. Enfin, ces équations ont été utilisées par van Abeelen et Verhaar [vA1999] dans le cas de condensat soumis à une résonance de Feshbach magnétique.

Longueur de diffusion de champ-moyen

Comme il a été remarqué par E. Timmermans *et al.* [Timmermans1999] puis M. Mackie [Mackie2002], dans le cas où la dynamique du condensat moléculaire est subordonnée à celle du condensat atomique (c'est-à-dire que le condensat moléculaire formé par collisions d'atomes condensés s'adapte en permanence à l'évolution du condensat atomique), on atteint un régime quasi-stationnaire où l'on peut négliger les variations temporelles du condensat moléculaire dans l'équation (4.35). En négligeant de plus ses variations spatiales (ce qui est vrai au centre du piège, ou pour un système uniforme), on a alors :

$$\Psi_m(\mathbf{x}, t) \approx -\frac{w}{\sqrt{2}\delta} \Psi_a^2(\mathbf{x}, t)$$

En substituant cette expression dans l'équation d'évolution du condensat atomique, on obtient :

$$i\hbar\frac{\partial}{\partial t}\Psi_a(\mathbf{x},t) = \left(-\frac{\hbar^2\nabla^2}{2m} + V_a(\mathbf{x}) + \left(g - \frac{|w|^2}{\delta}\right)|\Psi_a(\mathbf{x},t)|^2 \right)\Psi_a(\mathbf{x},t)$$

en d'autres termes, on obtient une équation de Gross-Pitaevskiï avec la longueur de diffusion de champ moyen :

$$a_M = a - \frac{m|w|^2}{4\pi\hbar^2\delta} \quad (4.40)$$

Il s'agit de l'expression de la variation de longueur de diffusion (2.39) obtenue dans le problème à deux atomes pour une résonance isolée. Cela signifie que le système est dans ce cas bien décrit par une seule équation de Gross-Pitaevskiï où la longueur de diffusion du champ-moyen est remplacée par une expression du type (4.1) ou (4.2). Cette description n'est donc valable que lorsque le condensat moléculaire suit adiabatiquement la dynamique du condensat atomique. Son seul effet notable est alors de modifier la phase accumulée par les atomes condensés au cours de leur collision.

Il faut cependant noter que δ représente l'écart par rapport au niveau résonant non-pertubé dans l'expression (4.40), alors que δ' dans l'expression (2.39) représente l'écart par rapport au niveau résonant *déplacé* par le couplage. Les équations de Gross-Pitaevskiï couplées font donc abstraction du déplacement dû au couplage (déplacement lumineux dans le cas de la photoassociation). Celui-ci peut-être important pour certaines résonances magnétiques (ex : la résonance à 155 G dans le ^{85}Rb [Köhler2004]) ou pour la photoassociation dans un condensat à suffisamment forte intensité. En pratique, on peut évidemment redéfinir le paramètre δ dans le modèle pour qu'il tienne compte de la position précise de la résonance. Néanmoins, le problème subsiste en principe si l'intensité du couplage est variée dans le temps, comme il est possible de le faire dans le cas de la photoassociation.

Cette absence de déplacement est une indication des limitations de la théorie de champ moyen dérivée avec des interactions de contact effectives. La dérivation des équations de champ moyen que nous avons obtenue à partir des fonctions d'onde effectives [Naidon2003] fait en effet apparaître naturellement le déplacement lumineux dans les équations de Gross-Pitaevskiï couplées (voir le paragraphe 4.3.2.1).

Oscillations entre un condensat atomique et moléculaire

Lorsqu'aucun terme de dissipation (lié à l'émission spontanée ou tout autre mécanisme de perte) n'est inclut dans les équations, le condensat atomique se couple intégralement au condensat moléculaire et réciproquement. Les équations conduisent ainsi à des oscillations entre le condensat atomique et le condensat moléculaire. Ces oscillations ont été interprétées comme l'analogue "cohérent" d'oscillations de Rabi et ont notamment été étudiées par le groupe de J. Javanainen [Kostrun2000].

4.2.1.2 Au-delà du champ moyen

A la suite des travaux de Timmermans *et. al.*, plusieurs auteurs se sont attachés à mettre en évidence les limites des équations de Gross-Pitaevskiï (4.35). Leur idée directrice était de considérer que ces équations de champ moyen correspondent à la limite classique d'une théorie de champ, c'est-à-dire quand les fluctuations quantiques des opérateurs $\hat{\psi}_a$ et $\hat{\psi}_m$ sont négligeables. Les auteurs ont donc cherché à tenir compte de ces fluctuations quantiques, d'une manière ou d'une autre, en se basant sur les équations (4.17-4.19) dans l'approximation où les potentiels sont remplacés par les interactions de contact (4.38-4.38); comme on l'a vu au chapitre 3, ces fluctuations quantiques correspondent à la fois à la présence de particules non-condensées et de corrélations dans le système. Comme ces deux notions sont reliées à basse température (voir par

exemple la relation de Bogoliubov (3.72) à température nulle), le distinguo n'est pas toujours fait dans ces travaux. Toutes ces approches, bien que différentes dans la forme et parfois le fond, s'accordent sur la conclusion que la conversion entre condensat atomique et condensat moléculaire est limitée.

Influence des modes non-condensés

Parmi les travaux mettant l'accent sur le rôle des modes non-condensés, on peut citer l'approche de K. Góral et al. [Góral2001a, Góral2001b] où le champ quantique est toujours formellement décrit par un champ classique mais avec une interprétation différente : un des modes de ce champ classique correspond au condensat, alors que les autres modes (traités aussi classiquement) correspondent aux modes non-condensés. La conclusion de ces travaux est que le condensat moléculaire se couple non seulement au condensat atomique mais aussi aux modes non-condensés : on a ainsi une redistribution thermique de la population de la voie (2) vers la voie (1) analogue à un échauffement du système.

On peut également citer les travaux de J. J. Hope [Hope2001b, Hope2001a], où les équations sur les opérateurs (4.17-4.19) évaluées pour des interactions de contact (4.38-4.39) sont résolues numériquement par la méthode de la représentation P -positive.

Influence de la corrélation de paire

Les travaux de M. J. Holland ont été un des premiers à souligner l'importance des corrélations de paire [Holland2001b]. Leur méthode est basée sur l'approche de Hartree-Fock-Bogoliubov introduite au chapitre 3. La corrélation de paire est introduite par le biais de la moyenne "anormale" (3.28), sans lui donner d'interprétation en terme de fonction d'onde à deux corps. Nous détaillons leur méthode dans la section suivante. Des équations similaires (tenant compte de la corrélation de paire, mais ne tenant pas compte de l'influence directe des modes non-condensés) ont été dérivées comme "extension" des équations de Gross-Pitaevskiï couplées [Javanainen2002, Mackie2002]. La corrélation de paire y est introduite comme correspondant à la population des "paires non-condensées". Il est important de noter que cette interprétation ne correspond pas aux fonctions d'ondes de paire non-condensées Φ_{ij} que nous avons introduites au paragraphe 3.3.1.2 (p.94). Dans l'approche des fonctions d'onde effective, la moyenne anormale $\Phi'(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = \langle \hat{\theta}(\mathbf{x}) \hat{\theta}(\mathbf{y}) \rangle$ traduit la corrélation des atomes du condensat (c'est-à-dire leur continuum de diffusion en quelque sorte). Il est en revanche exact de dire que ces corrélations à deux corps entre atomes condensés se construisent à partir des modes à un corps non-condensés.

Dissociation rebelle (« rogue dissociation »)

La prise en compte de la corrélation de paire (appelée fonction des "paires non-condensées") dans les travaux de l'équipe de J. Javanainen conduit à la prédiction d'une limitation du taux de photoassociation dans un condensat . Cette taux-limite est donnée par la formule :

$$K_{\text{rebelle}} = \frac{\hbar}{m} \rho^{-1/3} \quad (4.41)$$

où ρ est la densité du condensat. Pour les densités typique des condensats, cette limite est inférieure à la limite unitaire prédit par la théorie à deux atomes. Dans l'expérience de photoassociation du NIST [McKenzie2002], on atteint des taux comparables à (4.41), cependant les auteurs de l'expérience n'ont pas réussi mettre en évidence de saturation du taux.

4.2.1.3 Comparaison avec l'expérience

Expériences de photoassociation

Les expériences de photoassociation dans les condensats [Wynar2000, Gerton2001, McKenzie2002] n'ont pas mis en défaut la théorie à deux atomes. Les taux de photoassociation ou les déplacements lumineux mesurés sont en effet conformes aux équations exposés dans la partie .

Par ailleurs, les équations de Gross-Pitaevskiï couplées conduisent au même taux de photoassociation que la théorie à deux atomes, comme nous l'avons souligné dans l'article [Naidon2003]. En effet, le condensat moléculaire peut en général être éliminé adiabatiquement (par exemple, à cause de l'émission spontanée dans la photoassociation à une couleur, ou bien par passage adiabatique dans la photoassociation à deux couleurs). On a vu que cela conduit à une équation de Gross-Pitaevskiï dont la longueur de diffusion de champ-moyen (4.40) correspond à la longueur de diffusion a (2.41) calculée dans la théorie à deux atomes pour une résonance isolée. On retrouve en particulier le taux de photoassociation à faible énergie (2.45) :

$$K = -\frac{8\pi\hbar}{m}\text{Im}(a)$$

Le taux de photoassociation ne peut donc pas servir de base pour discriminer la théorie à deux corps des équations de Gross-Pitaevskiï couplées². La différence entre les deux modèles tient principalement dans les propriétés de cohérence des atomes et des molécules. Cependant, les propriétés de cohérence des molécules formées n'ont pas pu être analysées dans les expériences. Elles n'ont donc pu ni confirmer ni infirmer la validité des équations de Gross-Pitaevskiï couplées. On notera cependant que le déplacement lumineux n'est pas prédit par les équations de Gross-Pitaevskiï couplées dérivées avec des interactions effectives.

Expériences de résonance de Feshbach

Les expériences pour des rampes linéaires de Feshbach, en particulier les expériences de Bose-nova, ont été analysées à l'aide des équations de Gross-Pitaevskiï couplées par F.A. van Abeelen et B. J. Verhaar [vA1999]. Les résultats des calculs semblent en bon accord avec l'expérience pour certaines résonances (résonance étroite à 853 G dans le sodium). Pour les résonances plus fortes, l'ordre de grandeur prédit est correct, bien que les résultats présentent une différence appréciable avec les mesures expérimentales. Les auteurs ont conclu sur l'éventuelle nécessité d'élaborer une théorie tenant compte de la dynamique des paires d'atomes.

L'analyse des prédictions des équations de Gross-Pitaevskiï couplées pour les rampes linéaires de Feshbach a été reprise plus récemment par l'équipe d'Oxford [Köhler2004]. Il est montré que ces prédictions théoriques ne sont pas spécifiques aux équations de Gross-Pitaevskiï couplées mais se retrouve dans toute une classe de modèles différents, y compris des modèles à deux atomes. Ainsi, même lorsque les équations présentent un bon accord avec l'expérience, il ne s'agit pas d'une preuve de la validité des équations.

Enfin, l'expérience d'oscillation entre atomes et molécules du JILA [Donley2002] a mis plus clairement en lumière les limitations des équations de Gross-Pitaevskiï couplées sur lesquels les théoriciens s'interrogeaient. L'observation d'atomes chauds ne peut en effet être expliquée uniquement avec les champs cohérents Ψ_a et Ψ_m . En revanche, elle a confirmé le rôle important joué par les corrélations de paire. Nous allons dans la suite détailler deux modèles tenant compte de la corrélation de paire ayant pu décrire de manière satisfaisante l'expérience d'oscillation : l'approche Hartree-Fock-Bogolioubov du groupe de M. J. Holland, et l'approche des cumulants développée à Oxford.

²En particulier, le « facteur d'amplification de Bose » mis en avant dans l'article [Mackie2000a] ne traduit qu'un effet de la densité du gaz, analogue au cas d'un gaz thermique. Il n'a pas de conséquence sur le taux de photoassociation.

4.2.2 Approche de Hartree-Fock-Bogolioubov

La méthode développée par le groupe de M. J. Holland pour traiter les résonances dans les condensats reprend l'approche Hartree-Fock-Bogolioubov introduite au paragraphe en généralisant les équations au cas de voies couplées. Il est à noter que la méthode a aussi été appliquée au cas d'un gaz de fermions. Il s'agit donc d'une description générale des couplages résonants dans les gaz dégénérés, et de ce que les auteurs appellent la *superfluidité de résonance* [Kokkelmans2002b].

Les équations peuvent s'obtenir à partir des équations générales (4.31-4.33) sur les moyennes avec les découplages suivants. On suppose d'une part que le champ moléculaire $\hat{\psi}_m$ est purement cohérent, c'est-à-dire ne comporte que des molécules condensées. On peut ainsi remplacer cet opérateur par le champ classique Ψ_m . On a alors :

$$\begin{aligned} \tilde{K}_m(\mathbf{r}, \mathbf{y}) &\equiv \Psi^*(\mathbf{r}) \Psi_m\left(\frac{\mathbf{r}+\mathbf{y}}{2}\right) \\ \tilde{F}_m(\mathbf{r}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) &\equiv R(\mathbf{r}, \mathbf{x}) \Psi_m\left(\frac{\mathbf{r}+\mathbf{y}}{2}\right) \end{aligned} \quad (4.42)$$

Ensuite, on effectue un découplage Hartree-Fock-Bogolioubov (3.95) en ce qui concerne les atomes décrits par le champ $\hat{\psi}_a$. Enfin, les potentiels sont remplacés par les interactions de contact effectives (4.38-4.38). Dans le cas d'un système uniforme, on obtient les équations suivantes [Kokkelmans2002a] :

$$i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t} = g(|\Psi|^2 + 2R'(0))\Psi + (g\Phi'(0) + w\Psi_m)\Psi^* \quad (4.43)$$

$$i\hbar \frac{\partial \Psi_m}{\partial t} = \hbar\delta\Psi_m + \frac{w}{2}(\Psi^2 + \Phi'(0))\Psi \quad (4.44)$$

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial \Phi'(\mathbf{r})}{\partial t} &= -\frac{\hbar\nabla_r^2}{m}\Phi'(\mathbf{r}) + \left(g(\Psi^2 + \Phi'(0)) + w\Psi_m\right)(2\rho'(\mathbf{r}) + \delta^3(\mathbf{r})) \\ &\quad + 4g(|\Psi|^2 + R'(0))\Phi'(\mathbf{r}) \end{aligned} \quad (4.45)$$

$$i\hbar \frac{\partial R'(\mathbf{r})}{\partial t} = 2i\text{Im} \left[\left(g(\Psi^2 + \Phi'(0)) + w\Psi_m\right)\Phi'^*(\mathbf{r}) \right] \quad (4.46)$$

Telles quelles, ces équations souffrent du problème de divergence ultraviolette dont nous avons parlé dans les parties 3.2.2 et 3.2.3. Pour résoudre ces problèmes, l'équipe de M. J. Holland a utilisé une procédure de renormalisation généralisant celle donnée dans la section 3.2.3. On choisit une certaine coupure K en impulsion, et on effectue les remplacements suivants dans les équations [Kokkelmans2002b] :

$$\begin{aligned} g &\rightarrow \bar{g} = \frac{g}{1 - \alpha g} \\ w &\rightarrow \bar{w} = \frac{w}{1 - \alpha w} \\ \hbar\delta &\rightarrow \hbar\bar{\delta} = \hbar\delta + \frac{\alpha|w|^2}{1 - \alpha} \end{aligned}$$

où $\alpha = \frac{mK}{2\pi^2\hbar^2}$. Ces prescriptions ont été obtenues en considérant les équations à deux voies pour deux atomes écrites avec des potentiels de contact arbitraires. Les valeurs des constantes de couplage ont alors été ajustées en fonction du cut-off K pour obtenir des amplitudes de diffusion correspondant aux valeurs physiques. Les interactions de contact ainsi renormalisées sont censées diffuser les fonctions d'onde à deux atomes de manière correcte à grande distance, et il est supposé qu'elles ont le même effet dans les équations à N corps (4.43-4.46). Les auteurs de la méthode ont vérifié numériquement que les résultats ne dépendent plus du cut-off K pour des valeurs de K suffisamment grandes [Holland2001b, Kokkelmans2002b, Milstein2003].

Cette méthode a été utilisée pour décrire de manière satisfaisante l'expérience d'oscillation atomes-molécules [Donley2002]. Les prédictions quantitatives du modèle sont correctes [Kokkelmans2002a], bien qu'une erreur d'interprétation a conduit les auteurs à sous-estimer le nombre de molécules formées pendant la séquence de pulses magnétiques [Braaten2003, Köhler2003b], les auteurs n'identifiant les molécules qu'au champ moléculaire Ψ_m . La méthode a par ailleurs été appliquée aux expériences de Bosenova [Milstein2003].

4.2.3 Approche des cumulants au premier ordre

La plupart des applications de la méthode des cumulants aux problèmes de résonance des les condensats ont été effectuées par l'équipe d'Oxford en utilisant les équations (3.112-3.113) à une seule voie [Köhler2003a, Köhler2003b]. Les auteurs ont en effet montré que dans les conditions de leur calcul, la nature multivoie de l'interaction n'était pas une caractéristique fondamentale : près d'une résonance, les propriétés de diffusion et le dernier état lié sont pratiquement déterminés par la composante de la fonction d'onde à deux atomes dans la voie fondamentale, comme on peut le voir sur la figure 2.5. Les auteurs ont donc considéré une interaction effective à une seule voie reproduisant les caractéristiques de la résonance : variation de la longueur de diffusion et position du dernier état lié. Cette interaction est prise sous la forme d'un potentiel séparable (3.124), de manière à simplifier la résolution des équations (3.112-3.113) qui se réduisent alors à l'équation de Schrödinger non-linéaire non-markovienne (3.123).

La méthode a été appliquée pour interpréter avec succès l'expérience de Donley *et al.* [Donley2002], comme il est rapporté dans les références [Köhler2003a, Köhler2003b]. Elle a aussi été utilisée pour l'étude des rampes de Feshbach magnétiques « vers le haut » (destruction du condensat), ainsi que des rampes de champ « vers le bas » (formation de molécules).

Par la suite, la généralisation de la méthode pour deux voies couplées a été utilisée dans les travaux de T. Gasenzer [Gasenzer2004], avec une application à la photoassociation dans les condensats. Nous donnons ici les équations correspondant à cette généralisation pour deux voies couplées, que nous utiliserons dans le chapitre suivant.

4.2.3.1 Équations dépendant du temps

En appliquant la méthode des cumulants aux équations générales (4.13-4.14), on obtient la généralisation des équations (3.112-3.113) :

$$\begin{aligned}
 i\hbar \frac{d\Psi}{dt}(\mathbf{x}, t) &= (H_{a,\mathbf{x}} + M(\mathbf{x}, t))\Psi(\mathbf{x}, t) \\
 i\hbar \frac{d}{dt} \begin{bmatrix} \Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) \\ \sqrt{2}\Phi_m(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) \end{bmatrix} &= \begin{bmatrix} H_{11} & H_{21}^* \\ H_{21} & H_{22} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) \\ \sqrt{2}\Phi_m(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) \end{bmatrix} + (M(\mathbf{x}, t) + M(\mathbf{y}, t)) \begin{bmatrix} \Psi(\mathbf{x}, t)\Psi(\mathbf{y}, t) \\ 0 \end{bmatrix}
 \end{aligned}
 \tag{4.47}$$

avec :

- l'hamiltonien à deux corps pour la voie (1) : $H_{11} = H_{a,\mathbf{y}} + H_{a,\mathbf{x}} + U_1(\mathbf{y}-\mathbf{x})$
- l'hamiltonien à deux corps pour la voie (2) : $H_{22} = H_{b,\mathbf{y}} + H_{c,\mathbf{x}} + U_2(\mathbf{y}-\mathbf{x}) + \Delta$
- le champ moyen $M(\mathbf{x}, t) = \frac{1}{\Psi(\mathbf{x}, t)} \int d^3\mathbf{z} \left(U_1(\mathbf{z}-\mathbf{x})\Psi^*(\mathbf{z}, t)\Phi(\mathbf{z}, \mathbf{x}, t) + H_{12}(\mathbf{z}-\mathbf{x}, t)\Psi^*(\mathbf{z}, t)\sqrt{2}\Phi_m(\mathbf{z}, \mathbf{x}, t) \right)$

La relation de conservation (3.119) s'écrit maintenant :

$$N = \underbrace{\int d^3\mathbf{x} |\Psi(\mathbf{x})|^2}_{\text{Atomes condensés}} + \underbrace{\int d^3\mathbf{x}d^3\mathbf{y} |\Phi'(\mathbf{x}, \mathbf{y})|^2}_{\text{Atomes non-condensés de la voie (1)}} + \underbrace{2 \int d^3\mathbf{x}d^3\mathbf{y} |\Phi_m(\mathbf{x}, \mathbf{y})|^2}_{\text{Atomes non-condensés de la voie (2)}}$$

$$\int d^3\mathbf{x}d^3\mathbf{y} |\Phi'_{\text{libre}}(\mathbf{x}, \mathbf{y})|^2 + \int d^3\mathbf{x}d^3\mathbf{y} |\Phi'_{\text{lié}}(\mathbf{x}, \mathbf{y})|^2$$

Lorsque la composante Φ' ne contient pas d'état liés, la quantité $\int d^3\mathbf{x}d^3\mathbf{y} |\Phi_m(\mathbf{x}, \mathbf{y})|^2$ s'interprète comme le nombre de molécules dans le système. Néanmoins, nous avons vu que cette interprétation n'est pas valable en général, en particulier près d'une résonance de Feshbach. De manière générale, le nombre moyen de molécules dans le système est donné par :

$$N_{\text{paires liées}} = \frac{1}{2} \int d^3\mathbf{x}d^3\mathbf{y} |\Phi'_{\text{lié}}(\mathbf{x}, \mathbf{y})|^2 + \int d^3\mathbf{x}d^3\mathbf{y} |\Phi_m(\mathbf{x}, \mathbf{y})|^2$$

4.2.3.2 États stationnaires

On reprend l'analyse donnée au paragraphe (3.2.4.5). Posons $\Psi(\mathbf{x}, t) = \bar{\Psi}(\mathbf{x})e^{-i\mu t/\hbar}$, où μ est identifié au potentiel chimique. On doit alors poser $\Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) = \bar{\Phi}(\mathbf{x}, \mathbf{y})e^{-i2\mu t/\hbar}$ pour obtenir des équations stationnaires pour $\bar{\Psi}$ et $\bar{\Phi}$:

$$\begin{aligned} \mu \bar{\Psi}(\mathbf{x}) &= (H_{\mathbf{x}} + M(\mathbf{x})) \bar{\Psi}(\mathbf{x}) \\ 0 &= \begin{bmatrix} H_{11} - 2\mu & H_{21}^* \\ H_{21} & H_{22} - 2\mu \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} \bar{\Phi}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \\ \sqrt{2} \bar{\Phi}_m(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} (M(\mathbf{x}) + M(\mathbf{y})) \bar{\Psi}(\mathbf{x}) \bar{\Psi}(\mathbf{y}) \\ 0 \end{bmatrix} \end{aligned}$$

Comme dans le cas à une seule voie, ces équations ne donnent des solutions similaires à celles du problème à deux corps que lorsque $\mu \rightarrow 0$. Pour des potentiels chimiques typiques d'une expérience, on a toujours les problèmes de divergence du champ moyen lorsque le potentiel chimique s'approche d'un niveau d'énergie du piège.

4.2.4 Conclusion

Le problème du traitement théorique des voies couplées dans les condensats a été initié par E. Timmermans *et al.* en proposant l'existence d'un couplage du condensat atomique avec un condensat moléculaire. Ce couplage a été premièrement décrit dans le cadre d'une théorie de champ moyen correspondant à des équations de Gross-Pitaevskiï couplées. L'expérience et les études théoriques ont montré les limites de cette théorie de champ moyen. En particulier, la notion de corrélation de paire, absente de la théorie de champ moyen, s'est avérée essentielle.

Plusieurs modèles (Hartree-Fock-Bogolioubov, Dynamique des Cumulants au 1er ordre) tenant compte des corrélations de paire ont pu reproduire qualitativement ou quantitativement les expériences effectuées jusqu'à présent mettant en jeu un couplage avec un condensat moléculaire. Ces modèles ne font appel qu'à des interactions effectives, ce qui montre que le détail microscopique des interactions n'est pas nécessaire et peut être reproduit avec un petit nombre de paramètres dans le cadre de ces expériences.

Néanmoins, on peut penser que d'autres situations expérimentales ne peuvent plus être décrites à l'aide d'interactions effectives : photoassociation à forte intensité ou à forte dépendance en temps. Par ailleurs, il subsiste certains problèmes théoriques de fond que nous avons rencontrés au chapitre 3 : la méthode Hartree-Fock-Bogolioubov avec des potentiels renormalisé conduit à une mauvaise énergie fondamentale, et la méthode des cumulants au premier ordre n'est pas toujours compatible avec l'équation de Gross-Pitaevskiï. Une compréhension plus générale des effets des interactions réalistes est donc nécessaire. Nous allons dans la suite présenter notre travail sur le traitement des voies couplées pour des interactions réalistes.

4.3 Théorie avec des interactions réalistes

Nous nous penchons maintenant sur le problème des voies couplées dans un condensat lorsqu'on tient compte des potentiels réalistes. Nous présentons rapidement la généralisation de l'approche des fonctions d'onde effectives dans ce contexte, et nous analysons ensuite quelques conséquences de la théorie.

4.3.1 Approche des fonctions d'onde effective

4.3.1.1 Équations générales

Comme nous l'avons détaillé dans l'article [Naidon2003], l'approche des fonctions d'onde effectives que nous avons exposée dans la partie 3.3.1.2 peut être généralisée au cas de voies couplées dans le cadre de l'hamiltonien phénoménologique (4.8). Les équations générales (4.13-4.15) peuvent être réécrites à l'aide des fonctions d'onde de paire en utilisant les relations (3.132) et (3.134), et en faisant l'hypothèse de la cohérence du champ moléculaire (4.42) :

$$\begin{aligned} K_m(\mathbf{w}, \mathbf{z}, \mathbf{y}) &\equiv \Psi^*(\mathbf{w}) \Phi_m(\mathbf{z}, \mathbf{y}) \\ F_m(\mathbf{w}, \mathbf{z}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) &\equiv R(\mathbf{w}, \mathbf{z}) \Phi_m(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \end{aligned} \quad (4.48)$$

On obtient alors :

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial \Psi_0(\mathbf{x})}{\partial t} &= \left(-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla_{\mathbf{x}}^2 + V_a(\mathbf{x}) \right) \Psi(\mathbf{x}) \\ &+ \sqrt{2} \int d^3 \mathbf{z} \left(\sum_{i=0}^{\infty} \Psi_i^*(\mathbf{z}) U_1(\mathbf{z}-\mathbf{x}) \Phi_{0i}(\mathbf{z}, \mathbf{x}) + \Psi_0^*(\mathbf{z}) H_{12}(\mathbf{z}-\mathbf{x}) \Phi_m(\mathbf{z}, \mathbf{x}) \right) \end{aligned} \quad (4.49)$$

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial \Phi_{00}(\mathbf{x}, \mathbf{y})}{\partial t} &= \left(-\frac{\hbar^2}{2m} (\nabla_{\mathbf{x}}^2 + \nabla_{\mathbf{y}}^2) + V_a(\mathbf{x}) + V_a(\mathbf{y}) + U_1(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \right) \Phi_{00}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \\ &+ H_{12}(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \Phi_m(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \\ &\int d^3 \mathbf{r} \left(U(\mathbf{r}-\mathbf{y}) \sqrt{3!} \sum_{i=0}^{\infty} \Psi_i^*(\mathbf{r}) \cdot \Omega_{00i}(\mathbf{r}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) + H_{12}(\mathbf{r}-\mathbf{y}) \sum_{i=0}^{\infty} \Psi_i^*(\mathbf{r}) \Psi_i(\mathbf{x}) \Psi_m\left(\frac{\mathbf{r}+\mathbf{y}}{2}\right) \right) + \{x \leftrightarrow y\} \end{aligned} \quad (4.5)$$

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial \Phi_m(\mathbf{x}, \mathbf{y})}{\partial t} &= \left(-\frac{\hbar^2}{2m} (\nabla_{\mathbf{x}}^2 + \nabla_{\mathbf{y}}^2) + V_b(\mathbf{x}) + V_c(\mathbf{y}) + U_2(\mathbf{x}-\mathbf{y}) + \Delta \right) \Phi_m(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \\ &+ H_{12}^*(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \Phi_{00}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \end{aligned} \quad (4.51)$$

Ces équations sont trop générales pour pouvoir être exploitées directement, aussi sommes-nous amenés simplifier le problème en nous inspirant du chapitre 3.

4.3.1.2 Approximation de la paire réduite

Si l'on reprend l'approximation de la paire réduite donnée au paragraphe 3.3.2.1, on arrive aux équations simplifiées :

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{d\Psi}{dt}(\mathbf{x}, t) &= (H_{\mathbf{x}} + M(\mathbf{x}, t)) \Psi(\mathbf{x}, t) \\ i\hbar \frac{d}{dt} \begin{bmatrix} \Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) \\ \sqrt{2} \Phi_m(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) \end{bmatrix} &= \begin{bmatrix} H_{11} + M(\mathbf{y}, t) + M(\mathbf{x}, t) & H_{21}^* \\ H_{21} & H_{22} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} \Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) \\ \sqrt{2} \Phi_m(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) \end{bmatrix} \end{aligned} \quad (4.52)$$

avec :

- l'hamiltonien à deux corps pour la voie (1) : $H_{11} = H_{a,y} + H_{a,x} + U_1(\mathbf{y}-\mathbf{x})$
- l'hamiltonien à deux corps pour la voie (2) : $H_{22} = H_{b,y} + H_{c,x} + U_2(\mathbf{y}-\mathbf{x}) + \Delta$
- le champ moyen :

$$M(\mathbf{x}, t) = \frac{1}{\Psi(\mathbf{x}, t)} \int d^3\mathbf{z} \left(U_1(\mathbf{z}-\mathbf{x}) \Psi^*(\mathbf{z}, t) \Phi(\mathbf{z}, \mathbf{x}, t) + H_{12}(\mathbf{z}-\mathbf{x}, t) \Psi^*(\mathbf{z}, t) \sqrt{2} \Phi_m(\mathbf{z}, \mathbf{x}, t) \right) \quad (4.53)$$

La relation de conservation du nombre d'atomes s'écrit :

$$N = \underbrace{\int d^3\mathbf{x} |\Psi(\mathbf{x})|^2}_{\text{Atomes condensés}} + \underbrace{\int d^3\mathbf{x} |R'(\mathbf{x}, \mathbf{x})|^2}_{\text{Atomes non-condensés de la voie (1)}} + \underbrace{2 \int d^3\mathbf{x} d^3\mathbf{y} |\Phi_m(\mathbf{x}, \mathbf{y})|^2}_{\text{Atomes non-condensés de la voie (2)}}$$

Néanmoins, contrairement aux équations du cumulants au premier ordre, on ne connaît pas de relation simple entre la matrice des modes non-condensés R' et la corrélation de paire Φ' .

4.3.1.3 États stationnaires - décalage des raies par le champ moyen

Les états stationnaires sont donnés par :

$$\begin{aligned} \mu \bar{\Psi}(\mathbf{x}) &= (H_{\mathbf{x}} + \bar{M}(\mathbf{x})) \bar{\Psi}(\mathbf{x}) \\ 0 &= \begin{bmatrix} H_{11} + \bar{M}(\mathbf{y}) + \bar{M}(\mathbf{x}) - 2\mu & H_{21}^* \\ H_{21} & H_{22} - 2\mu \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} \bar{\Phi}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \\ \sqrt{2} \bar{\Phi}_m(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \end{bmatrix} \end{aligned} \quad (4.54)$$

On peut réécrire ces équations en coordonnées de centre de masse et de mouvement relatif, et effectuer "l'approximation locale" pour découpler ces deux coordonnées. Pour chaque position \mathbf{R} dans le piège, on doit donc résoudre l'équation :

$$\begin{aligned} \mu \bar{\Psi}(\mathbf{R}) &= \left(-\frac{\hbar^2 \nabla_{\mathbf{R}}^2}{2m} + V(\mathbf{R}) + \bar{M}(\mathbf{R}) \right) \bar{\Psi}(\mathbf{R}) \\ 0 &= \begin{bmatrix} -\frac{\hbar^2 \nabla_{\mathbf{r}}^2}{m} + U_1(\mathbf{r}) + 2(V(\mathbf{R}) + \bar{M}(\mathbf{R}) - \mu) & H_{21}^* \\ H_{21} & -\frac{\hbar^2 \nabla_{\mathbf{r}}^2}{m} + U_2(\mathbf{r}) + 2(V(\mathbf{R}) - \mu) \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} \bar{\Phi}(\mathbf{R}, \mathbf{r}) \\ \sqrt{2} \bar{\Phi}_m(\mathbf{R}, \mathbf{r}) \end{bmatrix} \end{aligned}$$

Dans l'approximation de Thomas-Fermi [Dalfovo1999], on néglige le terme d'énergie cinétique dans l'équation de la fonction du condensat. On a donc :

$$\mu = V(\mathbf{R}) + \bar{M}(\mathbf{R})$$

Si bien que l'équation sur les fonctions d'onde de paire devient :

$$0 = \begin{bmatrix} -\frac{\hbar^2 \nabla_{\mathbf{r}}^2}{m} + U_1(\mathbf{r}) & H_{21}^* \\ H_{21} & -\frac{\hbar^2 \nabla_{\mathbf{r}}^2}{m} + U_2(\mathbf{r}) + 2\bar{M}(\mathbf{R}) \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} \bar{\Phi}(\mathbf{R}, \mathbf{r}) \\ \sqrt{2} \bar{\Phi}_m(\mathbf{R}, \mathbf{r}) \end{bmatrix} \quad (4.55)$$

Cette expression correspond simplement aux équations couplées à énergie nulle pour deux atomes (2.4) mais avec un décalage de $2\bar{M}(\mathbf{R}) = 2(V(\mathbf{R}) - \mu)$ de l'énergie de la voie excitée. Tout se passe comme si les atomes du condensats collisionnent dans une onde plane d'énergie nulle, mais avec une énergie de champ moyen qui décale la résonance avec l'état excité. Ce décalage est petit aux bords du piège, où la densité du condensat est faible, mais important au centre du piège où il vaut 2μ .

Dans le cas de la photoassociation, cela a pour conséquence en principe d'élargir les raies observées, puisque l'écart à la résonance varie d'un point à l'autre du système. Cet élargissement

est analogue à un élargissement dû à une distribution thermique dans un gaz non-condensé. Cependant, cet élargissement est en pratique négligeable (nous l'estimons de l'ordre de 6 kHz dans l'expérience [McKenzie2002]).

En négligeant cet effet du champ moyen, on peut assimiler formellement les équations (4.55) aux équations usuelles (2.4) à deux atomes. On obtient donc les solutions :

$$\begin{aligned}\bar{\Phi}(\mathbf{R}, \mathbf{r}) &= \bar{\Psi}^2(\mathbf{R})\varphi_1^{(0)}(\mathbf{r}) \\ \sqrt{2}\bar{\Phi}_m(\mathbf{R}, \mathbf{r}) &= \bar{\Psi}^2(\mathbf{R})\varphi_2^{(0)}(\mathbf{r})\end{aligned}$$

En reportant les solutions dans le champ moyen de l'équation pour la fonction d'onde du condensat $\bar{\Psi}$, on trouve :

$$\mu\bar{\Psi}(\mathbf{R}) = \left(-\frac{\hbar^2\nabla_{\mathbf{R}}^2}{2m} + V(\mathbf{R}) + \frac{4\pi\hbar^2}{m} \underbrace{\int d^3\mathbf{r} (U_1(\mathbf{r}) \cdot \varphi_1^{(0)}(\mathbf{r}) + H_{21}(\mathbf{r}) \cdot \varphi_2^{(0)}(\mathbf{r}))}_{a'} |\bar{\Psi}(\mathbf{R})|^2\right)\bar{\Psi}(\mathbf{R})$$

qui n'est autre que l'équation stationnaire de Gross-Pitaevskiï dont le champ moyen correspond à la longueur de diffusion *modifiée* par le couplage a' . Cette longueur correspond en effet à l'expression générale (2.11) multivoies. Il faut noter que cette expression est *non-perturbative*, et ne suppose pas que la résonance est isolée, contrairement à la longueur de diffusion de champ moyen (4.40) trouvée dans le cadre des équations de Gross-Pitaevskiï couplées.

4.3.2 Effets des corrélations à courtes distances

4.3.2.1 Effets quasi-stationnaires

Un point important de l'article [Naidon2003] est de montrer que les équations des fonctions d'onde de paire conduisent aux équations de champ moyen (4.35) lorsque la dynamique des paires ne joue pas un rôle important. Nous entendons par là que les fonctions d'onde de paire Φ_i suivent adiabatiquement l'évolution des modes à un corps Ψ_i . En d'autres termes, les fonctions d'onde de paire réduite φ_i sont quasi-stationnaires. La multiplication de ces fonctions d'onde de paire réduite par les potentiels d'interaction conduit naturellement aux paramètres de couplage de la théorie de champ moyen : cela justifie l'utilisation de potentiels de contact et leurs constantes de couplage dans la théorie de champ moyen.

Théorie de champ moyen

Faisons l'approximation d'une résonance isolée : $\Phi_m(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) \approx \Psi_m(\frac{\mathbf{x}+\mathbf{y}}{2}, t)\phi_m(\mathbf{x}-\mathbf{y})$ où $|\phi_m\rangle$ est l'état lié normalisé à 1 sur l'espace et vérifiant l'équation (4.16). Supposons en outre que la dynamique des paires à courte distance est quasi-stationnaire et s'adapte en permanence à l'évolution des condensats atomique et moléculaire, de la même manière que les électrons suivent adiabatiquement le mouvement des noyaux dans une molécule. On peut alors supprimer la dépendance explicite en t dans les équations d'évolution des fonctions d'onde de paires, de telle sorte que ces fonctions ne dépendent du temps que paramétriquement par l'intermédiaire des champs $\Psi(\mathbf{x}, t)$ et $\Psi_m(\mathbf{x}, t)$. Les équations peuvent être intégrées formellement à l'aide de fonctions de Green. À courtes distances r , la fonction de paire réduite pour les atomes condensés peut ainsi s'écrire :

$$\varphi_{00}(\mathbf{R}, \mathbf{r}, t) \approx \varphi_1^{(0)}(\mathbf{r}) - \int d^3\mathbf{r}' G_1^{(0)+}(\mathbf{r}', \mathbf{r}) H_{21}^*(\mathbf{r}') \frac{\Psi_m(\mathbf{R}, t)}{\bar{\Psi}^2(\mathbf{R}, t)} \quad (4.56)$$

où $\varphi_1^{(0)}$ est la fonction d'onde relative de diffusion dans le potentiel U_1 à énergie nulle, et $G_1^{(0)+}$ est la fonction de Green associée à la voie (1) introduite au paragraphe 2.2.4. En remplaçant les

fonctions de paire réduites par leurs expressions quasi-stationnaires dans les équations pour Ψ et Ψ_m , on trouve :

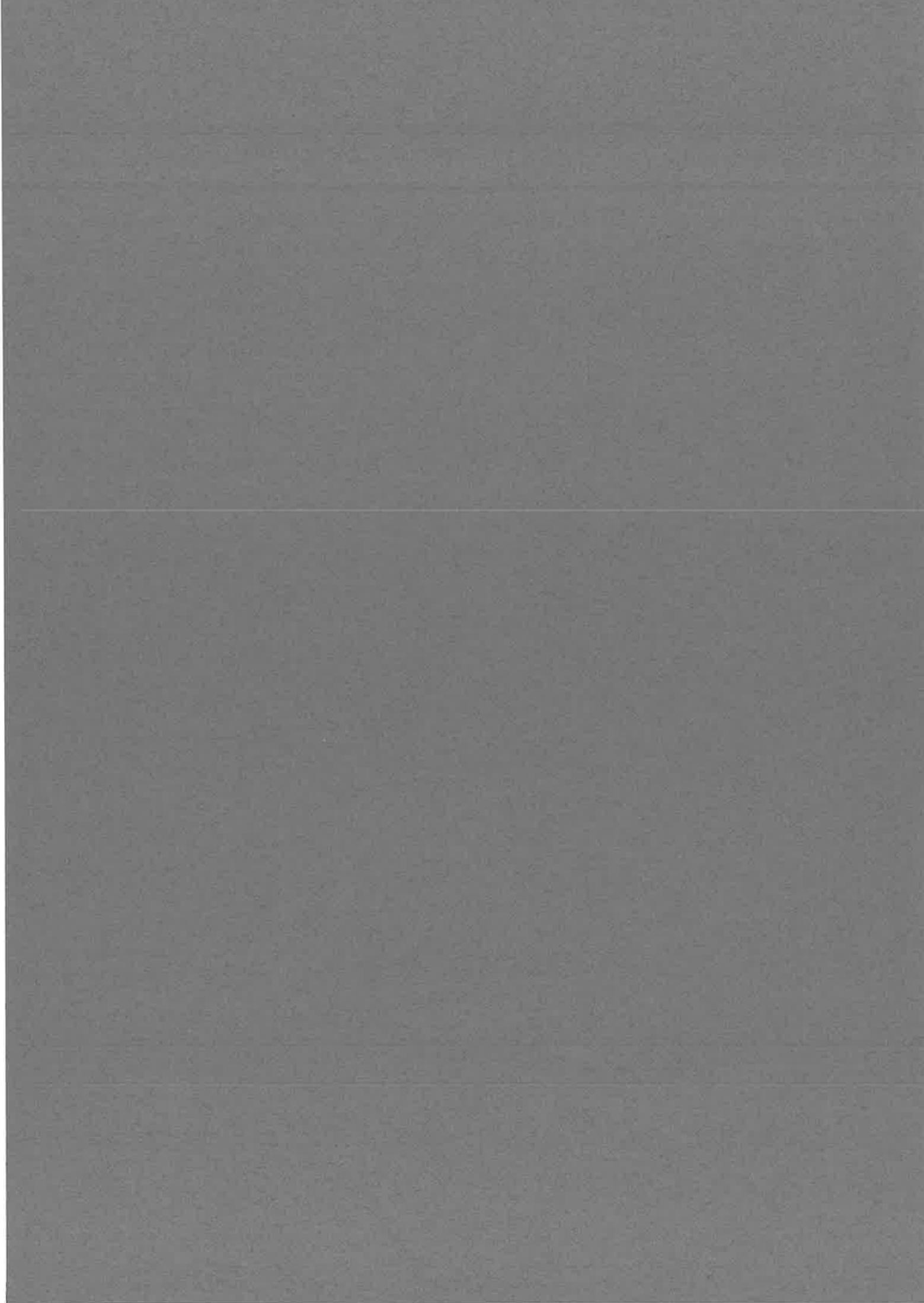
$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi(\mathbf{x}, t) &= \left(-\frac{\hbar^2 \nabla^2}{2m} + V_a(\mathbf{x}) + g(|\Psi(\mathbf{x}, t)|^2 + \sum_{i>0} 2|\Psi_i(\mathbf{x}, t)|^2) \right) \Psi(\mathbf{x}, t) + \sqrt{2} w^* \Psi^*(\mathbf{x}, t) \Psi_m(\mathbf{x}, t) \\ i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi_m(\mathbf{x}, t) &= \left(-\frac{\hbar^2 \nabla^2}{4m} + V_b(\mathbf{x}) + V_c(\mathbf{x}) + \hbar\delta + \Delta E_m \right) \Psi_m(\mathbf{x}, t) + \frac{1}{\sqrt{2}} w \Psi^2(\mathbf{x}, t) \end{aligned} \quad (4.57)$$

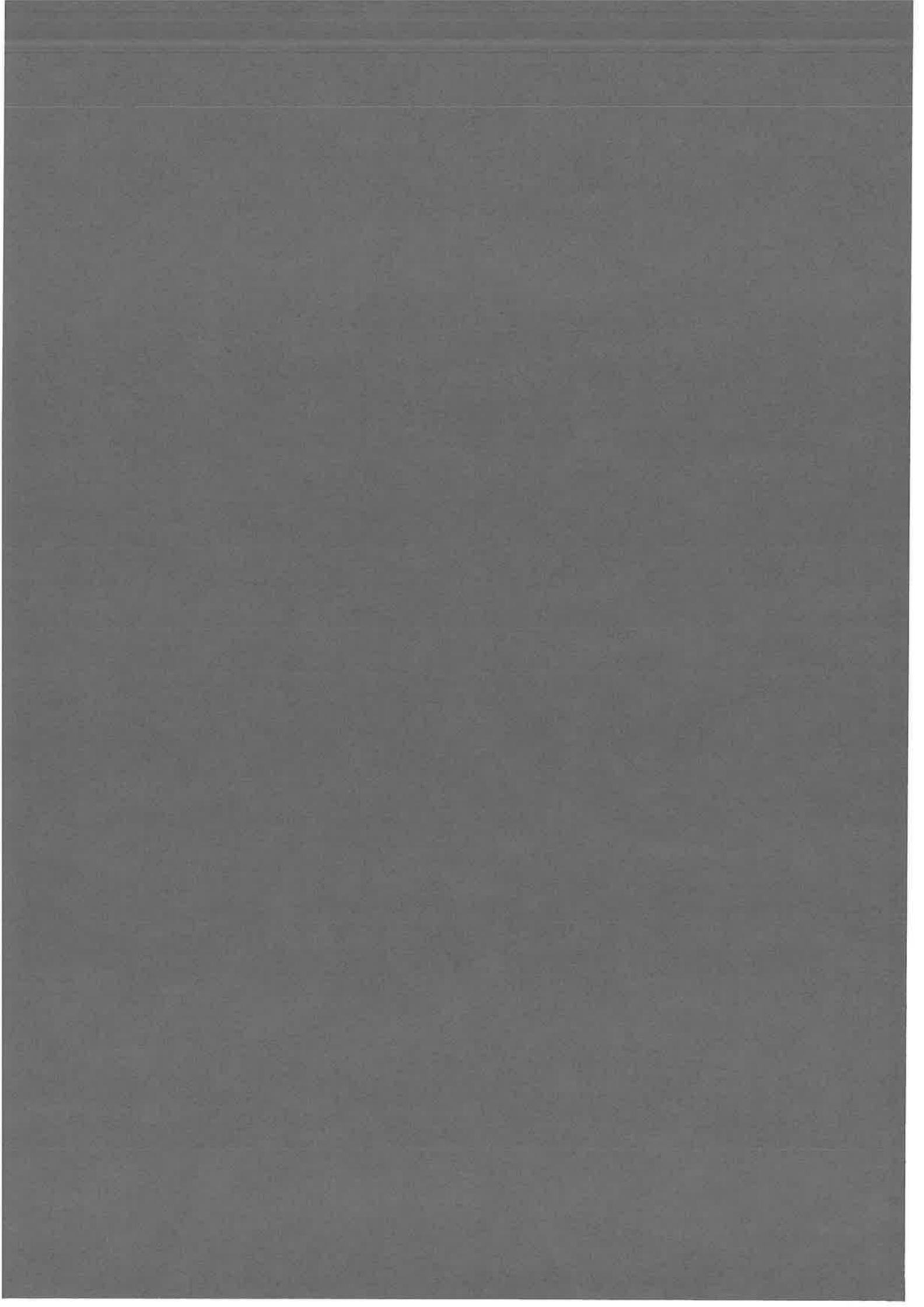
où g et w sont définis par les expressions (4.36-4.37), et . Si l'on peut négliger l'influence des modes non-condensés, on voit que l'on retrouve directement les équations de Gross-Pitaevskii couplées (4.35) avec les constantes (4.36-4.37). On obtient ainsi les équations de champ moyen comme limite des équations générales (4.49-4.51), sans passer par l'utilisation de potentiels de contact. De plus, ces équations font apparaître le déplacement de l'énergie de l'état résonant, absent dans les équations (4.35).

4.3.2.2 Effets dynamiques

De manière générale dans un problème dépendant du temps, les fonctions d'onde de paire peuvent être amenées à jouer un rôle important. On s'attend à ce que la théorie de champ moyen ne soit plus valable, dès que la dynamique de paire ne suit plus adiabatiquement celle des modes à un corps. On rejoint ainsi l'idée de l'importance des corrélations de paire développées dans les modèles de M.J. Holland ou T. Köhler. Néanmoins, le comportement des corrélations à courte distance est ici essentiel : il détermine à chaque instant le couplage effectif ressenti par le condensat. Ceci contraste avec l'utilisation de potentiels de contact effectifs où les constantes de couplage sont fixées (voir le paragraphe 3.3.1.5). Par ailleurs, nous avons vu au paragraphe (3.3.1.2) que la structure des corrélations à courtes distances induites par une interaction réaliste est en principe beaucoup complexe que dans les théories pour une interaction douce. Nous présentons dans le chapitre 6 les résolutions numériques que nous avons effectuées pour tester ces différences, en comparant l'approximation des cumulants au premier ordre à l'approximation de la paire réduite.

4.4 Article Phys. Rev. A 68, 033612 (2003)





Pair dynamics in the formation of molecules in a Bose-Einstein condensate

Pascal Naidon* and Françoise Masnou-Seeuws

Laboratoire Aimé Cotton, CNRS, Bâtiment 505, Campus d'Orsay, 91405 Orsay Cedex, France

(Received 28 February 2003; published 25 September 2003)

We revisit the mean-field treatment of photoassociation and Feshbach resonances in a Bose-Einstein condensate previously used by various authors. Generalizing the Cherny and Shanenko approach [Phys. Rev. E **62**, 1646 (2000)] where the finite size of the potentials is explicitly introduced, we develop a two-channel model for a mixed atomic-molecular condensate. Besides the individual dynamics of the condensed and noncondensed atoms, the model also takes into account their pair dynamics by means of pair wave functions. We show that the resulting set of coupled equations can be reduced to the usual coupled Gross-Pitaevskii equations when the time scale of the pair dynamics is short compared to that of the individual dynamics. Such time scales are discussed in the case of typical photoassociation experiments with cw lasers. We show that the individual dynamics plays a minor role, demonstrating the validity of the rates predicted by the usual models describing photoassociation in a nondegenerate gas.

DOI: 10.1103/PhysRevA.68.033612

PACS number(s): 03.75.Kk, 03.75.Hh, 34.50.-s

I. INTRODUCTION

The possibility of transforming an atomic condensate into a molecular condensate is presently a major challenge [1–6]. Several routes are considered to couple a condensate of free atoms with a condensate of molecules which are all in the same vibrational state of a molecular electronic potential. A Feshbach resonance in the electronic ground state can be swept by a time-dependent magnetic field, and recent experiments [5,6] have observed oscillations in the number of atoms in the condensate. Alternatively, the photoassociation process, which can be considered as an optically induced Feshbach resonance, creates a molecular condensate in an excited electronic state. In the latter case, a stabilization process must be introduced to avoid destruction of this condensate by spontaneous emission as was observed recently [7]. A two-pulse STIRAP (stimulated Raman adiabatic passage) scheme has been theoretically discussed [8–10] in view of transferring the population to bound levels in the ground electronic state.

In a nondegenerate gas, ultracold molecules are formed through combination of a photoassociation step with a stabilization step using spontaneous emission [11–13]. In both cases the efficiency is controlled by the dipole transition moments, which depend markedly upon details of the electronic potential curves: the search for efficient mechanisms relies upon accurate spectroscopic data [14,15] and it was shown that whereas photoassociation is efficient at large internuclear distances, the stabilization process is governed by the probability of finding the two atoms at intermediate distances [15,16]. Making ultracold molecules thus involves an interplay between long-range and short-range dynamics. Up to now, most experiments have used cw lasers. The use of chirped pulses, i.e., laser pulses with a time-dependent frequency, could increase the formation rates [17]. From the theoretical point of view, sweeping a time-dependent magnetic field through a Feshbach resonance is equivalent to

photoassociating with a chirped pulse.

In a condensate, most theoretical treatments at present rely upon coupled Gross-Pitaevskii equations, where the dynamics in the atomic and the molecular condensates as well as the coupling between them are described by mean-field effective potentials [3,8,18]. Details of the potentials are omitted owing to a δ function approximation (contact potential). The knowledge of the molecular potential curves and dipole transition moments is necessary only to determine scattering lengths, binding energies and to accurately compute the coupling parameter between atomic and molecular phases. The success of such calculations relies on the very short time scale of the microscopic dynamics compared to the condensate dynamics.

The validity of the (one-body) mean-field approximation has been recently questioned by several authors, particularly in the case of a time-dependent coupling term, and models using Hartree-Fock-Bogoliubov equations of motion have been proposed [19]. However, such calculations rely on the δ function approximation for the potentials and coupling terms. The ultraviolet divergence caused by this approximation is solved by a renormalization procedure, as discussed in detail by Kokkelmans *et al.* [20]. Recently, Cherny and Shanenko [21,22] have shown that in the description of the dynamics of an atomic condensate, issues associated with the contact potentials can be avoided by considering the exact potential and pair wave functions having the correct nodal structure at short interatomic distance.

The aim of the present work is to revisit the problem of coupled atomic and molecular condensates in the framework of a Cherny treatment. For the sake of clarity, we shall consider only a two-channel model for Feshbach resonance or photoassociation. The paper is organized as follows. We first present a three-field model describing a two-channel coupling in a Bose system. We then derive one-body and two-body mean-field equations, and show how the pair wave functions can be eliminated and lead to effective one-body mean-field equations, without using contact potentials. In the last section, we interpret the one-color photoassociation of a BEC in terms of one-body and two-body modes. Definitions

*Electronic address: pascal.naidon@lac.u-psud.fr

of the pair wave functions in an inhomogeneous system are given in the Appendix.

II. THREE-FIELD MODEL

A. Many-body Hamiltonian

We consider three kinds of atoms in the atomic-molecular system: the ground-state atoms a , colliding in the lower channel and the atoms b and c of the bound pairs in the upper channel. As described in Fig. 1, the free atoms a , interact through the potential $U_{aa}(r)$, while the molecules vibrate in the potential $U_{bc}(r)$. In the case of photoassociation, the latter potential corresponds to an excited electronic state of the molecule. For each species, we define a quantum field: $\hat{\psi}_a$, $\hat{\psi}_b$, and $\hat{\psi}_c$.

This description of the system is a phenomenological starting point. It would be rigorous if the states a , b , and c corresponded to well-defined atomic internal states, which is true only at large interatomic distances. Indeed, when two atoms come close to each other, their internal states change because their electronic clouds overlap. This means that, for instance, the ket $1/\sqrt{2} \hat{\psi}_a^\dagger(\mathbf{x}) \hat{\psi}_a^\dagger(\mathbf{y}) |0\rangle$ is related to the ‘‘molecular’’ ket $1/\sqrt{2} (|\mathbf{x}, \mathbf{y}\rangle + |\mathbf{y}, \mathbf{x}\rangle) \otimes |\phi_{aa}^{el}\rangle$, where $|\phi_{aa}^{el}\rangle$ is the molecular electronic ket depending on the distance $|\mathbf{x} - \mathbf{y}|$.

Bearing in mind this phenomenological aspect, we can write the many-body Hamiltonian of the system in terms of $\hat{\psi}_a$, $\hat{\psi}_b$, and $\hat{\psi}_c$:

$$\begin{aligned} \hat{H} = & \sum_{i=a,b,c} \int d^3\mathbf{x} \hat{\psi}_i^\dagger(\mathbf{x}) \left(-\frac{\hbar^2 \nabla^2}{2m} + V(\mathbf{x}) + E_i \right) \hat{\psi}_i(\mathbf{x}) \\ & + \int \int d^3\mathbf{x} d^3\mathbf{y} \frac{\hat{\psi}_a^\dagger(\mathbf{x}) \hat{\psi}_a^\dagger(\mathbf{y})}{\sqrt{2}} U_{aa}(\mathbf{x} - \mathbf{y}) \frac{\hat{\psi}_a(\mathbf{y}) \hat{\psi}_a(\mathbf{x})}{\sqrt{2}} \\ & + \int \int d^3\mathbf{x} d^3\mathbf{y} \hat{\psi}_b^\dagger(\mathbf{x}) \hat{\psi}_c^\dagger(\mathbf{y}) U_{bc}(\mathbf{x} - \mathbf{y}) \hat{\psi}_c(\mathbf{y}) \hat{\psi}_b(\mathbf{x}) \\ & + \int \int d^3\mathbf{x} d^3\mathbf{y} \hat{\psi}_b^\dagger(\mathbf{x}) \hat{\psi}_c^\dagger(\mathbf{y}) H_{int}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \frac{\hat{\psi}_a(\mathbf{y}) \hat{\psi}_a(\mathbf{x})}{\sqrt{2}} \\ & + \text{H.c.}, \end{aligned} \quad (1)$$

where m is the mass of the atoms and E_a , E_b , E_c are the internal energies of isolated atoms (see Fig. 1). V is the potential trapping the atoms, U_{aa} (U_{bc}) is the interaction potential between atoms of the lower (upper) channel, and H_{int} is the matrix element coupling the two channels (which can be time dependent). No specific approximation is made regarding these potentials, so that the Hamiltonian is built on microscopic grounds. In this respect, our approach is very close to that of Ref. [23], the major difference being that we consider the two channels explicitly. Note that there are no terms involving the potentials U_{ab} , U_{ac} , U_{bb} , etc.: since the atoms b and c are bound, we neglect their collisions with other atoms. Moreover, three-body potentials, as well as spontaneous emission (in the case of photoassociation), are not taken into account in this Hamiltonian.

B. Dynamics of a two-atom system

One can easily derive the usual dynamics of a two-atom system from the many-body Hamiltonian. For instance, consider the two-body state

$$|\Omega\rangle = \int \int d^3\mathbf{x} d^3\mathbf{y} \left(\Phi_A(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) \frac{\hat{\psi}_a^\dagger(\mathbf{x}) \hat{\psi}_a^\dagger(\mathbf{y})}{\sqrt{2}} + \Phi_M(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) \hat{\psi}_b^\dagger(\mathbf{x}) \hat{\psi}_c^\dagger(\mathbf{y}) \right) |0\rangle,$$

where Φ_A and Φ_M are the two components of the two-body wave function for the lower and upper channels. As we will consider continuum states in the lower channel and bound states in the upper channel, A stands for ‘‘atomic’’ and M for ‘‘molecular.’’ This state evolves according to the Schrödinger equation $i\hbar(d|\Omega\rangle/dt) = \hat{H}|\Omega\rangle$. Using the canonical commutation relations $[\hat{\psi}_i(\mathbf{x}), \hat{\psi}_j^\dagger(\mathbf{y})] = \delta_{ij} \delta^3(\mathbf{x} - \mathbf{y})$ and $[\hat{\psi}_i(\mathbf{x}), \hat{\psi}_j(\mathbf{y})] = 0$, one finds a set of equations describing a general two-channel coupling:

$$i\hbar \frac{d\Phi_A}{dt} = \left(-\frac{\hbar^2(\nabla_x^2 + \nabla_y^2)}{2m} + V(\mathbf{x}) + V(\mathbf{y}) + U_{aa}(\mathbf{x} - \mathbf{y}) + 2E_a \right) \Phi_A + H_{int}^*(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \Phi_M, \quad (2)$$

$$i\hbar \frac{d\Phi_M}{dt} = \left(-\frac{\hbar^2(\nabla_x^2 + \nabla_y^2)}{2m} + V(\mathbf{x}) + V(\mathbf{y}) + U_{bc}(\mathbf{x} - \mathbf{y}) + E_b + E_c \right) \Phi_M + H_{int}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \Phi_A. \quad (3)$$

Usually, one can separate the motion of the center of mass $\mathbf{R} = (\mathbf{x} + \mathbf{y})/2$ and only the relative coordinate $\mathbf{r} = \mathbf{x} - \mathbf{y}$ is considered:

$$i\hbar \frac{d\Phi_A(\mathbf{r}, t)}{dt} = \left(-\frac{\hbar^2 \nabla_r^2}{m} + U_{aa}(\mathbf{r}) + 2E_a \right) \Phi_A(\mathbf{r}, t) + H_{int}^*(\mathbf{r}) \Phi_M(\mathbf{r}, t), \quad (4)$$

$$i\hbar \frac{d\Phi_M(\mathbf{r}, t)}{dt} = \left(-\frac{\hbar^2 \nabla_r^2}{m} + U_{bc}(\mathbf{r}) + E_b + E_c \right) \Phi_M(\mathbf{r}, t) + H_{int}(\mathbf{r}) \Phi_A(\mathbf{r}, t). \quad (5)$$

C. Dynamics of a many-atom system

In the more general case of a many-body state, the full dynamics is given by the equations of motion for the field operators in the Heisenberg picture. These equations are obtained from the Heisenberg equations $i\hbar(d\hat{O}/dt) = [\hat{O}, \hat{H}]$, using the canonical commutation relations. In the case of photoassociation with a continuous laser, we may actually rotate the field operators and use the rotating field approxi-

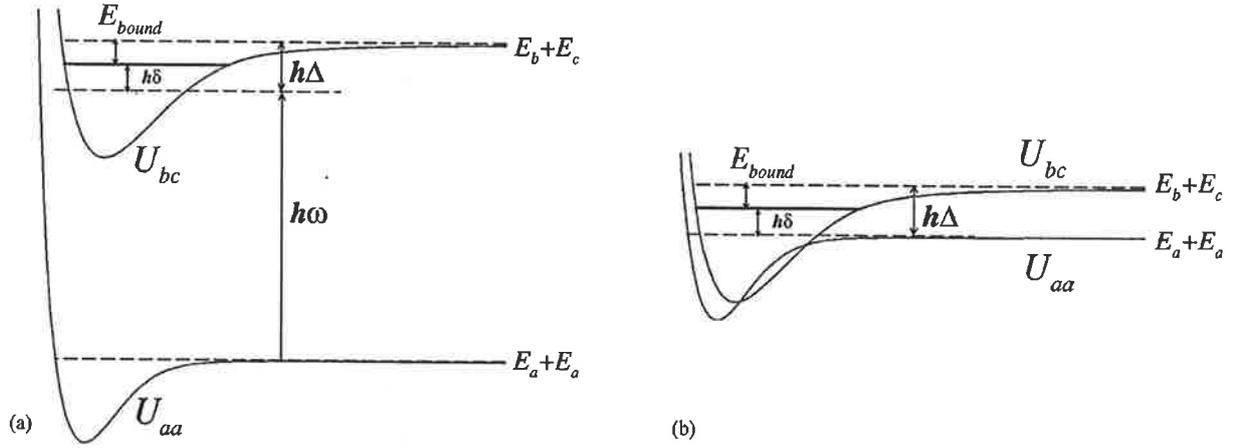


FIG. 1. Schematic representations of two coupled channels. (a) Coupling with a photoassociation laser of frequency $\omega/2\pi$: the asymptotic separation between the dressed potentials is given by a detuning $\Delta = E_b + E_c - 2E_a - \hbar\omega$. (b) Feshbach resonance: a magnetic field is adjusted to couple the two channels by hyperfine interaction. The potentials are separated asymptotically by a detuning $\Delta = E_b + E_c - 2E_a$.

mation in order to remove the oscillatory time dependence of H_{int} [24]. In either case, we find

$$i\hbar \frac{d\hat{\psi}_a(\mathbf{x})}{dt} = \left(-\frac{\hbar^2 \nabla_x^2}{2m} + V(\mathbf{x}) + \int d^3\mathbf{y} U_{aa}(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \hat{\psi}_a^\dagger(\mathbf{y}) \hat{\psi}_a(\mathbf{y}) \right) \hat{\psi}_a(\mathbf{x}) + \sqrt{2} \int d^3\mathbf{y} \hat{\psi}_a^\dagger(\mathbf{y}) \underline{H_{int}^*(\mathbf{x},\mathbf{y})} \hat{\psi}_b(\mathbf{x}) \hat{\psi}_c(\mathbf{y}), \quad (6)$$

$$i\hbar \frac{d\hat{\psi}_b(\mathbf{x}) \hat{\psi}_c(\mathbf{y})}{dt} = \left(-\frac{\hbar^2 (\nabla_x^2 + \nabla_y^2)}{2m} + V(\mathbf{x}) + V(\mathbf{y}) + U_{bc}(\mathbf{x}-\mathbf{y}) + \hbar\Delta \right) \hat{\psi}_b(\mathbf{x}) \hat{\psi}_c(\mathbf{y}) + \underline{H_{int}(\mathbf{x},\mathbf{y})} \frac{\hat{\psi}_a(\mathbf{x}) \hat{\psi}_a(\mathbf{y})}{\sqrt{2}}, \quad (7)$$

where underlining has been used as a notational convenience for symmetrizing certain quantities; for instance, $\underline{A(\mathbf{x},\mathbf{y})}$ actually means $\frac{1}{2}[A(\mathbf{x},\mathbf{y}) + A(\mathbf{y},\mathbf{x})]$. In Eq. (7), we introduced the “detuning” Δ between the two asymptotic curves (see Fig. 1) and we neglected many-body terms corresponding to collisions or coupling with atoms external to the pair considered. Keeping these terms would be inconsistent with the fact that we neglected other potentials such as U_{ab} , U_{ac} .

D. Coupling with a single bound state

Usually, the interaction is tuned to couple the atoms in the ground-state channel to a single stationary bound state in the upper channel: a rovibrational level of the potential U_{bc} with

binding energy E_{bound} . The relative motion of the bound atoms is then described by the stationary wave function φ_M satisfying

$$\left(-\frac{\hbar^2 \nabla_r^2}{m} + U_{bc}(\mathbf{r}) \right) \varphi_M(\mathbf{r}) = -E_{bound} \varphi_M(\mathbf{r}). \quad (8)$$

Here the zero of energy is set to $E_b + E_c$. To achieve population of this single level, one must remain in the perturbative regime, where the typical intensity of the coupling \bar{H}_{int} remains smaller than the energy splittings between the molecular levels. This condition has been discussed in detail by Vatasescu *et al.* [24], in the case of photoassociation in a trap of cold alkali-metal atoms, considering various cw laser intensities and detunings Δ and comparing the Rabi period to the classical vibrational period of the molecular level.

When φ_M is indeed the only bound level affecting the coupling, we can approximate the operator $\hat{\psi}_b(\mathbf{x}) \hat{\psi}_c(\mathbf{y})$ by its projection $\hat{\psi}_M[(\mathbf{x}+\mathbf{y})/2] \varphi_M(\mathbf{x}-\mathbf{y})$ onto this bound level, where the “time-dependent coefficient” $\hat{\psi}_M(\mathbf{R}) = \int d^3\mathbf{r} \varphi_M^*(\mathbf{r}) \hat{\psi}_b[\mathbf{R}+(\mathbf{r}/2)] \hat{\psi}_c[\mathbf{R}-(\mathbf{r}/2)]$ defines a molecular field. The description of the system can then be reduced to two fields $\hat{\psi}_a$ and $\hat{\psi}_M$, satisfying

$$i\hbar \frac{d\hat{\psi}_a(\mathbf{x})}{dt} = \left(-\frac{\hbar^2 \nabla_x^2}{2m} + V(\mathbf{x}) + \int d^3\mathbf{y} U_{aa}(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \hat{\psi}_a^\dagger(\mathbf{y}) \hat{\psi}_a(\mathbf{y}) \right) \hat{\psi}_a(\mathbf{x}) + \sqrt{2} \int d^3\mathbf{y} \underline{W^*(\mathbf{x},\mathbf{y})} \hat{\psi}_a^\dagger(\mathbf{y}) \hat{\psi}_M(\mathbf{x}+\mathbf{y})/2, \quad (9)$$

$$i\hbar \frac{d\hat{\psi}_M(\mathbf{x})}{dt} = \left(-\frac{\hbar^2 \nabla_x^2}{4m} + 2V(\mathbf{x}) + \hbar \delta \right) \hat{\psi}_M(\mathbf{x}) + \int d^3\mathbf{r} W\left(\mathbf{x} + \frac{\mathbf{r}}{2}, \mathbf{x} - \frac{\mathbf{r}}{2}\right) \frac{\hat{\psi}_a\left(\mathbf{x} + \frac{\mathbf{r}}{2}\right) \hat{\psi}_a\left(\mathbf{x} - \frac{\mathbf{r}}{2}\right)}{\sqrt{2}}, \quad (10)$$

where $W(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = H_{int}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \varphi_M^*(\mathbf{x} - \mathbf{y})$ is the interaction kernel and $\hbar \delta = \hbar \Delta - E_{bound}$ is the energy detuning between the two levels (see Fig. 1), considering the dressed picture for photoassociation.

III. EFFECTIVE MEAN-FIELD THEORY

A. Purely atomic system

Let us first consider a purely atomic system (thus ignoring the terms involving any field $\hat{\psi}_b$ or $\hat{\psi}_c$). The equation of motion (6) now simply reads

$$i\hbar \frac{d\hat{\psi}_a(\mathbf{x})}{dt} = \left(-\frac{\hbar^2 \nabla_x^2}{2m} + V(\mathbf{x}) + \int d^3\mathbf{y} \underline{U}_{aa}(\mathbf{x} - \mathbf{y}) \hat{\psi}_a^\dagger(\mathbf{y}) \hat{\psi}_a(\mathbf{y}) \right) \hat{\psi}_a(\mathbf{x}). \quad (11)$$

In the condensed phase, one usually assumes a nonzero expectation value $\Psi_0(\mathbf{x}) \equiv \langle \hat{\psi}_a(\mathbf{x}) \rangle$ for the field operator $\hat{\psi}_a(\mathbf{x})$, corresponding to a macroscopically occupied state (see the Appendix). What is sometimes referred to as “naive mean field” consists in replacing the field operators by their averages directly in the equation of motion (11), thus neglecting the quantum fluctuations $\hat{\psi}_a \equiv \hat{\psi}_a - \Psi_0$. This leads to a nonlinear Schrödinger equation with a coupling constant of the form $\int d^3\mathbf{x} U_{aa}(\mathbf{x})$. This coupling constant is well defined for weak-coupling interactions (for instance, interatomic potentials satisfying the Born approximation $\int d^3\mathbf{x} U_{aa}(\mathbf{x}) \approx 4\pi a \hbar^2/m$, where a is the s -wave scattering length). It is not the case however for the interactions considered here. The interatomic potential exhibits a strong repulsive hard core which leads to a divergent coupling constant.

The usual remedy is to replace the real interaction by an effective one [25], generally a contact potential $U_{aa}(\mathbf{r}) = (4\pi a \hbar^2/m) \delta^3(\mathbf{r})$ (which does satisfy the Born approximation) having the same scattering length a . The resulting equation, known as the Gross-Pitaevskii equation [26,27], forms an “effective mean-field” theory, in which only the large-scale effects of the interaction are retained:

$$i\hbar \frac{d\Psi_0(\mathbf{x})}{dt} = \left(-\frac{\hbar^2 \nabla_x^2}{2m} + V(\mathbf{x}) + \frac{4\pi a \hbar^2}{m} |\Psi_0(\mathbf{x})|^2 \right) \Psi_0(\mathbf{x}). \quad (12)$$

This method can be rigorously justified by considering the effect of two-body correlations [21,28]. An intuitive way of taking these correlations into account is to use pair wave functions. Just as most atoms are individually described by the same macroscopic wave function $\Psi_0(\mathbf{x})$, most pairs of atoms are described by the same macroscopic pair wave function $\Phi_{00}(\mathbf{x}, \mathbf{y})$, which turns out to be simply the anomalous average $1/\sqrt{2} \langle \hat{\psi}_a(\mathbf{x}) \hat{\psi}_a(\mathbf{y}) \rangle$ [see Eq. (A18) in the Appendix]. At large distances, the atoms are decorrelated, and the pair wave function is just a product of two macroscopic one-body wave functions $\langle \hat{\psi}_a(\mathbf{x}) \hat{\psi}_a(\mathbf{y}) \rangle \approx \langle \hat{\psi}_a(\mathbf{x}) \rangle \langle \hat{\psi}_a(\mathbf{y}) \rangle$. So we may write $\Phi_{00}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = 1/\sqrt{2} \Psi_0(\mathbf{y}) \Psi_0(\mathbf{y}) \varphi_{00}(\mathbf{x}, \mathbf{y})$ with $\lim_{|\mathbf{x}-\mathbf{y}| \rightarrow \infty} \varphi_{00}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = 1$. The function φ_{00} may be seen as a reduced pair wave function describing the correlations at short distances (see Fig. 3). To some approximations [see assumptions (H1) and (H2) in the Appendix] justified by the low density and large extent of the condensate, φ_{00} simply satisfies the scattering equation for two atoms in free space. Written with the center of mass and relative coordinates \mathbf{R} and \mathbf{r} , this equation reads

$$i\hbar \frac{d\varphi_{00}(\mathbf{R}, \mathbf{r}, t)}{dt} = \left(-\frac{\hbar^2}{4m} \nabla_R^2 - \frac{\hbar^2}{m} \nabla_r^2 + U_{aa}(\mathbf{r}) \right) \varphi_{00}(\mathbf{R}, \mathbf{r}, t). \quad (13)$$

At equilibrium, it becomes a stationary state $\varphi^{(E)}$ satisfying

$$E \varphi^{(E)}(\mathbf{R}, \mathbf{r}) = \left(-\frac{\hbar^2}{4m} \nabla_R^2 - \frac{\hbar^2}{m} \nabla_r^2 + U_{aa}(\mathbf{r}) \right) \varphi^{(E)}(\mathbf{R}, \mathbf{r}). \quad (14)$$

When the condensate pairs are in their ground state (which is presumably the case when the condensate is not excited), φ_{00} is therefore the lowest energy state satisfying $\lim_{|\mathbf{r}| \rightarrow \infty} \varphi^{(E)}(\mathbf{R}, \mathbf{r}) = 1$, i.e., the stationary scattering state at zero energy $\varphi^{(0)}$.¹ This state can be expressed formally by

$$\begin{aligned} \varphi^{(0)}(\mathbf{r}) &= 1 - \int d^3\mathbf{R}' d^3\mathbf{r}' \underline{U}_{aa}(\mathbf{r}') G(\mathbf{R}, \mathbf{r}, \mathbf{R}', \mathbf{r}') \\ &= 1 - \int d^3\mathbf{r}' \underline{U}_{aa}(\mathbf{r}') g(\mathbf{r}, \mathbf{r}'), \end{aligned} \quad (15)$$

where G is Green's function of the operator $-(\hbar^2/4m)\nabla_R^2 - (\hbar^2/m)\nabla_r^2 + U_{aa}(\mathbf{r})$ and g denotes Green's function of the operator $-(\hbar^2/m)\nabla_r^2 + U_{aa}(\mathbf{r})$. It is known from collision theory [29] that this state is related to the s -wave scattering length a :

$$\int d^3\mathbf{r} \underline{U}_{aa}(\mathbf{r}) \varphi^{(0)}(\mathbf{r}) = \frac{4\pi \hbar^2 a}{m} \equiv g. \quad (16)$$

¹The zero energy is a consequence of the assumption (H1) that the condensate wave function is uniform over the scale of φ , and has therefore no momentum. In reality, the typical energies involved in current traps ($\sim nK$) lie in the threshold law regime.

When taking the expectation value of the equation of motion (11), one finds the term $\langle \hat{\psi}_a^\dagger(y) \hat{\psi}_a(y) \hat{\psi}_a(x) \rangle$, which can be approximated by $\langle \hat{\psi}_a^\dagger(y) \rangle \langle \hat{\psi}_a(y) \hat{\psi}_a(x) \rangle = |\Psi_0(y)|^2 \Psi_0(x) \varphi_{00}(x, y)$ when neglecting the collisions of noncondensed atoms with condensed atoms ($\rho a^3 \ll 1$) [21]. If we assume again that the averaged field Ψ_0 is nearly uniform on the scale of φ_{00} , the interaction term becomes at equilibrium:

$$\begin{aligned} & \left(\int d^3\mathbf{y} \underline{U}_{aa}(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \varphi^{(0)}(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \right) |\Psi_0(\mathbf{x})|^2 \Psi_0(\mathbf{x}) \\ &= \frac{4\pi\hbar^2 a}{m} |\Psi_0(\mathbf{x})|^2 \Psi_0(\mathbf{x}), \end{aligned} \quad (17)$$

where we used Eq. (16). Thus we retrieve the mean-field term in the Gross-Pitaevskii equation (12): it is in fact regularized by the stationary two-body correlations described by $\varphi^{(0)}$.

B. Atomic and molecular system

We now apply these ideas to the atomic-molecular system, with the aim of deriving an effective mean-field theory. A first approach [4,18,30] would be to start from the two-field description (9),(10) and replace the potentials by effective (or renormalized) interactions: $U_{aa}(\mathbf{r}) = g \delta^3(\mathbf{r})$ with $g = 4\pi\hbar^2 a/m$ and $W(\mathbf{r}) = w \delta^3(\mathbf{r})$, with

$$w = \sqrt{2} \langle \varphi_M | H_{int} | \varphi^{(0)} \rangle \equiv \sqrt{2} \int d^3\mathbf{r} \varphi_M^*(\mathbf{r}) H_{int}(\mathbf{r}) \varphi^{(0)}(\mathbf{r}). \quad (18)$$

Replacing the quantum fields by their averages $\langle \psi_a \rangle = \Psi_0$ and $\langle \psi_M \rangle = \Psi_M$, we obtain a set of coupled Gross-Pitaevskii equations which has been extensively studied [4,8,18,30–32]:

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{d\Psi_0(\mathbf{x})}{dt} &= \left(-\frac{\hbar^2 \nabla_x^2}{2m} + V(\mathbf{x}) + g |\Psi_0(\mathbf{x})|^2 \right) \Psi_0(\mathbf{x}) \\ &+ w^* \Psi_0^*(\mathbf{x}) \Psi_M(\mathbf{x}), \end{aligned} \quad (19)$$

$$i\hbar \frac{d\Psi_M(\mathbf{x})}{dt} = \left(-\frac{\hbar^2 \nabla_x^2}{4m} + 2V(\mathbf{x}) + \hbar \delta \right) \Psi_M(\mathbf{x}) + \frac{1}{2} w \Psi_0^2(\mathbf{x}). \quad (20)$$

Let us now follow the approach of Ref. [21]. We now consider the following one-body and two-body fields: (i) the atomic condensate mode Ψ_0 , (ii) the atomic noncondensed modes Ψ_i , (iii) the molecular condensed mode $\Phi_M = \langle \hat{\psi}_b \hat{\psi}_c \rangle$ (we will neglect noncondensed molecular modes), (iv) the pair wave function Φ_{00} for two condensed atoms, and (v) the pair wave function Φ_{0i} for a condensed atom and a noncondensed atom in the mode Ψ_i (we will neglect the pairs of noncondensed atoms).

We first take the expectation value of Eqs. (6) and (7), expressing the atomic correlations by means of pair wave functions:

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{d\Psi_0(\mathbf{x})}{dt} &= \left(-\frac{\hbar^2 \nabla_x^2}{2m} + V(\mathbf{x}) \right) \Psi_0(\mathbf{x}) \\ &+ \sqrt{2} \int d^3\mathbf{y} \left(\underline{U}_{aa}(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \sum_i \Psi_i^*(\mathbf{y}) \Phi_{0i}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \right. \\ &\left. + H_{int}^*(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \Psi_0^*(\mathbf{y}) \Phi_M(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \right), \end{aligned} \quad (21)$$

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{d\Phi_M(\mathbf{x}, \mathbf{y})}{dt} &= \left(-\frac{\hbar^2 (\nabla_x^2 + \nabla_y^2)}{2m} + V(\mathbf{x}) + V(\mathbf{y}) + U_{bc}(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \right. \\ &\left. + \hbar \Delta \right) \Phi_M(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + H_{int}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \Phi_{00}(\mathbf{x}, \mathbf{y}). \end{aligned} \quad (22)$$

The dynamics of Ψ_i , Φ_{00} , and Φ_{0i} is given in the Appendix. Note that Eqs. (A34) and (22) giving the evolution of Φ_{00} and Φ_M are analogous to Eqs. (2) and (3). They describe indeed the coupled dynamics for the pairs of condensed atoms, giving rise to Rabi oscillations on a time scale

$$T_{pairs} = \frac{\hbar}{\bar{H}_{int}}. \quad (23)$$

To simplify these general equations, we make use of the reduced pair wave functions φ_{00} and φ_{0i} defined by Eqs. (A11) and (A12), with the assumptions (H₁) and (H₂). Furthermore, we resort to a perturbative approach and assume that the atoms are coupled to a single stationary bound state φ_M , satisfying Eq. (8). In this case, $\Phi_M(\mathbf{x}, \mathbf{y})$ reduces to its projection $\Psi_M[(\mathbf{x}+\mathbf{y})/2] \varphi_M(\mathbf{x}-\mathbf{y})$ onto φ_M . The “time-dependent coefficient” Ψ_M is the center-of-mass wave function for the molecules in this bound state.

These assumptions lead to a closed set of equations:

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{d\Psi_0}{dt} &= \left(-\frac{\hbar^2 \nabla^2}{2m} + V + g_{00} |\Psi_0|^2 + \sum_{i \neq 0} 2g_{0i} |\Psi_i|^2 \right) \Psi_0 \\ &+ g'_M \Psi_M \Psi_0^*, \end{aligned} \quad (24)$$

$$i\hbar \frac{d\Psi_i}{dt} = \left(-\frac{\hbar^2 \nabla^2}{2m} + V + 2g_{0i} |\Psi_0|^2 \right) \Psi_i, \quad (25)$$

$$i\hbar \frac{d\Psi_M}{dt} = \left(-\frac{\hbar^2 \nabla^2}{4m} + 2V + \hbar \delta \right) \Psi_M + \frac{1}{2} g_M \Psi_0^2, \quad (26)$$

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{d\varphi_{00}(\mathbf{R}, \mathbf{r})}{dt} &= \left(-\frac{\hbar^2 \nabla_R^2}{4m} - \frac{\hbar^2 \nabla_r^2}{m} + U_{aa}(\mathbf{r}) \right) \varphi_{00}(\mathbf{R}, \mathbf{r}) \\ &+ \sqrt{2} H_{int}^*(\mathbf{R}, \mathbf{r}) \varphi_M(\mathbf{r}) \\ &\times \left(\frac{\Psi_M(\mathbf{R})}{\Psi_0\left(\mathbf{R} + \frac{\mathbf{r}}{2}\right) \Psi_0\left(\mathbf{R} - \frac{\mathbf{r}}{2}\right)} \right), \end{aligned} \quad (27)$$

$$i\hbar \frac{d\varphi_{0i}(\mathbf{R}, \mathbf{r})}{dt} = \left(-\frac{\hbar^2 \nabla_{\mathbf{R}}^2}{4m} - \frac{\hbar^2 \nabla_{\mathbf{r}}^2}{m} + \underline{U_{aa}}(\mathbf{r}) \right) \varphi_{0i}(\mathbf{R}, \mathbf{r}), \quad (28)$$

where the one-body modes are coupled to the two-body modes through the coupling factors:

$$g_{00}(\mathbf{x}) = \int d^3\mathbf{y} \underline{U_{aa}}(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \varphi_{00}(\mathbf{x}, \mathbf{y}), \quad (29)$$

$$g_{0i}(\mathbf{x}) = \int d^3\mathbf{y} \underline{U_{aa}}(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \varphi_{0i}(\mathbf{x}, \mathbf{y}), \quad (30)$$

$$g_M(\mathbf{R}) = \sqrt{2} \int d^3\mathbf{r} \varphi_M^*(\mathbf{r}) H_{int}(\mathbf{R}, \mathbf{r}) \varphi_{00}(\mathbf{R}, \mathbf{r}), \quad (31)$$

$$g'_M(\mathbf{x}) = \sqrt{2} \int d^3\mathbf{y} \varphi_M^*(\mathbf{x}-\mathbf{y}) H_{int}(\mathbf{x}, \mathbf{y}). \quad (32)$$

Note that the noncondensed modes Ψ_i as well as the pairs φ_{0i} involving a noncondensed atom are not directly affected by the molecular condensate. Thus, our equations cannot present any ‘‘rogue photodissociation’’ [30,33], enabling molecules to dissociate towards noncondensed modes. The rogue photodissociation may be found either in the fluctuations of the molecular field or in the pairs φ_{ij} involving two noncondensed atoms, which we have both neglected. However, rogue photodissociation has been treated thus far without the molecular fluctuations, and using the anomalous average $\langle \hat{a}_{\mathbf{k}} \hat{a}_{-\mathbf{k}} \rangle$ to describe noncondensed pairs. In our own approach, this average is rather related to the condensed pairs at short distances [see Eq. (A18)]. We plan to clarify this point in a future work. In the rest of this paper, we will assume that we are in situations where the rogue photodissociation does not play an important role.

In order to decouple the one-body dynamics from the two-body dynamics, the pair wave functions must be quasistationary and follow adiabatically the one-body wave functions. In other words, the characteristic time of evolution for the pairs T_{pairs} [see Eq. (23)] must be very short compared with the characteristic time of evolution T_{cond} for the condensates:

$$\frac{T_{pairs}}{T_{cond}} \ll 1. \quad (33)$$

In that case, we can solve Eqs. (27) and (28) formally using Green’s functions introduced in Eq. (15):

$$\begin{aligned} \varphi_{00}(\mathbf{R}, \mathbf{r}) &= \varphi^{(0)}(\mathbf{r}) - \int d^3\mathbf{R}' d^3\mathbf{r}' G(\mathbf{R}', \mathbf{r}', \mathbf{R}, \mathbf{r}) \\ &\quad \times \sqrt{2} H_{int}^*(\mathbf{R}', \mathbf{r}') \varphi_M(\mathbf{r}') \\ &\quad \times \left(\frac{\Psi_M(\mathbf{R}')}{\Psi_0\left(\mathbf{R}' + \frac{\mathbf{r}'}{2}\right) \Psi_0\left(\mathbf{R}' - \frac{\mathbf{r}'}{2}\right)} \right) \\ &\approx \varphi^{(0)}(\mathbf{r}) - \int d^3\mathbf{r}' g(\mathbf{r}', \mathbf{r}) \\ &\quad \times \sqrt{2} H_{int}^*(\mathbf{r}') \varphi_M(\mathbf{r}') \frac{\Psi_M(\mathbf{R})}{\Psi_0^2(\mathbf{R})}, \\ \varphi_{0i}(\mathbf{R}, \mathbf{r}) &= \varphi^{(0)}(\mathbf{r}). \end{aligned}$$

We can then eliminate φ_{00} and φ_{0i} in Eqs. (24), (25), and (26), and using properties (15),(16) of $\varphi^{(0)}$, we find:

$$i\hbar \frac{d\Psi_0}{dt} = \left(-\frac{\hbar^2 \nabla^2}{2m} + V + g \left(|\Psi_0|^2 + \sum_{i \neq 0} 2|\Psi_i|^2 \right) \right) \Psi_0 + w^* \Psi_0^* \Psi_M, \quad (34)$$

$$i\hbar \frac{d\Psi_i}{dt} = \left(-\frac{\hbar^2 \nabla^2}{2m} + V + 2g|\Psi_0|^2 \right) \Psi_i, \quad (35)$$

$$i\hbar \frac{d\Psi_M}{dt} = \left(-\frac{\hbar^2 \nabla^2}{4m} + 2V + \hbar \delta + E_{self} \right) \Psi_M + \frac{1}{2} w \Psi_0^2, \quad (36)$$

where $E_{self} = \int [|\langle \varphi_M | H_{int} | \varphi^{(E)} \rangle|^2 / E \rho(E) dE]$ is the self-energy of the molecules: it is an energy shift caused by the interaction with the open channel [7,34–36]. We may include this energy shift in the detuning δ . Note that Eq. (35) is conservative, so that the noncondensed modes may be omitted if they are initially negligible. Finally, we retrieve the coupled Gross-Pitaevskii equations (19),(20).

One can see in Eqs. (34) and (36) that the typical time T_{cond} for the Rabi oscillations between Ψ_0 and Ψ_M is given by $\hbar/(w\sqrt{\rho})$, where ρ is the typical density of the system while the interaction w has been defined in Eq. (18). Condition (33) is thus equivalent to

$$\sqrt{2\rho} \langle \varphi_M | \varphi^{(0)} \rangle \ll 1. \quad (37)$$

Note that this condition does not depend on the intensity of the coupling \bar{H}_{int} , but keep in mind that it has been derived in a perturbative way. More generally, mean-field equations such as Eqs. (34) and (36) should be valid as long as the time scale T_{pairs} , associated with the two-body dynamics, is short compared with the time scale T_{cond} of the one-body dynamics. In other cases, one might need to use the more general equations (21) and (22) and treat the two-body dynamics explicitly.

TABLE I. Some typical time scales for the photoassociation of a condensate.

	Intensity	E_{bound} (cm $^{-1}$)	T_{pairs} (s)	T_{cond} (s)	T_{spont} (s)	$\sqrt{2\rho}\langle\varphi_m \varphi^{(0)}\rangle$
^{23}Na [7]	100 W/cm 2	49	8.4×10^{-10}	1.1×10^{-6}	8.4×10^{-9}	7.4×10^{-4}
	1 kW/cm 2	49	2.6×10^{-10}	3.5×10^{-7}		
	1 kW/cm 2	4	2.6×10^{-10}	3.5×10^{-7}		4.5×10^{-3}
^{85}Rb [8]			$\sim 10^{-11}$	4.8×10^{-8}	1.4×10^{-8}	$\sim 3.10^{-4}$

C. Comparison with other models

These general equations can be compared with the models developed by Holland and co-workers *et al.* [19] and Köhler *et al.* [23]. In the Hartree-Fock-Bogoliubov model of Holland and co-workers, anomalous and normal correlation functions are used to go beyond the coupled Gross-Pitaevskii equations: when these correlation functions are negligible, their model also leads to the coupled Gross-Pitaevskii equations. We therefore believe that the anomalous correlation is in fact related at large distances to the fluctuations around the stationary perturbed pair wave function Φ_{00} . It is not true, however, at short distances, since their model is built with contact interactions. This is why a renormalization procedure is needed to recover the physics from short distances.

In the model of Köhler *et al.*, the system is described by a single nonlinear non-Markovian Schrödinger equation which is not obviously related to the coupled Gross-Pitaevskii equations. However, the cumulant approach at the basis of their model should be mathematically very close to our pair wave function approach. The main differences are that we factorize the correlations and consider the two channels explicitly: what they note $\Psi(\mathbf{x})\Psi(\mathbf{y}) + \Phi(\mathbf{x},\mathbf{y})$ is a condensed pair wave function with two implicit components corresponding to the pair wave functions Φ_{00} and Φ_M . As our model has an explicit connection to the coupled Gross-Pitaevskii equations, we believe it is also the case for the model of Köhler. Our model therefore clarifies the relation between the existing models and gives a simple image in terms of one-body and two-body wave functions.

IV. APPLICATION TO PHOTOASSOCIATION IN A BEC

Condition (37) shows that the one-body mean-field approach holds for sufficiently low densities, contrary to what has been suggested in Ref. [8]. Actually, in the case of photoassociation, condition (37) is usually achieved in the current experiments where the condensate is always dilute enough ($\rho \sim 10^{20}$ m $^{-3}$), and the Franck-Condon factor $\langle\varphi_M|\varphi^{(0)}\rangle$ is sufficiently low ($\sim 10^{-14}$ m $^{3/2}$). We give in Table I typical values. We first have considered the photoassociation experiment in a Na condensate reported in Ref. [7], where the level $\nu = 135$ of $\text{Na}_2 0_u^+(3S+3P_{1/2})$ (corresponding to $E_{bound} \sim 49$ cm $^{-1}$) is populated for various laser intensities. The computed radial wave functions are represented in Fig. 2: although the Franck-Condon factor is favorable for photoassociation, we find for a density of 4×10^{20} m $^{-3}$ a ratio $T_{pairs}/T_{cond} < 10^{-3}$. It is not easy to increase the transition moment by three orders of magnitude. Photoassociating towards molecular levels closer to the dissociation limit, for instance $\nu = 163$ (corresponding to

$E_{bound} \sim 4$ cm $^{-1}$ and an outer turning point located at $r \sim 85$ a.u.), would increase the Franck-Condon factor by less than one order of magnitude. Similar conclusions on the relative time scales can be drawn for a Rb condensate, in the conditions described in Ref. [8]. We then expect that in most realistic cases the condition $T_{pairs} \ll T_{cond}$ will indeed be verified.

There is another time scale, however, since the molecular state is not stable and decays by spontaneous emission. We can treat this spontaneous emission phenomenologically within the framework of our equations by adding a loss term $-i\hbar(\gamma/2)\Psi_M$ in the equation of the molecular field (26). To simplify, we will consider a homogeneous system ($V=0$).

For sufficiently high intensities, $\bar{H}_{int} \gg \hbar\gamma$, i.e., $T_{pairs} \ll T_{spont}$, and the pairs have the time to oscillate between the two channels before spontaneous emission takes place. Eliminating the pair dynamics, we are left with a set of coupled Gross-Pitaevskii equations:

$$i\hbar \frac{d\Psi_0}{dt} = g|\Psi_0|^2\Psi_0 + w^*\Psi_0^*\Psi_M, \quad (38)$$

$$i\hbar \frac{d\Psi_M}{dt} = \hbar(\delta - i\gamma/2)\Psi_M + \frac{1}{2}w\Psi_0^2. \quad (39)$$

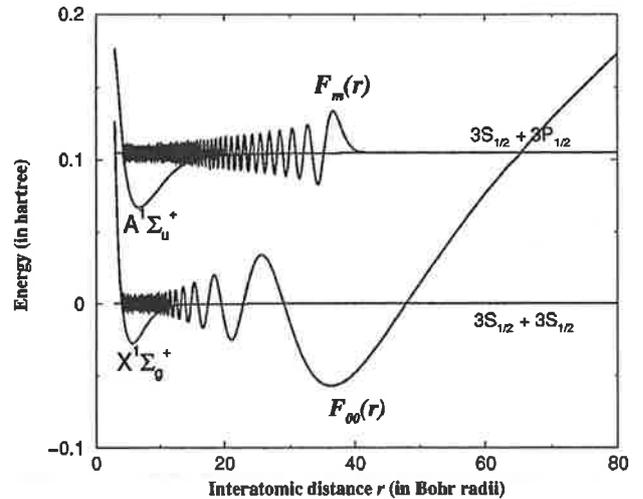


FIG. 2. Representation of the radial wave functions in the photoassociation experiment of Ref. [7]. The function in the open channel and the bound wave function were computed using, respectively, the Numerov-Cooley method [38] and the Fourier grid method [39]. Note that in the text the total wave functions $\varphi_{00}(\mathbf{r}) = F_{00}(r)/\sqrt{4\pi r}$ and $\varphi_M(\mathbf{r}) = F_M(r)/\sqrt{4\pi r}$ are considered.

Spontaneous emission is then usually faster than the dynamics of the condensates ($\hbar\gamma \gg w\sqrt{\rho}$), so that we can eliminate the molecular field adiabatically:

$$\Psi_M = -\frac{w}{2\hbar(\delta - i\gamma/2)}\Psi_0^2. \quad (40)$$

We obtain a simple rate equation for the condensate density $|\Psi_0|^2$:

$$\frac{d|\Psi_0|^2}{dt} = -K|\Psi_0|^4, \quad (41)$$

with a rate $K = K_0/1 + (2\delta/\gamma)^2$ and an on-resonance rate

$$K_0 = \frac{4}{\gamma} \left| \frac{1}{\hbar} \langle \varphi_M | H_{int} | \varphi^{(0)} \rangle \right|^2. \quad (42)$$

This is exactly the rate one can derive from a perturbative treatment of the two-atom equations (4) and (5) [34], assuming the presence of the condensate has only two effects: very low collision energies in the open channel and no need to symmetrize Φ_A since condensed atoms are in the same state. This last effect reduces the rate by a factor of 2 relative to a noncondensed gas [30,37], and was accounted for in our model through the proper symmetrization of the pair wave functions [compare Eqs. (A11) and (A12)]. Thus, a cautious many-body treatment of the photoassociation in a BEC eventually yields the same prediction as two-atom theories. This indicates that the physics of the problem lies essentially in the pairs of atoms. This result has been confirmed by the photoassociation experiment in a condensate of sodium atoms reported by McKenzie *et al.* [7]. The laser intensities used in this experiment (from ~ 0.1 to 1 kW cm $^{-2}$) are those which we have considered here, where $T_{pairs} \ll T_{spont}$ (see Table I). They found that the condensate is indeed locally depleted according to Eq. (41), with a rate K_0 proportional to the intensity, such that $dK_0/dI = 3.5 \times 10^{-10}$ s $^{-1}$ W $^{-1}$ cm 2 . This is in agreement with the theoretical rate given by Eq. (42). Our own calculation, using numerical computations of stationary wave functions φ_M and $\varphi^{(0)}$ [see Fig. 2], leads to $dK_0/dI = 3.3 \times 10^{-10}$ s $^{-1}$ W $^{-1}$ cm 2 , in agreement with the calculation given in Ref. [7].

For smaller intensities, $\bar{H}_{int} \ll \hbar\gamma$, and the spontaneous emission is the fastest phenomenon: the formed molecules decay almost instantly, so that we can eliminate them adiabatically. Setting $d\Psi_M/dt = 0$ in Eq. (26) yields

$$\Psi_M = -\frac{\langle \varphi_M | H_{int} | \varphi_{00} \rangle}{\sqrt{2}\hbar(\delta - i\gamma/2)}\Psi_0^2. \quad (43)$$

So that we are left with

$$i\hbar \frac{d\Psi_0}{dt} = \left(\int d^3r J[\varphi_{00}](\mathbf{r}) \right) |\Psi_0|^2 \Psi_0, \quad (44)$$

$$i\hbar \frac{d\varphi_{00}}{dt}(\mathbf{r}) = -\frac{\hbar^2}{m} \nabla^2 \varphi_{00}(\mathbf{r}) + J[\varphi_{00}](\mathbf{r}), \quad (45)$$

where

$$J[\varphi_{00}](\mathbf{r}) = U_{aa}(\mathbf{r})\varphi_{00}(\mathbf{r}) - H_{int}^*(\mathbf{r})\varphi_M(\mathbf{r}) \\ \times [\langle \varphi_M | H_{int} | \varphi_{00} \rangle / \hbar(\delta - i\gamma/2)].$$

The situation is the following: the formation of excited molecules creates a hole at short distances in the pair distribution φ_{00} , through the imaginary part of J . This hole is refilled with waves coming from larger distances, while the whole condensate is being depleted. Although this picture is quite different from the higher-intensity regime, we believe it leads essentially to the same rate of depletion, as we do not expect to see a new behavior emerging from lower intensities.

V. CONCLUSION

We have generalized the pair wave function approach, introduced by Cherny for an atomic condensate, to a nonhomogeneous Bose system with two coupled channels, such as a mixed atomic-molecular condensate. The treatment of pair correlations is performed using the physical potentials both in the atomic and the molecular channel. We have shown that the pair wave functions regularize the mean-field terms in the equations without requirement of any renormalization procedure. This has enabled us to derive the coupled Gross-Pitaevskii equations on firm grounds and to assess their range of validity by comparing characteristic times associated to the pair dynamics and to the condensate dynamics.

We have shown that in the case of photoassociation with a cw laser, at intensities allowing a perturbative model, the Gross-Pitaevskii description is usually verified and even leads to the rates predicted simply from the photoassociation probability of two colliding atoms. Nevertheless, we believe that the two-body mean-field equations might be necessary in other situations with a nontrivial time dependence, such as photoassociation with chirped laser pulses. Previous works [19,23,40] have already shown the importance of long-range correlations for Feshbach resonance induced by a time-dependent magnetic field. Future work will clarify the possible influence of short-range correlations in these time-dependent situations.

ACKNOWLEDGMENTS

The authors would like to thank E. Tiesinga, M. Mackie, S. Kokkelmans, R. Kosloff, and P. Pellegrini for helpful discussions.

APPENDIX: MODES AND PAIRWAVE FUNCTIONS

In this appendix, we generalize the ideas of Cherny [21] to a nonhomogeneous Bose gas. To simplify the notations, the field operator $\hat{\psi}_a$ will be noted $\hat{\psi}$.

1. Definition of the pair wave functions

In second quantization, the one-body and two-body density matrices of the system are defined by

$$\rho_1(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \equiv \langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{x}) \hat{\psi}(\mathbf{y}) \rangle, \quad (A1)$$

$$\rho_2(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{y}', \mathbf{x}') \equiv \frac{1}{2!} \langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{x}) \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{y}) \hat{\psi}(\mathbf{y}') \hat{\psi}(\mathbf{x}') \rangle. \quad (\text{A2})$$

As Hermitian matrices, they can be diagonalized in an orthonormal basis:

$$\rho_1(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = \sum_i n_i \psi_i^*(\mathbf{x}) \psi_i(\mathbf{y}), \quad (\text{A3})$$

$$\rho_2(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{y}', \mathbf{x}') = \sum_\nu m_\nu \phi_\nu^*(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \phi_\nu(\mathbf{x}', \mathbf{y}'). \quad (\text{A4})$$

This means that there are n_i atoms in the one-body mode (or wave function) ψ_i , and there are m_ν pairs of atoms in the two-body mode (or pair wave function) ϕ_ν . All these wave functions are normalized to unity, but we can alternatively define the functions $\Psi_i = \sqrt{n_i} \psi_i$ and $\Phi_\nu = \sqrt{m_\nu} \phi_\nu$, which are normalized to the number of atoms or pairs of atoms. Note that in a state where the total number of atoms is n , we have $\sum_i n_i = n$ and $\sum_\nu m_\nu = n(n-1)/2$. This may be seen as a consequence of the relations:

$$\int d^3x \langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{x}) \hat{\psi}(\mathbf{x}) \rangle = n, \quad (\text{A5})$$

$$\int d^3y \langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{x}) \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{y}) \hat{\psi}(\mathbf{y}) \hat{\psi}(\mathbf{x}') \rangle = (n-1) \langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{x}) \hat{\psi}(\mathbf{x}') \rangle. \quad (\text{A6})$$

We can use the one-body modes ψ_i to expand the field operator: $\hat{\psi}(\mathbf{x}) = \sum_i \hat{a}_i \psi_i(\mathbf{x})$. Using Eqs. (A1) and (A3), we find the relation $\langle \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_j \rangle = n_i \delta_{ij}$.

When there is no interaction between the atoms, the atoms are decorrelated and the pair wave functions ϕ_ν are simply symmetrized products of one-body wave functions:

$$\phi_{ii}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = \psi_i(\mathbf{x}) \psi_i(\mathbf{y}), \quad (\text{A7})$$

$$\phi_{ij}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = \frac{\psi_i(\mathbf{x}) \psi_j(\mathbf{y}) + \psi_j(\mathbf{x}) \psi_i(\mathbf{y})}{\sqrt{2}} \quad (i < j). \quad (\text{A8})$$

ϕ_{ii} is the wave function for two atoms in the same mode ψ_i , and ϕ_{ij} is the wave function for two atoms in the modes ψ_i and ψ_j . From counting arguments, we have $m_{ii} = n_i(n_i - 1)/2$ pairs in the mode ϕ_{ii} and $m_{ij} = n_i n_j$ pairs in the mode ϕ_{ij} . One can check that this pair distribution does indeed satisfy relation (A6).

In the presence of interactions, one might expect extra terms needed to describe the correlations at short interatomic distances $|\mathbf{x} - \mathbf{y}|$ (see Fig. 3):

$$\phi_{ii}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \propto \psi_i(\mathbf{x}) \psi_i(\mathbf{y}) + \phi'_{ii}(\mathbf{x}, \mathbf{y}), \quad (\text{A9})$$

$$\phi_{ij}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \propto \frac{\psi_i(\mathbf{x}) \psi_j(\mathbf{y}) + \psi_j(\mathbf{x}) \psi_i(\mathbf{y})}{\sqrt{2}} + \phi'_{ij}(\mathbf{x}, \mathbf{y}). \quad (\text{A10})$$

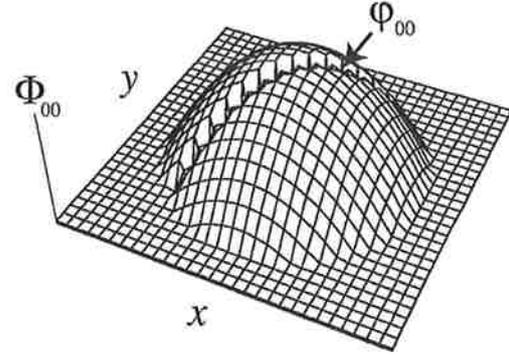


FIG. 3. Schematic representation of the macroscopic wave function for condensate pairs in a one-dimensional system: $\Phi_{00}(x, y) = 1/\sqrt{2} \Psi_0(x) \Psi_0(y) \phi_{00}(x, y)$. The reduced pair wave function ϕ_{00} gives the correlation at short distance $|\mathbf{x} - \mathbf{y}|$ created by the scattering of the two atoms.

These correlations ϕ'_{ij} are expected to vanish for interatomic distances larger than, say, the range r_0 of the interaction. The pair wave functions are thus asymptotically decorrelated; this follows from the principle of correlation weakening [21]. If the interaction supports bound states, one might also expect bound-pair wave functions ϕ_ν , vanishing entirely for interatomic distances larger than r_0 .

As the functions ϕ'_{ij} will scale like the functions ψ_i and ψ_j , it can be useful to express the correlations with dimensionless functions, which we refer to as “reduced pair wave functions”:

$$\phi_{ii}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \propto \psi_i(\mathbf{x}) \psi_i(\mathbf{y}) \varphi_{ii}(\mathbf{x}, \mathbf{y}), \quad (\text{A11})$$

$$\phi_{ij}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \propto \frac{\psi_i(\mathbf{x}) \psi_j(\mathbf{y}) + \psi_j(\mathbf{x}) \psi_i(\mathbf{y})}{\sqrt{2}} \varphi_{ij}(\mathbf{x}, \mathbf{y}), \quad (\text{A12})$$

with $\varphi_{ij}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \rightarrow 1$ when $|\mathbf{x} - \mathbf{y}| \gg r_0$.

2. Pair wave functions in a condensate with U(1) symmetry breaking

When condensation occurs, most of the atoms are in the same quantum state, say ϕ_0 . This means $n_0 \gg \sum_i n_i$. Accordingly, most of the pairs are in the same quantum state ψ_{00} , corresponding to pairs of condensed atoms. A way of treating this situation, related to the Bogoliubov ansatz, is to assume a breaking of the U(1) symmetry [41]: the system is then in a coherent state $|\Omega\rangle$ satisfying $\hat{a}_0|\Omega\rangle = \alpha_0|\Omega\rangle$. From the relation $\langle \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_j \rangle = n_i \delta_{ij}$, we obtain $\alpha_0 = \sqrt{n_0}$ and $\langle \hat{a}_i \rangle = 0$ ($i \neq 0$), so that the field operator has a nonzero expectation value $\langle \hat{\psi} \rangle = \Psi_0$. The deviations from the mean $\hat{\theta} = \Psi_0 - \hat{\psi}$ are the quantum fluctuations. This implies that the number of atoms now fluctuates and relation (A6) derived for a fixed-number state is no more valid. However, this prescription is very useful to derive expressions for the one-body and two-body modes in terms of the quantum fluctuations. Indeed, if we expand the two-body density matrix in terms of $\hat{\theta}$:

$$\rho_2(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{y}', \mathbf{x}') = \frac{1}{2} \{ \Psi_0^*(\mathbf{x}) \Psi_0^*(\mathbf{y}) \Psi_0(\mathbf{y}') \Psi_0(\mathbf{x}') + \Psi_0^*(\mathbf{x}) \Psi_0^*(\mathbf{y}) \langle \hat{\theta}(\mathbf{y}') \hat{\theta}(\mathbf{x}') \rangle \} \quad (\text{A13})$$

$$+ \langle \hat{\theta}(\mathbf{x}) \hat{\theta}(\mathbf{y}) \rangle^* \Psi_0(\mathbf{y}') \Psi_0(\mathbf{x}') + \Psi_0^*(\mathbf{x}) \Psi_0(\mathbf{x}') \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{y}) \hat{\theta}(\mathbf{y}') \rangle + \Psi_0^*(\mathbf{x}) \Psi_0(\mathbf{y}') \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{y}) \hat{\theta}(\mathbf{x}') \rangle \quad (\text{A14})$$

$$+ \Psi_0^*(\mathbf{y}) \Psi_0(\mathbf{x}') \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{x}) \hat{\theta}(\mathbf{y}') \rangle + \Psi_0^*(\mathbf{y}) \Psi_0(\mathbf{y}') \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{x}) \hat{\theta}(\mathbf{x}') \rangle + \Psi_0^*(\mathbf{x}) \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{y}) \hat{\theta}(\mathbf{y}') \hat{\theta}(\mathbf{x}') \rangle + \Psi_0^*(\mathbf{y}) \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{x}) \hat{\theta}(\mathbf{y}') \hat{\theta}(\mathbf{x}') \rangle \quad (\text{A15})$$

$$+ \Psi_0(\mathbf{y}') \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{x}) \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{y}) \hat{\theta}(\mathbf{x}') \rangle + \Psi_0(\mathbf{x}') \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{x}) \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{y}) \hat{\theta}(\mathbf{y}') \rangle + \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{x}) \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{y}) \hat{\theta}(\mathbf{y}') \hat{\theta}(\mathbf{x}') \rangle \}. \quad (\text{A16})$$

We see that it can be factorized as follows:

$$\rho_2(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{y}', \mathbf{x}') = \sum_{i \leq j} \Phi_{ij}^*(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \Phi_{ij}(\mathbf{x}', \mathbf{y}') + \sum_{\nu} \Phi_{\nu}^*(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \Phi_{\nu}(\mathbf{x}', \mathbf{y}'), \quad (\text{A17})$$

where

$$\Phi_{00}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = \frac{\langle \hat{\psi}(\mathbf{x}) \hat{\psi}(\mathbf{y}) \rangle}{\sqrt{2}} = \frac{\Psi_0(\mathbf{x}) \Psi_0(\mathbf{y})}{\sqrt{2}} + \sum_{i \neq 0, j \neq 0} \frac{\langle \hat{a}_i \hat{a}_j \rangle}{\sqrt{2}} \psi_i(\mathbf{x}) \psi_j(\mathbf{y}), \quad (\text{A18})$$

$$\Phi_{0i}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = \frac{\Psi_0(\mathbf{x}) \Psi_i(\mathbf{y}) + \Psi_i(\mathbf{x}) \Psi_0(\mathbf{y})}{\sqrt{2}} + \sum_{j \neq 0, k \neq 0} \frac{\langle \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_j \hat{a}_k \rangle}{\sqrt{2} \langle \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i \rangle} \psi_j(\mathbf{x}) \psi_k(\mathbf{y}) \quad (\text{A19})$$

are, respectively, the pair wave function for two condensed atoms, and the pair wave function for a condensed atom and a noncondensed atom in the mode Ψ_i . There is no simple expression for either the pair wave function Φ_{ij} of two noncondensed atoms or the bound-pair wave functions Φ_{ν} , since these are contained in the term $\langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{x}) \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{y}) \hat{\theta}(\mathbf{y}') \hat{\theta}(\mathbf{x}') \rangle$. If we assume that there is no interaction between the noncondensed atoms (which is the case in the usual Hartree-Fock-Bogoliubov approach), we may use Wick's theorem to expand this term:

$$\langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{x}) \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{y}) \hat{\theta}(\mathbf{y}') \hat{\theta}(\mathbf{x}') \rangle = \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{x}) \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{y}) \rangle \langle \hat{\theta}(\mathbf{y}') \hat{\theta}(\mathbf{x}') \rangle + \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{x}) \hat{\theta}(\mathbf{x}') \rangle \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{y}) \hat{\theta}(\mathbf{y}') \rangle + \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{x}) \hat{\theta}(\mathbf{y}') \rangle \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{y}) \hat{\theta}(\mathbf{x}') \rangle. \quad (\text{A20})$$

This yields

$$\Phi_{00}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = \frac{\Psi_0(\mathbf{x}) \Psi_0(\mathbf{y})}{\sqrt{2}} + \sum_{i \neq 0, j \neq 0} \frac{\langle \hat{a}_i \hat{a}_j \rangle}{\sqrt{2}} \psi_i(\mathbf{x}) \psi_j(\mathbf{y}), \quad (\text{A21})$$

$$\Phi_{0i}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = \frac{\Psi_0(\mathbf{x}) \Psi_i(\mathbf{y}) + \Psi_i(\mathbf{x}) \Psi_0(\mathbf{y})}{\sqrt{2}}, \quad (\text{A22})$$

$$\Phi_{ii}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = \frac{\Psi_i(\mathbf{x}) \Psi_i(\mathbf{y})}{\sqrt{2}}, \quad (\text{A23})$$

$$\Phi_{ij}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = \frac{\Psi_i(\mathbf{x}) \Psi_j(\mathbf{y}) + \Psi_j(\mathbf{x}) \Psi_i(\mathbf{y})}{\sqrt{2}}, \quad (\text{A24})$$

$$\Phi_{\nu}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = 0. \quad (\text{A25})$$

As expected in this case, only the condensed pairs are correlated through the anomalous correlation $\langle \hat{\theta}(\mathbf{x}) \hat{\theta}(\mathbf{y}) \rangle = \sum_{i \neq 0, j \neq 0} \langle \hat{a}_i \hat{a}_j \rangle \psi_i(\mathbf{x}) \psi_j(\mathbf{y})$. This means the condensed atoms interact only with each other, while the noncondensed atoms are treated as an ideal gas. However, this is an approximation, since all the atoms feel the interaction. As we shall see, we actually need the correlations in order to regularize mean-field terms appearing in the equations of motion for the one and two-body modes.

3. Evolution of one-body modes

The evolution of the condensate mode is simply obtained by taking the average of the equation of motion for field operator (6). Doing this, we encounter the average $\langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{x}) \hat{\psi}(\mathbf{y}) \hat{\psi}(\mathbf{z}) \rangle$, which can be expanded and then factorized in terms of pair wave functions:

$$\langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{x}) \hat{\psi}(\mathbf{y}) \hat{\psi}(\mathbf{z}) \rangle = \Psi_0^*(\mathbf{x}) \langle \hat{\theta}(\mathbf{y}) \hat{\theta}(\mathbf{z}) \rangle + \Psi_0(\mathbf{y}) \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{x}) \hat{\theta}(\mathbf{z}) \rangle + \Psi_0(\mathbf{z}) \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{x}) \hat{\theta}(\mathbf{y}) \rangle + \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{x}) \hat{\theta}(\mathbf{y}) \hat{\theta}(\mathbf{z}) \rangle \quad (\text{A26})$$

$$= \sqrt{2} \sum_i \Psi_i^*(\mathbf{x}) \Phi_{0i}(\mathbf{y}, \mathbf{z}). \quad (\text{A27})$$

We also have to express the average $\langle \hat{\psi}_a^\dagger(\mathbf{y}) H_{int}^*(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \hat{\psi}_b(\mathbf{x}) \hat{\psi}_c(\mathbf{y}) \rangle$ which can be simplified to $\Psi_0^*(\mathbf{y}) H_{int}^*(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \Phi_M(\mathbf{x}, \mathbf{y})$ if we assume that the atoms of the upper channel are paired in a purely coherent field Φ_M . The equation of motion for the condensed mode is then

$$i\hbar \frac{d\Psi_0(\mathbf{x})}{dt} = \left(-\frac{\hbar^2 \nabla_x^2}{2m} + V(\mathbf{x}) \right) \Psi_0(\mathbf{x}) + \sqrt{2} \int d^3y \left(\sum_i \Psi_i^*(\mathbf{y}) \underline{U}_{aa}(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \Phi_{0i}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + \Psi_0^*(\mathbf{y}) \underline{H}_{int}^*(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \Phi_M(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \right). \quad (\text{A28})$$

We can then derive the evolution of the one-body density matrix for the noncondensed atoms $\rho_1'(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \equiv \langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{x}) \hat{\psi}(\mathbf{y}) \rangle - \Psi_0^*(\mathbf{x}) \Psi_0(\mathbf{y}) = \sum_{i \neq 0} \Psi_i^*(\mathbf{x}) \Psi_i(\mathbf{y})$. Using Eqs. (6), (A17), (21), and neglecting the pair wave functions Φ_{ij} for two noncondensed atoms, we get

$$i\hbar \frac{d\rho_1'(\mathbf{x}, \mathbf{y})}{dt} = \left\langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{x}) i\hbar \frac{d\hat{\psi}(\mathbf{y})}{dt} \right\rangle - \Psi_0^*(\mathbf{x}) i\hbar \frac{d\Psi_0(\mathbf{y})}{dt} - \{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\}^* = \left(-\frac{\hbar^2 \nabla_y^2}{2m} + V(\mathbf{y}) \right) \rho_1'(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + 2 \int d^3z \underline{U}_{aa}(\mathbf{y}-\mathbf{z}) \\ \times \left(\Phi_{00}'^*(\mathbf{x}, \mathbf{z}) \Phi_{00}(\mathbf{z}, \mathbf{y}) + \sum_{i \neq 0} \left(\frac{\Psi_0^*(\mathbf{z}) \Psi_i^*(\mathbf{x})}{\sqrt{2}} + \Phi_{0i}'(\mathbf{x}, \mathbf{z}) \right) \Phi_{0i}(\mathbf{z}, \mathbf{y}) \right) + 2 \int d^3z \Phi_{00}'^*(\mathbf{x}, \mathbf{z}) \underline{H}_{int}^*(\mathbf{y}, \mathbf{z}) \Phi_M(\mathbf{z}, \mathbf{y}) \\ - \{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\}^*. \quad (\text{A29})$$

In the expression above, the correlation terms $\Phi'(\mathbf{x}, \mathbf{z})$ vanish for $|\mathbf{y}-\mathbf{x}| \gg r_0$. So when \mathbf{x} and \mathbf{y} are separated by macroscopic distances, we have

$$i\hbar \frac{d\rho_1'(\mathbf{x}, \mathbf{y})}{dt} \approx \left(-\frac{\hbar^2 \nabla_y^2}{2m} + V(\mathbf{y}) \right) \rho_1'(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + 2 \int d^3z \underline{U}_{aa}(\mathbf{y}-\mathbf{z}) \sum_{i \neq 0} \frac{\Psi_0^*(\mathbf{z}) \Psi_i^*(\mathbf{x})}{\sqrt{2}} \Phi_{0i}(\mathbf{z}, \mathbf{y}) - \{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\}^*, \quad (\text{A30})$$

which can be written as

$$\sum_{i \neq 0} \Psi_i^*(\mathbf{x}) i\hbar \frac{d\Psi_i(\mathbf{y})}{dt} - \{\mathbf{x}-\mathbf{y}\}^* \approx \sum_{i \neq 0} \Psi_i^*(\mathbf{x}) \left[\left(-\frac{\hbar^2 \nabla_y^2}{2m} + V(\mathbf{y}) \right) \Psi_i(\mathbf{y}) + \sqrt{2} \int d^3z \underline{U}_{aa}(\mathbf{y}-\mathbf{z}) \Psi_0^*(\mathbf{z}) \Phi_{0i}(\mathbf{z}, \mathbf{y}) \right] - \{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\}^*. \quad (\text{A31})$$

It is clear from this expression that the evolution of the noncondensed mode Ψ_i is given by

$$i\hbar \frac{d\Psi_i(\mathbf{x})}{dt} \approx \left(-\frac{\hbar^2 \nabla_x^2}{2m} + V(\mathbf{x}) \right) \Psi_i(\mathbf{x}) \\ + \sqrt{2} \int d^3y \underline{U}_{aa}(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \Psi_0^*(\mathbf{y}) \Phi_{0i}(\mathbf{y}, \mathbf{x}) \quad (\text{A32})$$

as long as its wavelength is greater than r_0 . The interpretation of Eqs. (A28) and (A32) is straightforward. Every condensed atom evolving in the trap can collide with another

condensed atom or with any noncondensed atoms, and it can also associate with another condensed atom to form a molecule. Similarly, every noncondensed atom evolving in the trap can collide with any condensed atom (we neglected the collisions with other noncondensed atoms). Note that, within the approximation of a purely coherent molecular field, the noncondensed modes are not directly affected by the formation of molecules.

4. Evolution of the two-body modes

The equation of motion for the pair wave function of condensed atoms follows from Eqs. (A18) and (6):

$$i\hbar \frac{d\Phi_{00}}{dt}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = \frac{1}{\sqrt{2}} \left\langle \hat{\psi}(\mathbf{x}) i\hbar \frac{d\hat{\psi}}{dt}(\mathbf{y}) \right\rangle + \{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\} \quad (\text{A33})$$

$$= \left(-\frac{\hbar^2 (\nabla_x^2 + \nabla_y^2)}{2m} + V(\mathbf{x}) + V(\mathbf{y}) + \underline{U}_{aa}(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \right) \Phi_{00}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + \underline{H}_{int}^*(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \Phi_M(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \\ + \int d^3z \left(\underline{U}_{aa}(\mathbf{z}-\mathbf{y}) \sigma_2(\mathbf{z}, \mathbf{z}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) + \rho_1(\mathbf{z}, \mathbf{x}) \underline{H}_{int}^*(\mathbf{y}, \mathbf{z}) \Phi_M(\mathbf{y}, \mathbf{z}) + \{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\} \right), \quad (\text{A34})$$

with $\sigma_2(\mathbf{z}, \mathbf{z}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) = 1/\sqrt{2} \langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{z}) \hat{\psi}(\mathbf{z}) \hat{\psi}(\mathbf{x}) \hat{\psi}(\mathbf{y}) \rangle$. Using Eq. (A28), one can then deduce the equation of motion for the reduced pair wave function φ_{00} :

$$i\hbar \frac{d\varphi_{00}(\mathbf{x}, \mathbf{y})}{dt} = \left[-\frac{\hbar^2}{2m} (\nabla_x^2 + \nabla_y^2) + \underline{U}_{aa}(\mathbf{x}-\mathbf{y}) - \frac{\hbar^2}{m} (\nabla \ln \Psi_0(\mathbf{x}) \cdot \nabla_x + \nabla \ln \Psi_0(\mathbf{y}) \cdot \nabla_y) + \int d^3z \underline{U}_{aa}(\mathbf{z}-\mathbf{y}) F(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{z}) \right. \\ \left. + G(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{z}) \sqrt{2} H_{int}(\mathbf{x}, \mathbf{z}) \Phi_M(\mathbf{x}, \mathbf{z}) + \{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\} \right] \varphi_{00}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + \sqrt{2} H_{int}^*(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \frac{\Phi_M(\mathbf{x}, \mathbf{y})}{\Psi_0(\mathbf{x}) \Psi_0(\mathbf{y})}, \quad (\text{A35})$$

with

$$F(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{z}) = \frac{\langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{z}) \hat{\psi}(\mathbf{z}) \hat{\psi}(\mathbf{x}) \hat{\psi}(\mathbf{y}) \rangle}{\langle \hat{\psi}(\mathbf{x}) \hat{\psi}(\mathbf{y}) \rangle} - \frac{\langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{z}) \hat{\psi}(\mathbf{z}) \hat{\psi}(\mathbf{y}) \rangle}{\langle \hat{\psi}(\mathbf{y}) \rangle}$$

and

$$G(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{z}) = \frac{\langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{z}) \hat{\psi}(\mathbf{y}) \rangle}{\langle \hat{\psi}(\mathbf{x}) \hat{\psi}(\mathbf{y}) \rangle} - \frac{\langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{z}) \rangle}{\langle \hat{\psi}(\mathbf{x}) \rangle}.$$

These many-body terms are caused by the interaction with other atoms external to the pair considered. At sufficiently low densities, we can make the following two basic assumptions about the reduced pair wave function.

(H1) Its extent $\sim r_0$ is much smaller than the typical length scale of the condensate.

(H2) It is not much influenced by remaining many-body terms such as F and G . The many-body effects on the pair dynamics are thus only caused by the mean fields Ψ_i , through relations (A11) and (A12).

Within these assumptions, Eq. (A35) reduces to

$$i\hbar \frac{d\varphi_{00}(\mathbf{x}, \mathbf{y})}{dt} = \left(-\frac{\hbar^2}{2m} (\nabla_x^2 + \nabla_y^2) + \underline{U}_{aa}(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \right) \varphi_{00}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \\ + \sqrt{2} H_{int}^*(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \frac{\Phi_M(\mathbf{x}, \mathbf{y})}{\Psi_0(\mathbf{x}) \Psi_0(\mathbf{y})}. \quad (\text{A36})$$

The pair wave function Φ_{0i} for a condensed atom and a noncondensed atom in the mode i is given by $1/\sqrt{2} \int d^3z \Psi_i(\mathbf{z}) \langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{z}) \hat{\psi}(\mathbf{x}) \hat{\psi}(\mathbf{y}) \rangle$, following from Eq.

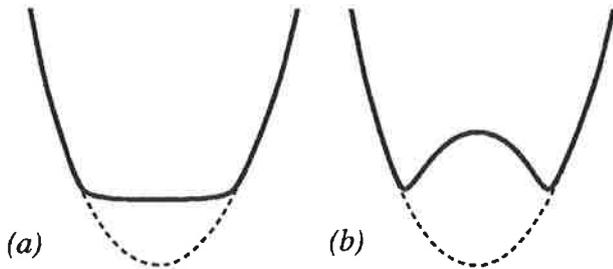


FIG. 4. Schematic representation of the effective potentials felt by (a) the condensed atoms, (b) the noncondensed atoms (for the first noncondensed modes), in the case of a positive scattering length.

(A27). Differentiating this expression and using assumptions (H1) and (H2), we find for the reduced pair wave function φ_{0i} :

$$i\hbar \frac{d\varphi_{0i}(\mathbf{x}, \mathbf{y})}{dt} = \left(-\frac{\hbar^2}{2m} (\nabla_x^2 + \nabla_y^2) + \underline{U}_{aa}(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \right) \varphi_{0i}(\mathbf{x}, \mathbf{y}). \quad (\text{A37})$$

Within our approximations, a pair involving a noncondensed atom is not directly affected by the coupling between the channels. This may indicate that one actually needs the quantum fluctuations of the molecular field for these modes.

Under assumption (H1), we can simplify the Eqs. (A28) and (A32) for the one-body modes:

$$i\hbar \frac{d\Psi_0}{dt} = \left(-\frac{\hbar^2 \nabla^2}{2m} + V + g_{00} |\Psi_0|^2 + \sum_{i \neq 0} 2g_{0i} |\Psi_i|^2 \right) \Psi_0 \\ + G_M \Psi_0^*, \quad (\text{A38})$$

$$i\hbar \frac{d\Psi_i}{dt} = \left(-\frac{\hbar^2 \nabla^2}{2m} + V + 2g_{0i} |\Psi_0|^2 \right) \Psi_i, \quad (\text{A39})$$

with

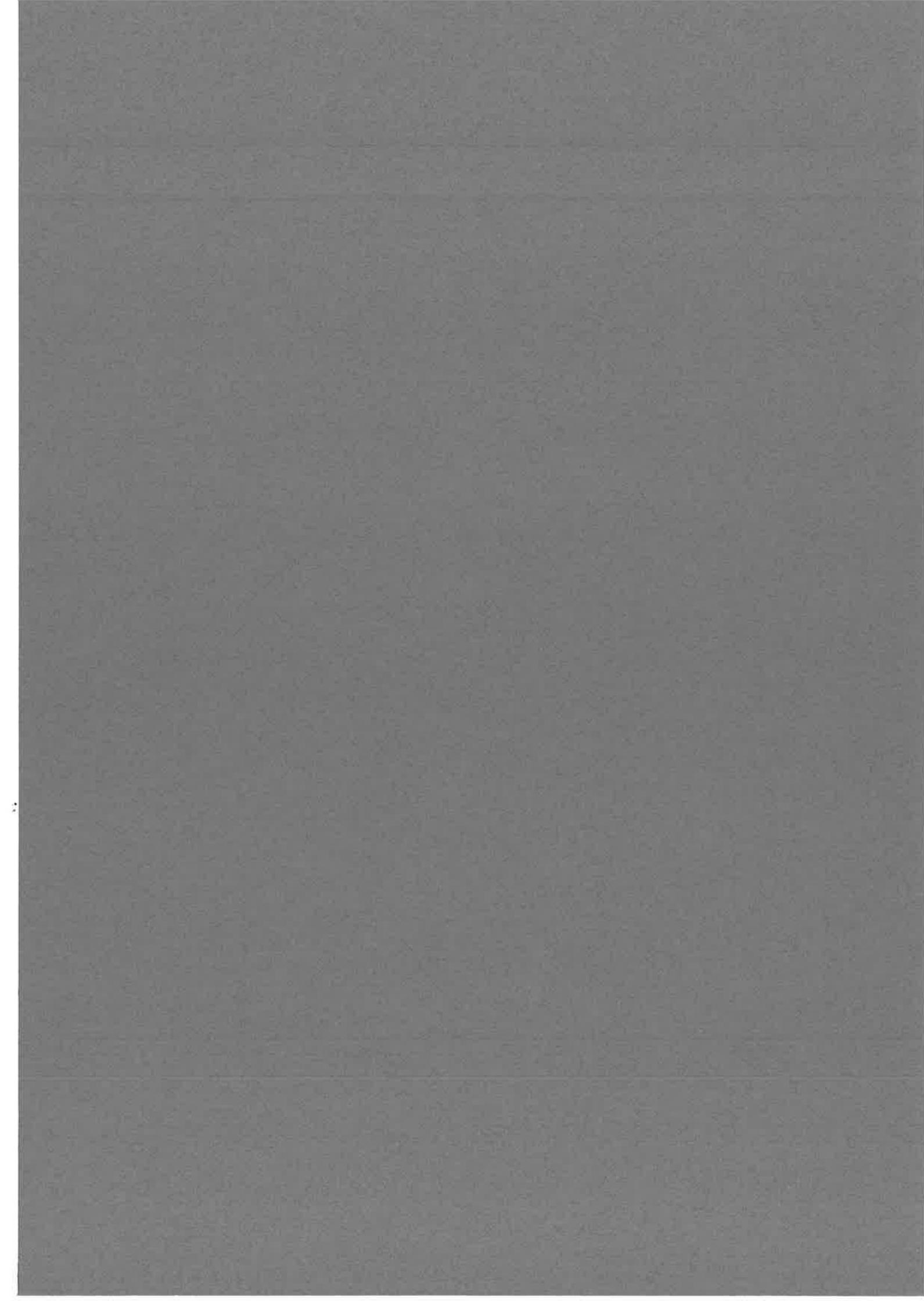
$$g_{00}(\mathbf{x}) = \int d^3y \underline{U}_{aa}(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \varphi_{00}(\mathbf{x}, \mathbf{y}), \quad (\text{A40})$$

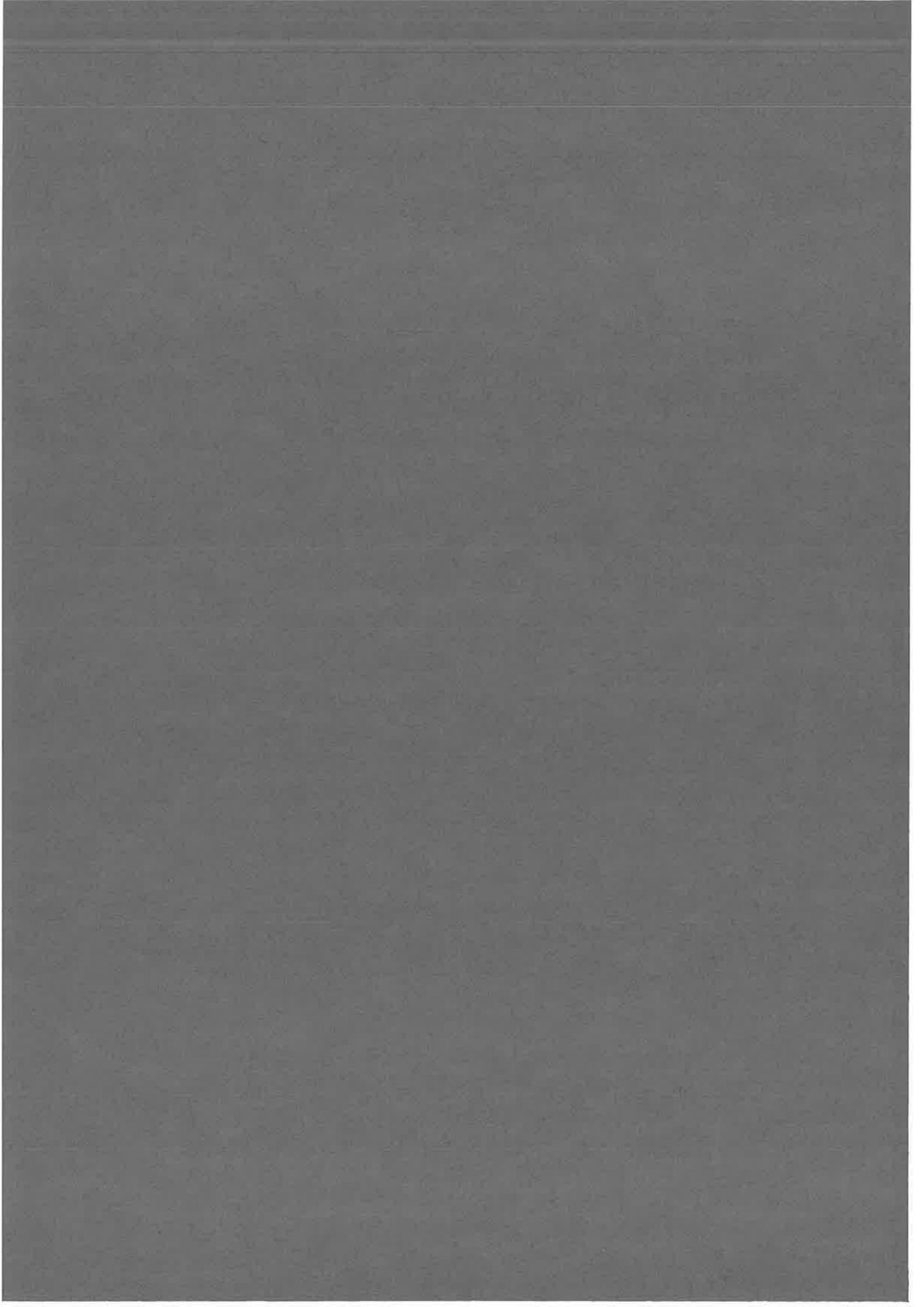
$$g_{0i}(\mathbf{x}) = \int d^3y \underline{U}_{aa}(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \varphi_{0i}(\mathbf{x}, \mathbf{y}), \quad (\text{A41})$$

$$G_M(\mathbf{x}) = \sqrt{2} \int d^3y \underline{H}_{int}^*(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \Phi_M(\mathbf{x}, \mathbf{y}). \quad (\text{A42})$$

These factors are proportional to scattering amplitudes. Note that the amplitudes are two times larger for pairs of condensed and noncondensed atoms; this comes from the fact that the atoms are in different states, so that symmetrization (A10) induces a factor of 2 relative to a pair of condensed atoms. As a consequence, the effective potentials felt by the condensed atoms and the noncondensed atoms are different. Figure 4 gives a schematic representation of these potentials at zero temperature equilibrium, where $g_{00} = g_{0i} = g = 4\pi\hbar^2 a/m$, with a positive scattering length a .

- [1] P. Julienne, K. Burnett, Y. Band, and W. Stwalley, *Phys. Rev. A* **58**, R797 (1998).
- [2] E. Timmermans, P. Tommasini, R. Côté, M. Hussein, and A. Kerman, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 2691 (1999).
- [3] J. Javanainen and M. Mackie, *Phys. Rev. A* **59**, R3186 (1999).
- [4] D. Heinzen, R. Wynar, P. Drummond, and K.V. Kheruntsyan, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 5029 (2000).
- [5] N. Claussen, E. Donley, S. Thompson, and C. Wieman, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 010401 (2002).
- [6] N. Claussen, E. Donley, S. Thompson, and C. Wieman, *Nature (London)* **417**, (2002).
- [7] C. McKenzie *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 120403 (2002).
- [8] P. Drummond, K. Kheruntsyan, D. Heinzen, and R.H. Wynar, *Phys. Rev. A* **65**, 063619 (2002).
- [9] M. Mackie, R. Kowalski, and J. Javanainen, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 3803 (2000).
- [10] J.J. Hope, M.K. Olsen, and L.I. Plimak, *Phys. Rev. A* **63**, 043603 (2001).
- [11] A. Fioretti, D. Comparat, A. Crubellier, O. Dulieu, F. Masnou-Seeuws, and P. Pillet, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 4402 (1998).
- [12] A.N. Nikolov, J.R. Ensher, E.E. Eyler, H. Wang, W.C. Stwalley, and P. Gould, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 246 (2000).
- [13] C. Gabbanini, A. Fioretti, A. Lucchesini, S. Gozzini, and M. Mazzoni, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 2814 (2000).
- [14] J.T. Bahns, W.C. Stwalley, and P.L. Gould, *Adv. At., Mol., Opt. Phys.* **42**, 171 (2000).
- [15] F. Masnou-Seeuws and P. Pillet, *Adv. At., Mol., Opt. Phys.* **47**, 53 (2001).
- [16] O. Dulieu and F. Masnou-Seeuws, *J. Opt. Soc. Am. B* **20**, 1083 (2003).
- [17] J. Vala, O. Dulieu, F. Masnou-Seeuws, P. Pillet, and R. Kosloff, *Phys. Rev. A* **63**, 013412 (2001).
- [18] E. Timmermans, P. Tommasini, M. Hussein, and A. Kerman, *Phys. Rep.* **315**, 199 (1999).
- [19] S. Kokkelmans and M. Holland, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 180401 (2002).
- [20] S. Kokkelmans, J. Milstein, M. Chiofalo, R. Walser, and M. Holland, *Phys. Rev. A* **65**, 053617 (2002).
- [21] A.Y. Cherny, e-print cond-mat/9807120v3.
- [22] A.Y. Cherny and A.A. Shanenko, *Phys. Rev. E* **62**, 1646 (2000).
- [23] T. Köhler, T. Gasenzer, and K. Burnett, *Phys. Rev. A* **67**, 013601 (2003).
- [24] M. Vatasescu, O. Dulieu, R. Kosloff, and F. Masnou-Seeuws, *Phys. Rev. A* **63**, 033407 (2001).
- [25] K. Huang, *Statistical Mechanics*, 2nd ed. (Wiley, New York, 1987).
- [26] E. Gross, *Nuovo Cimento* **20**, 454 (1961).
- [27] L. Pitaevskii, *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **40**, 646 (1961) [*Sov. Phys. JETP* **13**, 451 (1961)].
- [28] N. Proukakis, K. Burnett, and H. Stoof, *Phys. Rev. A* **57**, 1230 (1997).
- [29] C.J. Joachain, *Quantum Collision Theory* (North-Holland, Amsterdam, 1983), p. 118.
- [30] M. Kořtrun, M. Mackie, R. Côté, and J. Javanainen, *Phys. Rev. A* **62**, 063616 (2000).
- [31] J. Javanainen and M. Kořtrun, *Opt. Express* **5**, 188 (1999).
- [32] B. Cusack, T.J. Alexander, E.A. Ostrovskaya, and Y.S. Kivshar, *Phys. Rev. A* **65**, 013609 (2001).
- [33] J. Javanainen and M. Mackie, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 090403 (2002).
- [34] J.L. Bohn and P.S. Julienne, *Phys. Rev. A* **60**, 414 (1999).
- [35] P.O. Fedichev, Y. Kagan, G.V. Shlyapnikov, and J.T.M. Walraven, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 2913 (1996).
- [36] J.M. Gerton, B.J. Frew, and R.G. Hulet, *Phys. Rev. A* **64**, 053410 (2001).
- [37] H.T.C. Stoof, A.M.L. Janssen, J.M.V.A. Koelman, and B.J. Verhaar, *Phys. Rev. A* **39**, 3157 (1989).
- [38] J.W. Cooley, *Math. Comput.* **15**, 363 (1961).
- [39] V. Kokoouline, O. Dulieu, R. Kosloff, and F. Masnou-Seeuws, *J. Chem. Phys.* **110**, 9865 (1999).
- [40] M. Mackie, K.-A. Suominen, and J. Javanainen, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 180403 (2002).
- [41] A.J. Leggett, *Rev. Mod. Phys.* **73**, 307 (2001).





Chapitre 5

Méthodes numériques

Nous cherchons maintenant à résoudre numériquement les systèmes d'équations (4.47) et (4.52) donnés au chapitre 4. Nous allons par ailleurs être amené à calculer la longueur de diffusion de la théorie à deux corps. Nous donnons ici les détails des méthodes numériques choisies pour effectuer ces calculs.

5.1 Représentation spatiale

Pour rendre possibles les calculs, nous nous sommes placés dans le cas d'un *système uniforme*, et nous n'avons par ailleurs tenu compte que des ondes de paire *isotropes* (c'est-à-dire des composantes s , de moment cinétique nul). Les deux composantes des fonctions d'onde sur chaque voie ne dépendent alors que de la distance interatomique r . Nous les représentons comme un ensemble de valeurs complexes sur une grille de points allant de $r = 0$ à $r = L$, où L désigne la taille de la « boîte » où l'on confine les fonctions d'onde. En principe, les fonctions d'onde peuvent s'étendre jusqu'à des distances infinies. En les confinant dans une boîte pour des raisons numériques, on doit s'assurer que les résultats des calculs ne dépendent pas de la taille de la boîte. En pratique, nous avons utilisé des valeurs de L allant de quelques milliers à quelques centaines de milliers d'unités atomiques¹.

L'utilisation de potentiel réalistes conduit à des fonctions d'onde fortement oscillantes, en particulier à courtes distances. La raison est que ces potentiels ont un puits très profond comparé à l'énergie cinétique incidente de la paire d'atomes : ceux-ci sont donc accélérés fortement lorsqu'ils s'engagent dans le puits du potentiel. Pour représenter correctement ces oscillations, il faut utiliser un pas de grille très petit. Si ce pas de grille est constant, cela conduit à un très grand nombre de points de grille pour aller jusqu'à la limite de la grille : en général, le nombre de points obtenu est rédhibitoire pour effectuer les calculs numériquement.

En réalité, pour représenter correctement les fonctions d'onde, il suffit que l'ensemble des points de grille soit suffisant pour échantillonner leurs variations spatiales. Les oscillations à courte distance nécessitent un pas de grille très serré, mais les oscillations à plus grande distance sont correctement décrites avec un pas de grille beaucoup plus lâche. On utilise donc une technique standard (dite du “*mapping*”) qui consiste à adapter le pas de grille aux variations typiques des fonctions d'onde à chaque position. Cette technique a été appliquée dans la méthode de grille de Fourier développée au laboratoire Aimé Cotton [Kokoouline1999]. L'idée est simplement de considérer la fonction d'onde d'un point de vue semi-classique, et d'estimer que la variation de la fonction d'onde au point r est donnée par sa longueur d'onde de de Broglie locale :

$$\lambda(r) = \frac{h}{p(r)}$$

¹Une unité atomique correspond à un rayon de Bohr, soit $0,529177 \times 10^{-10}$ m.

où $p(r)$ est l'impulsion locale. Celle-ci peut être estimée de manière classique par conservation de l'énergie mécanique dans le potentiel :

$$\frac{p(r)^2}{2m} + U(r) = E$$

où E est l'énergie de la paire d'atome. On construit donc la grille de points r_i par incrémentation successives :

$$\begin{aligned} r_{i+1} &= r_i + \Delta r_i \\ \Delta r_i &= \beta \frac{h}{\sqrt{2m(E - U(r_i))}} \end{aligned}$$

où Δr_i est le pas de grille local. Comme nous considérons deux voies et que nous ne voulons définir qu'une grille pour les deux voies, nous calculons le pas de grille local pour les deux potentiels et retenons le plus petit des deux. Nous avons deux paramètres pour contrôler la densité de la grille : l'énergie E , qu'on peut augmenter pour densifier la grille à grande distance, et le paramètre β qui contrôle principalement la densité de la grille à courte distance. Dans nos calculs, nous prenons typiquement une énergie E de l'ordre de 10^{-6} hartrees et un coefficient β de l'ordre de 0,004.

5.2 Propagation en temps

Les équations que nous considérons sont *a priori* non-linéaires. Elles sont donc potentiellement difficiles à résoudre numériquement, et peuvent conduire à des instabilités numériques dues au non-linéarité. Néanmoins, elles redeviennent linéaires dans la limite où le condensat évolue très lentement par rapport aux fonctions d'onde de paire. N'ayant pas de guide particulier pour la résolution de ce type d'équation, nous avons choisi d'utiliser une méthode standard de propagation en temps, particulièrement simple à implémenter, appelée *méthode de Crank-Nicholson* [Press1996]. Cette méthode est indiquée pour la résolution d'équations aux dérivées partielles incluant un laplacien, telles qu'une équation de diffusion ou une équation de Schrödinger. L'évaluation du laplacien par différence finie conduit en effet à des instabilités numériques si la méthode de propagation en temps n'est pas adaptée. La méthode de Crank-Nicholson remédie à cette instabilité en évaluant le laplacien au temps t , ainsi qu'au temps $t + \Delta t$. On a donc une méthode implicite car elle ne donne pas directement la fonction d'onde à l'instant $t + \Delta t$ en fonction de la fonction d'onde à l'instant t . Pour l'obtenir, il faut inverser la relation implicite entre ces deux fonctions à chaque pas de temps.

5.2.1 Principe de la méthode

Supposons que l'on veuille résoudre une équation du type :

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \phi(x, t) = \mathcal{F}_x[\phi(x, t), t] \quad (5.1)$$

où ϕ est une quantité (éventuellement à plusieurs composantes) dépendant de la variable spatiale x et du temps t , et \mathcal{F}_x est un opérateur (pas forcément linéaire) agissant à un instant t sur les fonctions ϕ (vues comme des fonctions de l'espace des x), et dépendant par ailleurs explicitement du temps. À un instant t donné, posons :

$$\begin{aligned} \phi_0(x) &= \phi(x, t) \\ \phi_1(x) &= \phi(x, t + \Delta t) \end{aligned}$$

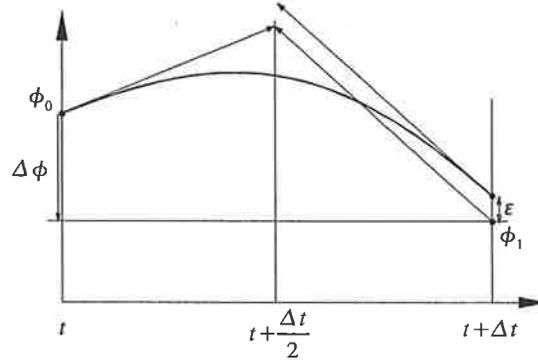


FIG. 5.1 – Illustration du principe de la méthode de Crank-Nicholson. On considère d'une part la fonction ϕ_0 à l'instant t , et d'autre part la fonction ϕ_1 à l'instant $t + \Delta t$ (que l'on cherche) et on extrapole linéairement vers l'instant milieu $t + \Delta t/2$ par un développement limité, en supposant que les extrapolations se rejoignent. Cela donne implicitement la fonction ϕ_1 cherchée. On a représenté l'erreur ε commise par rapport à la vraie fonction en $t + \Delta t$ (la courbe noire représente la solution exacte de l'équation aux dérivées partielles).

On suppose que ϕ_0 est connu, et on cherche ϕ_1 . Cela revient à chercher l'accroissement $\Delta\phi(x) = \phi_1(x) - \phi_0(x)$ entre ces deux fonctions.

En faisant un développement limité à l'ordre 1 de $\phi(x, t + \Delta t/2)$ au voisinage de t et au voisinage de $t + \Delta t$, on trouve :

$$\begin{aligned} \phi(x, t + \frac{\Delta t}{2}) &\approx \phi(x, t) + \frac{\Delta t}{2} \frac{\partial \phi}{\partial t}(x, t) = \phi_0(x) + \frac{\Delta t}{2} \frac{1}{i\hbar} \mathcal{F}_x[\phi_0(x), t] \\ \phi(x, t + \frac{\Delta t}{2}) &\approx \phi(x, t + \Delta t) - \frac{\Delta t}{2} \frac{\partial \phi}{\partial t}(x, t + \Delta t) = \phi_1(x) - \frac{\Delta t}{2} \frac{1}{i\hbar} \mathcal{F}_x[\phi_1(x), t + \Delta t] \end{aligned} \quad (5.2)$$

L'équivalence approchée entre les deux développements est représentée schématiquement sur la figure 5.1. On peut par ailleurs écrire :

$$\mathcal{F}_x[\phi_1(x), t + \Delta t] = \mathcal{F}_x[\phi_0(x) + \Delta\phi(x), t + \Delta t]$$

On peut alors faire un développement au premier ordre de la fonctionnelle \mathcal{F}_x au voisinage de ϕ_0 , en introduisant le gradient $\nabla \mathcal{F}_x$:

$$\mathcal{F}_x[\phi_1(x), t + \Delta t] \approx \mathcal{F}_x[\phi_0(x), t + \Delta t] + \nabla \mathcal{F}_x[\phi_0(x), t + \Delta t] \cdot \Delta\phi(x)$$

Dans un espace discrétisé, $\nabla \mathcal{F}_x$ correspond à une matrice jacobienne $\left[\frac{\partial \mathcal{F}_x[\phi(x_i)]}{\partial \phi(x_j)} \right]$. Pour un opérateur \mathcal{F}_x linéaire, l'opérateur $\nabla \mathcal{F}_x[\phi_0(x)] \cdot$ est simplement égal à l'opérateur \mathcal{F}_x lui-même. En identifiant les deux expressions (5.2), on obtient :

$$\phi_0(x) + \frac{\Delta t}{2} \frac{1}{i\hbar} \mathcal{F}_x[\phi_0(x), t] = \phi_1(x) - \frac{\Delta t}{2} \frac{1}{i\hbar} (\mathcal{F}_x[\phi_0(x), t + \Delta t] + \nabla \mathcal{F}_x[\phi_0(x), t + \Delta t] \cdot \Delta\phi(x))$$

d'où :

$$\left(\frac{i\hbar}{\Delta t} - \frac{1}{2} \nabla \mathcal{F}_x[\phi_0(x), t + \Delta t] \cdot \right) \Delta\phi(x) = \frac{\mathcal{F}_x[\phi_0(x), t + \Delta t] + \mathcal{F}_x[\phi_0(x), t]}{2} \quad (5.3)$$

on obtient donc l'accroissement $\Delta\phi(x)$ par la relation implicite (5.3), c'est-à-dire en inversant l'opérateur $\frac{i\hbar}{\Delta t} - \frac{1}{2}\nabla\mathcal{F}_x$. On en déduit alors la fonction ϕ_1 . En répétant ce schéma pour chaque pas de temps, on peut ainsi propager la fonction d'onde dans le temps de manière approchée selon l'équation (5.1). Toute la difficulté numérique est donc de résoudre le problème d'inversion à chaque pas de temps.

5.2.2 Avantages et inconvénients de la méthode

Les avantages de la méthode de Crank-Nicholson sont les suivants :

- Simplicité d'implémentation : on représente la fonction par des valeurs sur une grille et on évalue le laplacien par différences finies
- Conservation de la norme des fonctions d'onde

Les inconvénients de la méthode sont :

- Pas de contrôle sur la phase (la phase est en général mal conservée)
- Nécessité de propager avec des pas de temps très courts dans le cas d'équations non-linéaires.

5.2.3 Expressions dans le cas des équations utilisées

5.2.3.1 Équations dans l'approximation des cumulants au 1er ordre

Les équations couplées dans l'approximation des cumulants au 1er ordre (4.47) s'écrivent pour un système uniforme et en se restreignant aux ondes s (fonctions d'onde de paire isotropes) :

$$i\hbar\frac{d\Psi}{dt}(t) = \int d^3\mathbf{r} [U_1(r)(\Psi^2(t) + \Phi'(r,t)) + H_{21}^*(r,t)\sqrt{2}\Phi_m(r,t)] \Psi^*(t) \quad (5.4)$$

$$i\hbar\frac{d}{dt}\begin{bmatrix} \Phi'(r,t) \\ \sqrt{2}\Phi_m(r,t) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} H_{11}(r,t) & H_{21}^*(r,t) \\ H_{21}(r,t) & H_{22}(r,t) \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} \Phi'(r,t) \\ \sqrt{2}\Phi_m(r,t) \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} U_1(r,t) \\ H_{21}(r,t) \end{bmatrix} \Psi^2(t)$$

avec :

- l'hamiltonien pour le mouvement relatif dans la voie (1) : $H_{11}(r,t) = -\frac{\hbar^2}{m} \frac{1}{r} \frac{\partial^2}{\partial r^2} r \cdot + U_1(r)$
- l'hamiltonien pour le mouvement relatif dans la voie (2) : $H_{22}(r,t) = -\frac{\hbar^2}{m} \frac{1}{r} \frac{\partial^2}{\partial r^2} r \cdot + U_2(r) + \Delta$

Ces équations sont donc de la forme (5.1), avec $\phi = \begin{bmatrix} \Psi \\ \Phi' \\ \Phi_m \end{bmatrix}$. La relation de Crank-Nicholson (5.3) pour ces équations s'écrit de la manière suivante :

$$A(t)\Delta\Psi + B(t)\Delta\Psi^* = C(t) + D[\Delta\Phi', \Delta\Phi_m, t] \quad (5.5)$$

$$\begin{bmatrix} \frac{i\hbar}{\Delta t} - \frac{1}{2}H_{11}(r,t+\Delta t) & \frac{1}{2}H_{21}^*(r,t+\Delta t) \\ \frac{1}{2}H_{21}(r,t+\Delta t) & \frac{i\hbar}{\Delta t} - \frac{1}{2}H_{22}(r,t+\Delta t) \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} \Delta\Phi'(r) \\ \sqrt{2}\Delta\Phi_m(r) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} F_1(r,t) \\ F_2(r,t) \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} G_1(r,t) \\ G_2(r,t) \end{bmatrix} \Delta\Psi \quad (5.6)$$

avec :

$$\begin{aligned}
A(t) &= \left[\frac{i\hbar}{\Delta t} - |\Psi|^2 \int U_1(r, t + \Delta t) \Phi'(r, t) d^3\mathbf{r} \right] \\
B(t) &= -\frac{1}{2} \int d^3\mathbf{r} \left[U_1(r, t + \Delta t) (\Psi^2(t) + \Phi'(t)) + H_{21}(r, t + \Delta t) \sqrt{2} \Phi_m(r, t) \right] \\
C(t) &= \int d^3\mathbf{r} \left[\frac{U_1(r, t) + U_1(r, t + \Delta t)}{2} (\Psi^2(t) + \Phi'(r, t)) + \frac{H_{21}^*(r, t) + H_{21}^*(r, t + \Delta t)}{2} \sqrt{2} \Phi_m(r, t) \right] \\
D[\Delta\Phi', \Delta\Phi_m, t] &= \frac{1}{2} \int d^3\mathbf{r} \left[U_1(r, t + \Delta t) \Delta\Phi'(r) + H_{21}(r, t + \Delta t) \sqrt{2} \Delta\Phi_m(r) \right] \Psi^* \\
\begin{bmatrix} F_1(r, t) \\ F_2(r, t) \end{bmatrix} &= \begin{bmatrix} \frac{H_{11}(r, t) + H_{11}(r, t + \Delta t)}{2} & \frac{H_{21}^*(r, t) + H_{21}^*(r, t + \Delta t)}{2} \\ \frac{H_{21}(r, t) + H_{21}(r, t + \Delta t)}{2} & \frac{H_{22}(r, t) + H_{22}(r, t + \Delta t)}{2} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} \Phi'(r, t) \\ \sqrt{2} \Phi_m(r, t) \end{bmatrix} \\
\begin{bmatrix} G_1(r, t) \\ G_2(r, t) \end{bmatrix} &= \begin{bmatrix} U_1(r, t + \Delta t) \\ H_{21}(r, t + \Delta t) \end{bmatrix} \Psi(t)
\end{aligned}$$

Inversons dans un premier temps la relation (5.6) :

$$\begin{bmatrix} \Delta\Phi'(r) \\ \sqrt{2} \Delta\Phi_m(r) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \tilde{F}_1(r, t) \\ \tilde{F}_2(r, t) \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} \tilde{G}_1(r, t) \\ \tilde{G}_2(r, t) \end{bmatrix} \Delta\Psi \quad (5.7)$$

On peut alors injecter cette solution dans l'équation (5.5), et la fonctionnelle D étant linéaire, il vient :

$$\underbrace{(A(t) - D[\tilde{G}_1, \tilde{G}_2, t])}_{\tilde{A}(t)} \Delta\Psi + B(t) \Delta\Psi^* = \underbrace{C(t) + D[\tilde{F}_1, \tilde{F}_2, t]}_{\tilde{C}(t)}$$

On a donc :

$$\Delta\Psi = \frac{\tilde{A}^*(t) \tilde{C}(t) - B(t) \tilde{C}^*(t)}{|A(t)|^2 - |B(t)|^2}$$

Connaissant $\Delta\Psi$, on peut alors le réinjecter dans la relation (5.7) pour déterminer $\Delta\Phi'(r)$ et $\Delta\Phi_m(r)$.

5.2.3.2 Équation dans l'approximation de la paire réduite

Les équations couplées dans l'approximation de la paire réduite pour un système uniforme et en se restreignant aux ondes s (fonctions d'onde de paire isotropes) :

$$\begin{aligned}
i\hbar \frac{d\Psi}{dt}(t) &= \int d^3\mathbf{r} \left[U_1(r) \Psi^2(t) \varphi(r, t) + H_{21}^*(r, t) \sqrt{2} \Phi_m(r, t) \right] \Psi^*(t) \\
i\hbar \frac{d}{dt} \begin{bmatrix} \varphi(r, t) \\ \sqrt{2} \Phi_m(r, t) \end{bmatrix} &= \begin{bmatrix} H_{11}(r, t) & H_{21}^*(r, t) \Psi^{-2}(t) \\ H_{21}(r, t) \Psi^2(t) & H_{22}(r, t) \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} \varphi(r, t) \\ \sqrt{2} \Phi_m(r, t) \end{bmatrix}
\end{aligned} \quad (5.8)$$

où l'on a écrit les équations avec la fonction de paire réduite φ . Ce n'est pas la forme la plus esthétique de ces équations, car la paire réduite φ n'a pas la même normalisation que Φ_m , mais c'est la forme la plus simple à résoudre numériquement. La relation de Crank-Nicholson (5.3) pour ces équations s'écrit de la manière suivante :

$$A(t) \Delta\Psi + B(t) \Delta\Psi^* = C(t) + D[\Delta\Phi', \Delta\Phi_m, t] \quad (5.9)$$

$$\begin{bmatrix} \frac{i\hbar}{\Delta t} - \frac{1}{2} H_{11}(r, t + \Delta t) & \frac{1}{2} H_{21}^*(r, t + \Delta t) \Psi^{-2}(t) \\ \frac{1}{2} H_{21}(r, t + \Delta t) \Psi^2(t) & \frac{i\hbar}{\Delta t} - \frac{1}{2} H_{22}(r, t + \Delta t) \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} \Delta\varphi(r) \\ \sqrt{2} \Delta\Phi_m(r) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} F_1(r, t) \\ F_2(r, t) \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} G_1(r, t) \\ G_2(r, t) \end{bmatrix} \Delta\Psi \quad (5.10)$$

avec :

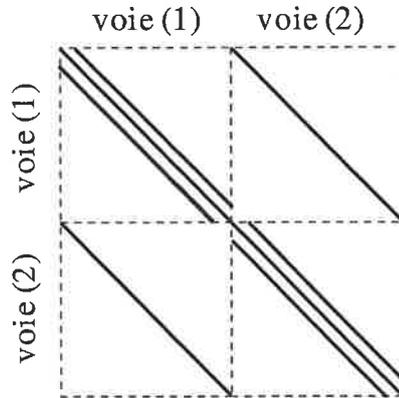
$$\begin{aligned}
A(t) &= \left[\frac{i\hbar}{\Delta t} - |\Psi|^2 \int U_1(r, t + \Delta t) \Phi'(r, t) d^3\mathbf{r} \right] \\
B(t) &= -\frac{1}{2} \int d^3\mathbf{r} \left[U_1(r, t + \Delta t) \Psi^2(t) \varphi(r, t) + H_{21}(r, t + \Delta t) \sqrt{2} \Phi_m(r, t) \right] \\
C(t) &= \int d^3\mathbf{r} \left[\frac{U_1(r, t) + U_1(r, t + \Delta t)}{2} \Psi^2(t) \varphi(r, t) + \frac{H_{21}^*(r, t) + H_{21}^*(r, t + \Delta t)}{2} \sqrt{2} \Phi_m(r, t) \right] \Psi^*(t) \\
D[\Delta\rho, \Delta\Phi_m, t] &= \frac{1}{2} \int d^3\mathbf{r} \left[U_1(r, t + \Delta t) \Psi^2(t) \Delta\rho(r) + H_{21}(r, t + \Delta t) \sqrt{2} \Delta\Phi_m(r) \right] \Psi^* \\
\begin{bmatrix} F_1(r, t) \\ F_2(r, t) \end{bmatrix} &= \begin{bmatrix} \frac{H_{11}(r, t) + H_{11}(r, t + \Delta t)}{2} & \frac{H_{21}^*(r, t) + H_{21}^*(r, t + \Delta t)}{2} \Psi^{-2}(t) \\ \frac{H_{21}(r, t) + H_{21}(r, t + \Delta t)}{2} \Psi^2(t) & \frac{H_{22}(r, t) + H_{22}(r, t + \Delta t)}{2} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} \varphi(r, t) \\ \sqrt{2} \Phi_m(r, t) \end{bmatrix} \\
\begin{bmatrix} G_1(r, t) \\ G_2(r, t) \end{bmatrix} &= \begin{bmatrix} H_{21}^*(r, t + \Delta t) \Psi^{-2}(t) \sqrt{2} \Phi_m(r, t) \\ H_{21}(r, t + \Delta t) \Psi^2(t) \varphi(r, t) \end{bmatrix} \Psi^{-1}(t)
\end{aligned}$$

On est donc ramené au même type de problème que précédemment.

5.2.4 Implémentation numérique

Le schéma de Crank-Nicholson a été implémenté en FORTRAN 90, et a été exécuté sur différents types de machines *Unix* et *Linux*, dont un PC biprocesseur *Intel Xeon 3,06 GHz*. Les relations de Crank-Nicholson ont la même structure pour les deux types d'équations. On a donc utilisé les mêmes types de sous-routines, en changeant les valeurs de A , B , C , D , F_1 , F_2 , G_1 , G_2 .

Pour résoudre le problème d'inversion (5.5) ou (5.6), nous avons utilisé une sous-routine LAPACK de résolution d'un système linéaire. Une fois discrétisée sur la grille, la matrice impliquée dans ce système linéaire est une matrice $2N \times 2N$ (où N est le nombre de points de grille). Elle a la forme suivante (en représentant les coefficients non-nuls par des lignes pleines) :

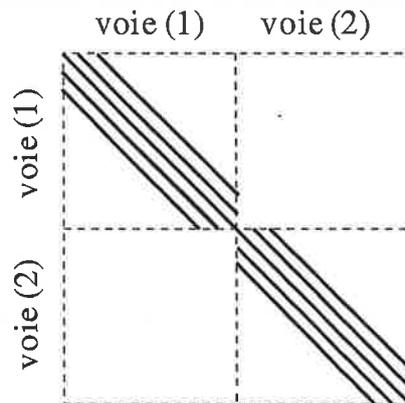


Les deux blocs diagonaux sont associés aux hamiltoniens H_{11} et H_{22} des deux voies, alors que les deux blocs non-diagonaux sont associés au terme de couplage entre les voies. Les blocs diagonaux sont des matrices tridiagonales, du fait de la discrétisation par différences finies des laplaciens contenues dans l'énergie cinétique :

$$\nabla_r \phi = \frac{1}{r} \frac{\partial^2}{\partial r^2} (r \cdot \phi) \approx \frac{1}{r_i} \frac{\frac{r_{i+1} \phi_{i+1} - r_i \phi_i}{r_{i+1} - r_i} - \frac{r_i \phi_i - r_{i-1} \phi_{i-1}}{r_i - r_{i-1}}}{2} = \alpha_{i-1} \phi_{i-1} + \alpha_i \phi_i + \alpha_{i+1} \phi_{i+1}$$

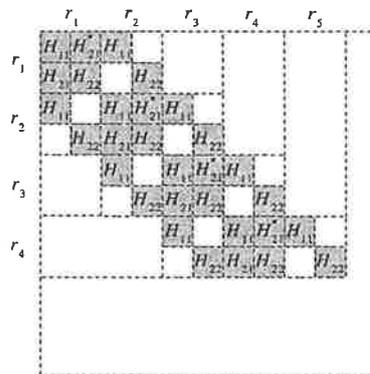
Les blocs non-diagonaux sont des matrices diagonales, car le couplage entre les voies est local.

Dans un premier temps, nous avons cherché à simplifier l'inversion en diagonalisant analytiquement cette matrice bloc 2×2 , pour obtenir deux systèmes linéaires indépendants associés à des matrices pentadiagonales $N \times N$:



Les deux systèmes sont alors résolus par la routine ZGBSV de LAPACK pour les matrices bande-diagonales. Les expérimentations numériques ont montré que ce choix était mauvais : pour obtenir des résultats corrects, en particulier la longueur de diffusion, on a dû effectuer les calculs en quadruple précision, ce qui augmente notablement la durée des calculs. Les problèmes semblent être dus à un mauvais conditionnement des matrices pentadiagonales.

Finalement, nous avons simplement réagencé les coefficients de la matrice en inversant les indices correspondant aux voies avec ceux correspondant aux positions sur la grille. On obtient une matrice pentadiagonale $2N \times 2N$ de la forme :



On peut également inverser cette matrice avec la routine ZGBSV. Bien que la taille de cette matrice soit deux fois plus grande, son inversion pose beaucoup moins de problème numériquement, et l'on a pu retrouver des résultats corrects en effectuant les calculs uniquement en double précision. Les temps de calculs sont alors plus raisonnables.

5.2.5 Amélioration de la méthode numérique

Nous avons envisagé avec Christiane Koch, postdoctorante au laboratoire Aimé Cotton, d'utiliser des méthodes numériques plus élaborées que la méthode de Crank-Nicholson pour résoudre les équations. La représentation spatiale des fonctions d'onde peut être améliorée en utilisant une base de fonctions d'onde (par exemple une base de Fourier) ; on a en général besoin de moins de points de grille pour représenter les fonctions. La propagation en temps peut aussi être améliorée en développant l'opérateur d'évolution sur une base de fonctions comme des polynômes de Chebychev. L'implémentation de ces méthodes numériques reste encore à l'état de projet actuellement.

5.3 Recherche d'états stationnaires

5.3.1 États stationnaires du problème à deux atomes - propagation en temps imaginaire

Lorsqu'on fait abstraction de l'évolution de la fonction d'onde du condensat Ψ dans les équations dynamiques dans l'approximation de la paire réduite (5.8), on retrouve les équations dynamiques couplées pour deux atomes :

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \begin{bmatrix} \phi_1(r, t) \\ \phi_2(r, t) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} H_{11}(r, t) & H_{21}^*(r, t) \\ H_{21}(r, t) & H_{22}(r, t) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \phi_1(r, t) \\ \phi_2(r, t) \end{bmatrix}$$

On peut alors utiliser ces équations dynamiques pour obtenir certains états propres du problème à deux atomes, en utilisant la méthode de la *propagation en temps imaginaire*.

5.3.1.1 Principe de la méthode de propagation en temps imaginaire

Cette méthode a été décrite dans la référence [Kosloff1994]. Considérons un hamiltonien \hat{H} hermitique et indépendant du temps. Toute solution de l'équation de Schrödinger dépendant du temps peut s'écrire sur la base des états propres de \hat{H} :

$$|\phi(t)\rangle = \sum_i c_i(t) |\phi_i\rangle = \sum_i c_i(0) e^{-\frac{i}{\hbar} E_i t} |\phi_i\rangle$$

où les coefficients $c_i(t)$ correspondent aux composantes de l'état $|\phi(t)\rangle$ dans la base des états propres, et les E_i sont les énergies propres réelles. Si l'on propage maintenant l'équation de Schrödinger en *temps imaginaire* $\tau = -it$, les exponentielles imaginaires deviennent des exponentielles réelles :

$$|\phi(t)\rangle = \sum_i c_i(0) e^{-\frac{1}{\hbar} E_i t} |\phi_i\rangle \quad (5.11)$$

Par conséquent, la norme de la fonction d'onde n'est plus conservée, et sa composante sur l'état propre de plus faible énergie devient prépondérante au fur et à mesure que le temps passe. En partant d'un état quelconque (par exemple une fonction d'onde gaussienne) et en propageant sur un temps suffisamment long, l'état converge exponentiellement vers l'état propre de plus basse énergie. C'est donc une méthode pour obtenir l'état fondamental d'un système.

Si l'on veut calculer un autre état, on peut appliquer cette méthode en se restreignant à un sous-espace : il faut appliquer un *filtre en énergie* qui permet d'éliminer les composantes sur les états propres d'énergie plus basses [Kosloff1994]. On peut par exemple remplacer l'hamiltonien \hat{H} par $(\hat{H} - E)^2$, où E est une énergie proche de celle de l'état souhaité. Cette méthode a été utilisée dans la thèse de Mihaela Vatasescu pour calculer des états liés.

5.3.1.2 Propagation en temps imaginaire avec le schéma de Crank-Nicholson

Dans notre cas, il s'est avéré que la méthode de propagation de Crank-Nicholson introduit naturellement un filtre en énergie. En effet, si l'on reprend le schéma de Crank-Nicholson (5.3) pour un opérateur $\mathcal{F} = \hat{H}$ linéaire indépendant du temps, on obtient :

$$\left(\frac{i\hbar}{\Delta t} - \frac{1}{2} \hat{H} \right) \Delta\phi = \hat{H} |\phi(t)\rangle$$

d'où :

$$|\phi(t + \Delta t)\rangle = \frac{1 - \frac{i\Delta t}{2\hbar} \hat{H}}{1 + \frac{i\Delta t}{2\hbar} \hat{H}} |\phi(t)\rangle$$

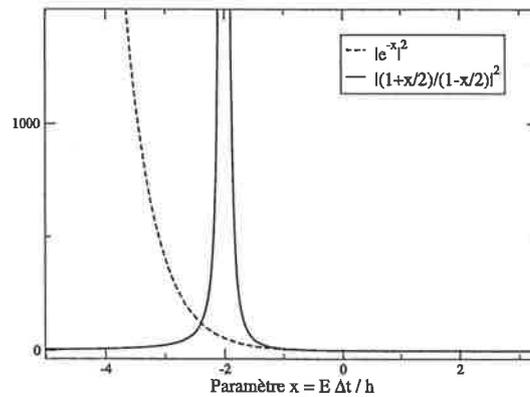


FIG. 5.2 – Comparaison du filtrage des énergies par propagation en temps imaginaire : propagation exacte (en tireté) et propagation par le schéma de Crank-Nicholson (en trait plein).

Pour les petits Δt , on voit que l'opérateur d'évolution discrète de Crank-Nicholson $\frac{1 - \frac{i\Delta t}{2\hbar}\hat{H}}{1 + \frac{i\Delta t}{2\hbar}\hat{H}}$ s'approche bien de l'opérateur d'évolution exact $e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}\Delta t}$. Lorsqu'on propage en temps imaginaire $\tau = -it$, l'évolution de l'état est donnée par :

$$|\phi(t + \Delta t)\rangle = \frac{1 - \frac{\Delta t}{2\hbar}\hat{H}}{1 + \frac{\Delta t}{2\hbar}\hat{H}}|\phi(t)\rangle = \sum_i c_i(t) \frac{1 - \frac{\Delta t}{2\hbar}E_i}{1 + \frac{\Delta t}{2\hbar}E_i}|\phi_i\rangle$$

à comparer avec l'évolution exacte :

$$|\phi(t + \Delta t)\rangle = e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}\Delta t}|\phi(t)\rangle = \sum_i c_i(t) e^{-\frac{i}{\hbar}E_i\Delta t}|\phi_i\rangle$$

Ici encore, on retrouve l'évolution exacte (5.11) pour les petits Δt . Par contre elle diffère notablement pour les Δt plus grand : la figure 5.2 montre la norme au carré du facteur exponentiel de l'évolution exacte et celle du facteur de Crank-Nicholson : on voit qu'en propageant avec le schéma de Crank-Nicholson pour des pas de temps finis Δt (pas nécessairement petits), on amplifie très fortement la composante sur les états propres d'énergie proche de $-2\hbar/\Delta t$. Pour amplifier de manière sélective l'état propre d'énergie E_i , il faut donc choisir un pas de temps proche de :

$$\Delta t \approx -\frac{2\hbar}{E_i}$$

Le filtrage est efficace si l'on arrive à extraire uniquement cet état propre. Pour cela, il faut que celui-ci soit séparé d'une énergie plus grande que $\hbar/\Delta t$ des autres états voisins :

$$|E_{i+1} - E_i| > \frac{\hbar}{|\Delta t|} \sim \frac{|E_i|}{2}$$

Si ce n'est pas le cas, il suffit simplement de décaler l'origine des énergies en ajoutant une énergie supplémentaire E à l'hamiltonien : l'énergie de l'état recherché devient alors $E + E_i$, mais la différence entre les énergies voisines ne change pas. On a ainsi trouvé une méthode générale assez efficace pour obtenir un état propre de l'hamiltonien.

5.3.1.3 Avantages et inconvénients de la propagation en temps imaginaire avec Crank-Nicholson

Les avantages de la méthode sont les suivants :

- Elle permet en principe de trouver n'importe quel état propre si on a une bonne idée de son énergie
- la convergence est très rapide : dans les calculs traités, on a souvent une très bonne précision en 4 ou 5 pas de temps
- la même routine de propagation nous a permis d'obtenir tantôt la dynamique d'évolution, tantôt les états stationnaires simplement en changeant le temps en temps imaginaire dans les paramètres d'entrée de la routine. On est ainsi assuré que les états propres obtenus sont bien stationnaires lorsqu'on les propage en temps réel, puisqu'on utilise la même routine de propagation. Il faudrait s'en assurer explicitement si l'on obtenait les états propres à partir d'une autre méthode de calcul.
- la méthode est en principe intéressante pour les problèmes dans de grands espaces où la diagonalisation totale de l'hamiltonien est impossible (typiquement un système couplé avec un grand nombre de voie).

Les inconvénients de la méthode sont les suivants :

- Elle ne permet de trouver que des états discrets et non les états d'un continuum, contrairement à la méthode de Numerov.
- Elle ne donne qu'un seul état propre. L'obtention d'un spectre est laborieuse car il faut balayer en énergie pour repérer les états un par un.

5.3.2 États stationnaires des équations des cumulants au premier ordre

Les états stationnaires des équations des cumulants au premier ordre (5.4) s'obtiennent en posant :

$$\begin{aligned} \Psi(t) &= \bar{\Psi} e^{i\frac{\mu}{\hbar}t} \\ \begin{bmatrix} \Phi(r, t) \\ \Phi_m(r, t) \end{bmatrix} &= \begin{bmatrix} \bar{\Phi}(r) \\ \bar{\Phi}_m(r) \end{bmatrix} e^{i\frac{2\mu}{\hbar}t} \end{aligned}$$

On a alors :

$$\mu = \int d^3\mathbf{r} \left[U_1(r)\bar{\Phi}(r) + H_{21}^*(r, t)\sqrt{2}\bar{\Phi}_m(r) \right] \quad (5.12)$$

$$0 = \begin{bmatrix} H_{11} - 2\mu & H_{21}^* \\ H_{21} & H_{22} - 2\mu \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \bar{\Phi}(r) \\ \bar{\Phi}_m(r) \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} 2\mu\bar{\Psi}^2 \\ 0 \end{bmatrix} \quad (5.13)$$

Pour $\mu = 0$, les fonctions $\bar{\Phi}$ et $\bar{\Phi}_m$ sont simplement les solutions $\phi_1^{(0)}$ et $\phi_2^{(0)}$ du problème à deux atomes à énergie nulle (2.4), normalisées à $\mathcal{N} = \Psi^2$:

$$\begin{bmatrix} \bar{\Phi}(r) \\ \bar{\Phi}_m(r) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \phi_1^{(0)}(r) \\ \phi_2^{(0)}(r) \end{bmatrix}, \quad \mathcal{N} = \Psi^2 \quad (5.14)$$

Pour $\mu \neq 0$, la solution satisfaisant la condition $\bar{\Phi}(r) \xrightarrow[r \rightarrow \infty]{} \Psi^2$ est donné par :

$$\begin{bmatrix} \bar{\Phi}(r) \\ \bar{\Phi}_m(r) \end{bmatrix} = - \begin{bmatrix} H_{11} - 2\mu & H_{21}^* \\ H_{21} & H_{22} - 2\mu \end{bmatrix}^{-1} \begin{bmatrix} 2\mu\bar{\Psi}^2 \\ 0 \end{bmatrix} \quad (5.15)$$

On vérifie que pour $\mu \rightarrow 0$, l'expression ci-dessus tend bien vers l'état de diffusion à énergie nulle (5.14). Mais le potentiel chimique est en général non-négligeable.

Pour trouver une solution des équations (5.12-5.13), on procède de manière itérative. On part d'une valeur estimée du potentiel chimique μ (à partir de la densité du système et d'une estimation de la longueur de diffusion). On calcule alors numériquement la solution (5.14) en inversant simplement le système matriciel avec des routines similaires à celles utilisées pour le problème d'inversion dans le schéma de Crank-Nicholson. La solution obtenue est utilisée dans l'équation (5.12) pour obtenir une nouvelle valeur du potentiel chimique. On réitère le calcul jusqu'à obtenir une convergence du potentiel chimique. On peut également se fixer un potentiel chimique raisonnable, et en déduire la densité du système (qui doit être proche de la valeur physique attendue).

Comme on l'a déjà évoqué au paragraphe, on obtient des divergences non-physiques pour des valeurs du potentiel chimique proches des niveaux d'énergie de la boîte numérique. On a donné une illustration de ces divergences sur la figure 5.3. En revanche, entre ces divergences, la valeur de la longueur de diffusion de champ moyen a_M est proche de la longueur de diffusion a du problème à deux corps. On s'arrange donc en pratique pour que l'état stationnaire initial se situe entre deux divergences.

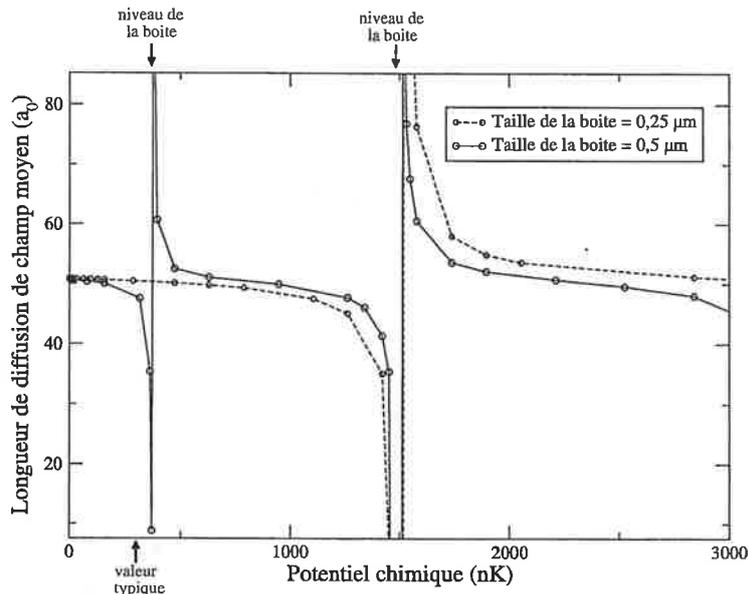


FIG. 5.3 – Variation de la longueur de diffusion de champ moyen a_M (en l'absence de couplage) pour l'état stationnaire des équations des cumulants au premier ordre, en fonction du potentiel chimique μ calculé pour des atomes de sodium dans l'état fondamental. Les calculs présentés sur ce graphe correspondent à des tailles de « boîte » (grille numérique) de 0,25 et 0,5 μm . Numériquement, on a une divergence non-physique de la longueur de diffusion lorsque le potentiel chimique approche un des niveaux de la boîte (on a indiqué en haut du graphe les deux premiers niveaux d'une boîte de 0,5 μm). Pour les calculs présentés dans la suite, nous avons pris typiquement des boîtes d'une dizaine de micromètres. Les divergences sont alors beaucoup plus serrées. En bas du graphe, on a indiqué une valeur typique du potentiel chimique, correspondant à l'expérience de McKenzie *et al.*

5.3.3 États stationnaires des équations dans l'approximation de la paire réduite

Nous avons vu au paragraphe 4.3.1.3 que les états stationnaires des équations dans l'approximation de la paire réduite sont simplement les états de diffusion à énergie nulle pour deux atomes

normalisés à $\mathcal{N} = \Psi^2$, avec la particularité que le potentiel de la voie (2) est décalé de deux fois le potentiel de champ moyen. Dans le cas uniforme, ce potentiel s'identifie au potentiel chimique μ . Pour trouver des états stationnaires numériquement, on procède de la manière suivante. On se fixe un certain couplage et un certain désaccord Δ entre les deux potentiels. On calcule les fonctions d'onde pour deux atomes diffusant à énergie nulle par la méthode de la propagation en temps imaginaire. En fait, on ne peut pas trouver d'état stationnaire d'énergie strictement nulle, à cause de la taille finie de la grille numérique : on cherche donc « le premier état de la boîte », c'est-à-dire le premier état quasi-libre du continuum discrétisé. Pour une taille de grille suffisamment grande, cet état est une bonne approximation de l'état d'énergie nulle. On l'utilise alors pour calculer la longueur de diffusion de champ moyen et le potentiel de champ moyen (4.34). On en déduit la valeur du potentiel chimique μ . Pour des solutions stationnaires des équations dans l'approximation de la paire réduite, ce potentiel chimique est implicitement contenu dans la valeur Δ du désaccord pris entre les potentiels. On retranche 2μ à Δ pour obtenir le véritable désaccord entre les potentiels dans un condensat.

5.4 Calcul de la longueur de diffusion

Nous avons imaginé trois méthodes différentes pour calculer la longueur de diffusion à partir des résultats numériques pour les états stationnaires du problème à deux atomes. Nous considérons ici le premier état du quasi-continuum (premier état « de la boîte »). Pour une taille de boîte suffisamment grande, la fonction d'onde radiale de cet état présente toujours un grand lobe sinusoidal. Ce lobe n'est pas strictement sinusoidal, il ne tend vers un sinus qu'à grande distance :

$$F(r) \xrightarrow{r \rightarrow \infty} \sin(kr + \delta) \quad (5.16)$$

À courte distance, le lobe est affecté par l'interaction.

5.4.1 Méthode du maximum

La première méthode consiste à repérer la position r_{\max} maximum du lobe sinusoidal. En supposant que la moitié droite de ce lobe est très proche d'un sinus, on peut extrapoler le sinus correspondant vers la gauche. D'après la formule (5.16), l'intersection de ce sinus avec l'axe des r correspond à :

$$-\frac{\delta}{k}$$

qui tend vers la longueur de diffusion a pour des faibles impulsions k , c'est-à-dire pour des tailles de boîte L suffisamment grandes.

La figure (5.4) montre qu'on obtient cette quantité très facilement à partir de la connaissance r_{\max} :

$$\boxed{-\frac{\delta}{k} = L - 2(L - r_{\max}) = 2r_{\max} - L}$$

5.4.2 Méthode de l'énergie

La seconde méthode est basée sur l'énergie E de l'état stationnaire. L'impulsion correspondant à cet état est $\hbar k = \sqrt{mE}$. La fonction radiale de l'état non-perturbé de même énergie vérifie :

$$\bar{F}(r) \xrightarrow{r \rightarrow \infty} \sin(kr)$$

Il s'agit d'un lobe sinusoidal s'annulant à la distance $L' = \frac{\pi}{k} = \frac{1}{2}(mE)^{-1/2}$.

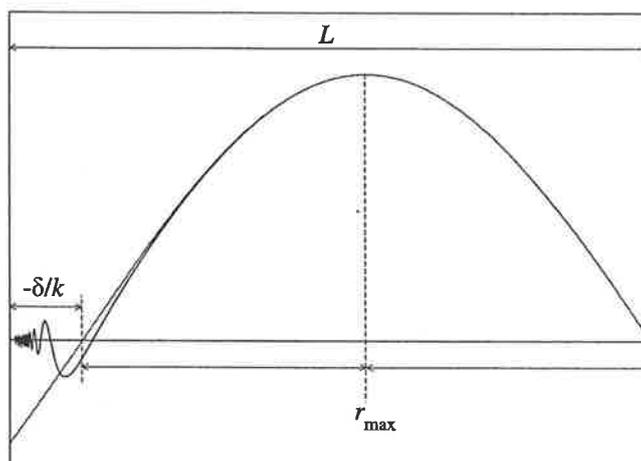


FIG. 5.4 – Principe de la méthode du maximum.

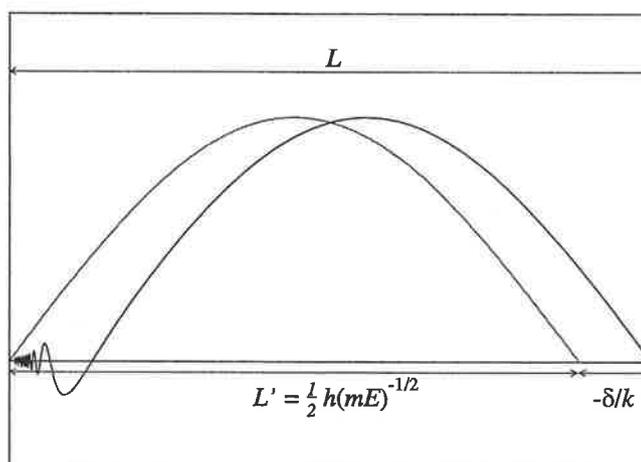


FIG. 5.5 – Principe de la méthode de l'énergie.

La figure (5.5) montre que l'écart de ce point avec le point d'annulation de la fonction d'onde radiale perturbée (le bord de la boîte L) correspond à la quantité $-\delta/k$. On a donc :

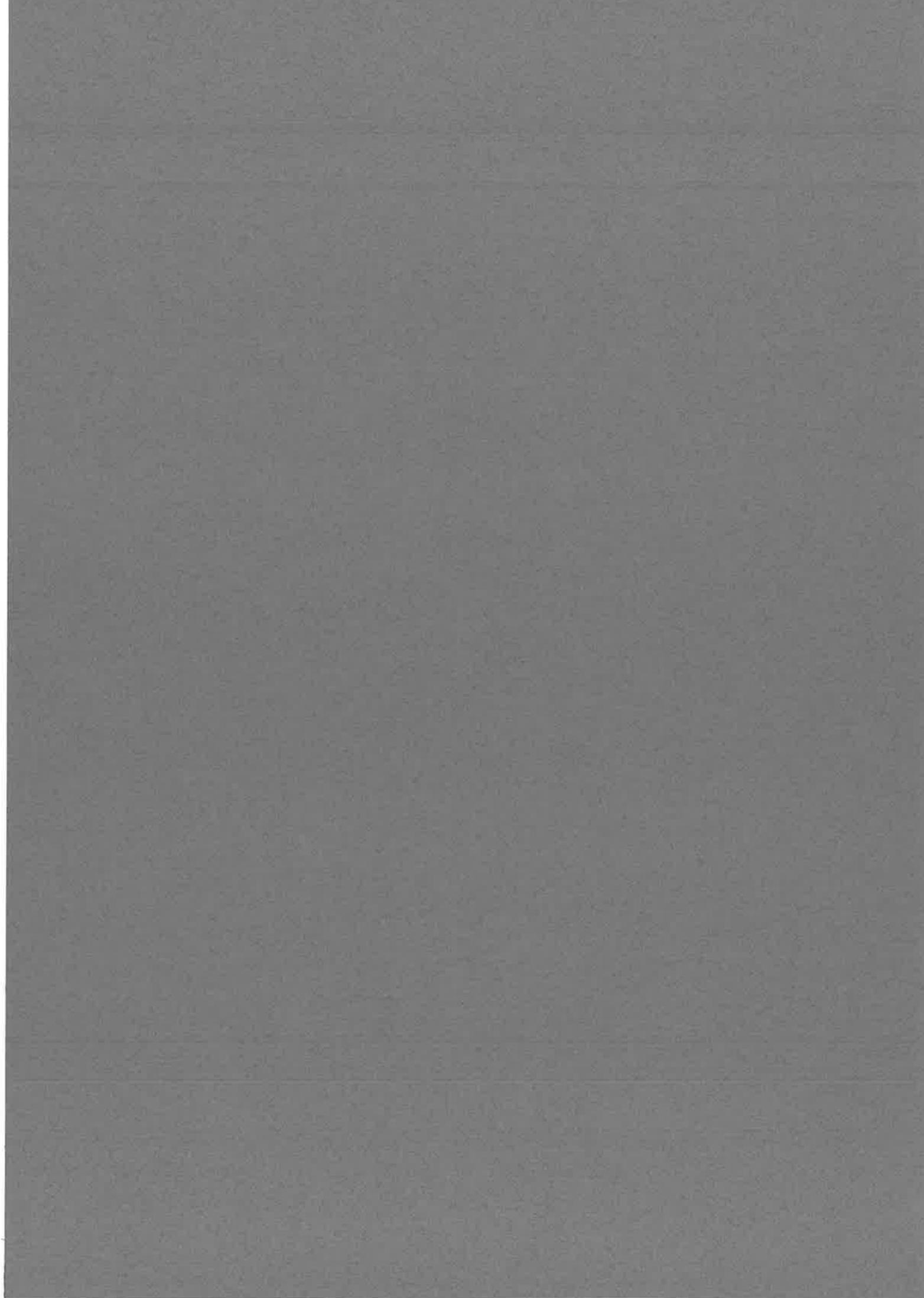
$$\frac{\delta}{k} = L - L' = L - \frac{1}{2}(mE)^{-1/2}$$

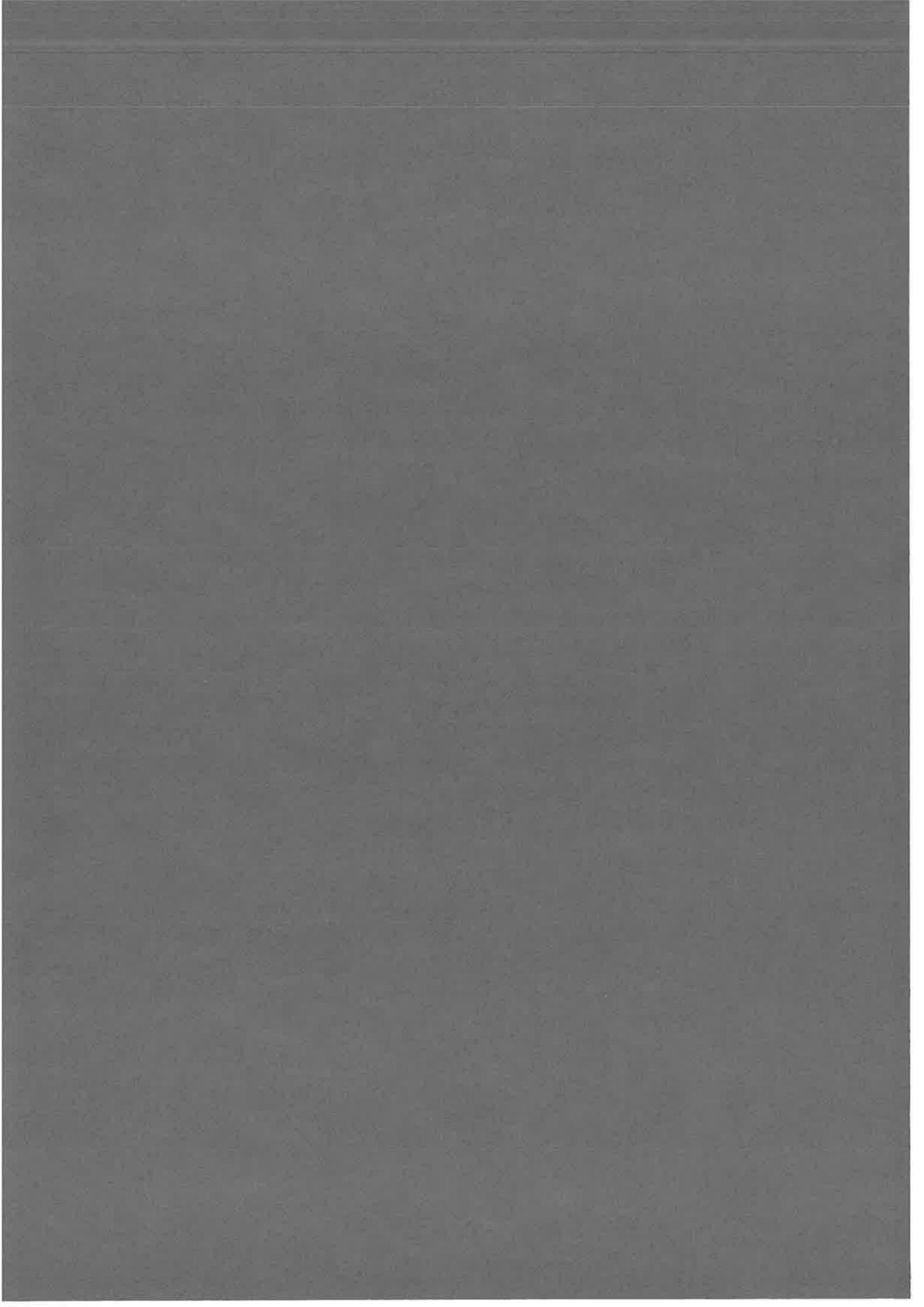
5.4.3 Méthode de l'amplitude de diffusion

On peut enfin calculer la longueur de diffusion à l'aide de la formule d'amplitude de diffusion (2.11) :

$$\begin{aligned} a &= \frac{m}{4\pi\hbar^2} \int d^3\mathbf{r} (U_1(r)\varphi_1(r) + H_{21}^*(r)\varphi_2(r)) \\ &= \frac{m}{\sqrt{4\pi\hbar^2}} \int_0^L dr r \cdot (U_1(r)F_1(r) + H_{21}^*(r)F_2(r)) \end{aligned}$$

Cette méthode impose que les fonctions d'onde soient normalisées asymptotiquement à l'unité (voir le paragraphe 2.1.2.1).





Chapitre 6

Applications

Nous présentons dans cette partie une application numérique des théories que nous avons exposées dans les chapitres 2 et 4. On utilisera tout d'abord les équations couplées pour deux atomes afin d'étudier les effets de la photoassociation dans des gaz de rubidium 87 et de sodium 23. On s'intéressera notamment à la variation de la longueur de diffusion, paramètre important dans le cas des condensats.

Nous étudierons ensuite la photoassociation dans un condensat en utilisant deux modèles à deux voies couplées issus du chapitre 4 : l'approximation des cumulants au premier ordre (4.47), et l'approximation de la paire réduite (4.52). Ces deux méthodes sont utilisées avec des potentiels numériques « réalistes ». On s'intéressera dans un premier temps à la photoassociation avec un laser continu, en se basant sur les conditions de l'expérience de McKenzie et al. [McKenzie2002] réalisée au NIST. Nous verrons dans un second temps les effets de rampes de fréquence du laser, qui sont l'analogue des rampes de champ magnétique utilisées dans les expériences de résonance de Feshbach magnétique.

6.1 Résonances de Feshbach optiques

Nous allons illustrer dans cette partie la possibilité de modifier la longueur de diffusion à l'aide d'un laser de photoassociation (ce que nous avons appelé la "résonance de Feshbach optique" dans le chapitre 2). Nous présentons ici quelques calculs effectués dans le cadre de la théorie à deux atomes. Les premiers calculs concernent le rubidium 87 et ont été réalisés avec le programme de grille de Fourier développé au laboratoire Aimé Cotton [Kokoouline1999]. Nous présentons ensuite des calculs dans le cas du sodium 23, effectués en amont de notre travail dans le cadre des condensats. La méthode numérique utilisée est celle que nous avons exposée dans la partie ???. Dans tous les cas, il ne s'agit pas de calculs très précis destinés à être comparés à la spectroscopie exacte de ces systèmes. Les potentiels et les approximations utilisées (réduction à deux voies effectives) ne sont en effet pas suffisants pour cela ; il faudrait en outre introduire la structure hyperfine dans le problème. Il s'agit ici avant tout de montrer certaines caractéristiques de ces systèmes dans des conditions réalistes.

6.1.1 Photoassociation du rubidium 87

6.1.1.1 Contexte

L'origine de ces calculs est une collaboration entre l'équipe théorique du groupe Atomes, Molécules et Plasmas Ultra-froids (Laboratoire Aimé Cotton) et le groupe expérimental de Philippe Grangier (Institut d'Optique). Celui-ci travaille sur une expérience visant à réaliser une *porte de*

phase quantique, c'est-à-dire une opération logique à deux q -bits¹. Il a été montré qu'une porte de ce type pouvait être utilisée pour construire un porte C-NOT ("Non" contrôlé), elle-même connue comme étant une brique élémentaire pour construire un système d'information quantique. Dans l'expérience du groupe de Philippe Grangier, les q -bits correspondent à deux états hyperfins de l'atome de ^{87}Rb . Le but est de piéger des atomes de rubidium dans un réseau optique créé par interférence de lasers et de les déplacer à loisir à l'aide de "pinces optiques" pour les faire interagir lorsqu'on souhaite effectuer une opération logique. L'interaction entre les deux atomes doit être contrôlée de manière à ce que pour chaque couple d'état hyperfin, la phase finale des atomes corresponde à celle donnée par la table logique de la porte de phase. La manipulation de l'interaction par résonance de Feshbach magnétique dans le cas du rubidium 87 n'est pas aisée car peu de résonances sont disponibles et elles se situent à des valeurs de champ magnétique importantes. Une idée du groupe de Philippe Grangier est d'utiliser un laser de photoassociation pour induire une résonance de Feshbach optique n'ayant d'effet que sur la paire de q -bits à déphaser. En particulier, pour réaliser une porte de phase, la résonance de Feshbach doit être ajustée de manière à ce que le déphasage final soit de π . Évidemment, les contraintes dans ce type d'expériences sont très grandes : la résonance de Feshbach doit être extrêmement sélective vis-à-vis des q -bits pour que l'efficacité de la porte de phase soit bonne et que l'opération puisse être répétée un grand nombre de fois sans erreurs.

Le début de la collaboration avec le laboratoire Aimé Cotton a porté sur la faisabilité de la résonance de Feshbach optique dans le rubidium 87. La difficulté principale est d'altérer sensiblement la longueur de diffusion sans avoir de perte par photoassociation dans l'état excité. La théorie pour une résonance isolée présentée dans les articles théoriques sur les résonances de Feshbach optiques [Fedichev1996, Bohn1997] suggère qu'il faut ajuster la fréquence du laser suffisamment loin de la résonance pour éviter les pertes par émission spontanée. En contrepartie, l'intensité du laser doit être suffisamment importante pour altérer notablement la longueur de diffusion. Des calculs préliminaires ont été effectués par Philippe Pellegrini, alors doctorant au laboratoire, et nous avons repris la suite de son travail après son départ.

6.1.1.2 Photoassociation à forte intensité

Une caractéristique importante de l'expérience est la disponibilité d'un laser focalisé de très forte intensité, atteignant le MW/cm^2 . Ce type d'intensité ouvre la possibilité de modifier profondément la nature de la collision entre atomes. La fréquence typique du laser est l'ordre de 12300 cm^{-1} . Nous avons estimé que dans ces conditions le laser couple principalement l'état fondamental $^1\Sigma_g^+$ et l'état excité $0_u^+(5S + 5P_{1/2})$ (voir la figure 6.1). Les courbes de potentiel ont été obtenues à partir des calculs ab initio de Foucrault et al. [Foucrault1992] pour la partie à courte distance et de la référence [Marte2002] pour la partie à plus grande distance. La longueur de diffusion dépend de manière extrêmement sensible des courbes de potentiel, et doit en général être réajustée par un léger déplacement de la barrière répulsive afin d'obtenir une valeur d'environ 105 unités atomiques [Burke1997]. Nous n'avons pas tenu compte explicitement du moment cinétique J de la paire d'atomes dans la voie excitée, en estimant qu'il n'avait pour effet que de décaler légèrement les résonances. Dans la région autour de la fréquence du laser, le maximum local du facteur de Franck-Condon (2.47) a été obtenu pour le niveau de vibration $v = 210$. On a travaillé principalement autour de cette résonance.

Le calcul a consisté à diagonaliser l'hamiltonien du système couplé (2.28) dans l'approximation de l'onde tournante, en utilisant le programme de grille de Fourier. On obtient ainsi numériquement les états propres (avec leurs composantes sur chaque voie) et leurs énergies propres.

¹En informatique quantique, un q -bit est l'analogie quantique d'un bit en informatique classique. Alors que le bit classique n'a que deux états possible (0 ou 1), le q -bit peut être en général dans une superposition d'états 0 et 1.

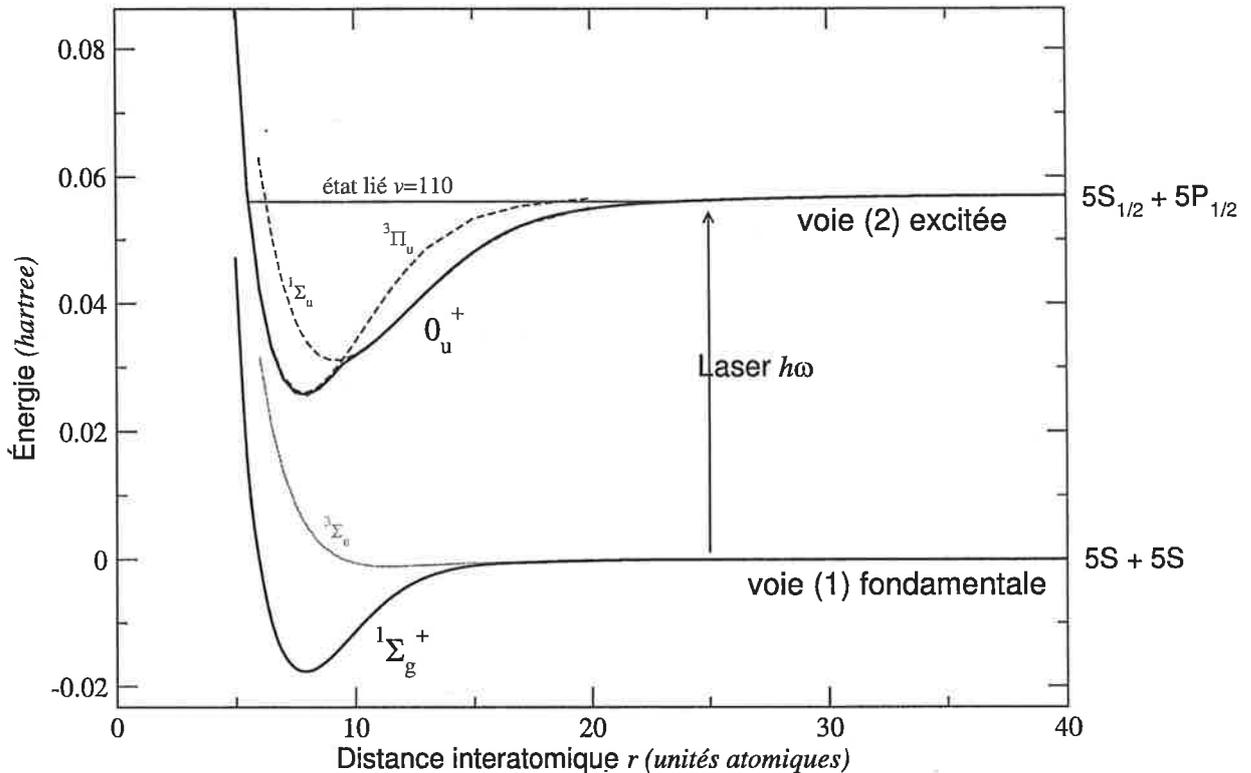


FIG. 6.1 – Courbes de potentiels $1\Sigma_g^+$ et 0_u^+ utilisées pour modéliser une résonance de Feshbach optique dans le rubidium. On note que le potentiel de la voie excitée présente un croisement évité aux alentours de $r = 10$ unités atomiques du fait de l'interaction spin-orbite. À grandes distances, ce potentiel se comporte en $-C_3/r^3$.

Nous avons retenu les derniers états liés et les premiers états du quasi-continuum. Pour ces derniers, on peut extraire un déphasage δ_k . La quantité δ_k/k (où k est l'impulsion de collision associée à l'état considéré) donne une estimation de la longueur de diffusion, d'autant meilleure que k est petit. On l'a calculée en utilisant la méthode du maximum et la méthode de l'énergie décrites plus haut.

Les calculs ont été effectués sans tenir compte de l'émission spontanée : les valeurs de la longueur de diffusion sont donc réelles et différent de la longueur de diffusion complexe au voisinage des résonances. L'estimation des pertes par émission spontanée se fait alors en considérant la population dans l'état excité. Cette population doit être suffisamment petite pour que les pertes par émission spontanée soient négligeables. Des calculs complémentaires tenant compte de l'émission spontanée par le terme imaginaire $-i\gamma/2$ ont été effectués par Anne Crubellier et sont en accord avec les nôtres pour des écarts à la résonance supérieurs à γ .

Dans l'expérience, les collisions ont lieu au sein d'un site du réseau optique. Ce site est un puits de potentiel dont le "fond" harmonique correspond à une fréquence $\omega \approx 2\pi 100$ kHz. Pour imiter ce confinement, nous avons utilisé une taille de grille numérique de 5000 u.a., soit environ 250 nm. Dans ces conditions, le deuxième niveau d'énergie du quasi-continuum correspond approximativement au premier niveau d'énergie de collision $\frac{1}{4}\hbar\omega$ dans un site du réseau optique. Sur la figure 6.2, on a représenté les niveaux d'énergie en fonction du désaccord Δ du laser avec la transition atomique, au voisinage de la résonance avec le niveau $\nu = 210$. Nous avons utilisé

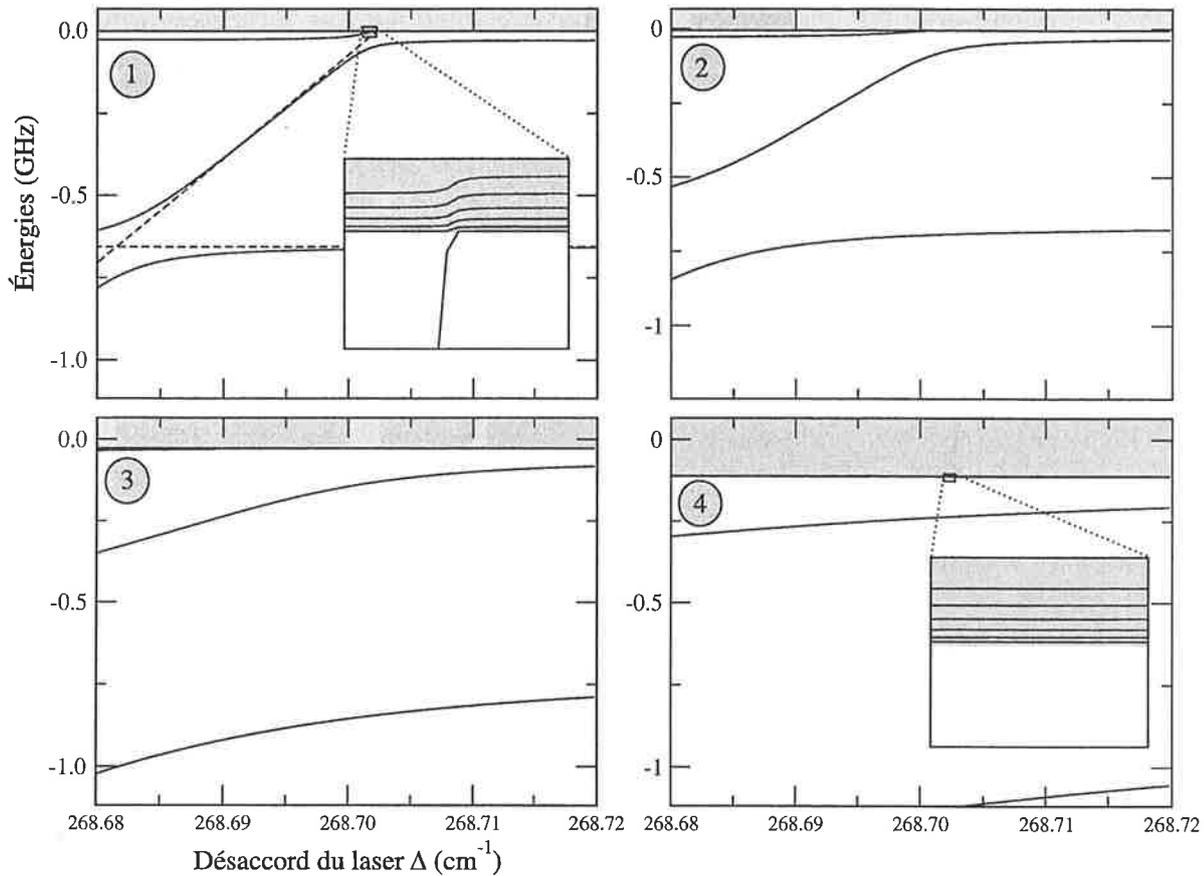


FIG. 6.2 – Structure des énergies d'une paire d'atomes de rubidium 87, près de la résonance avec l'état $\nu = 210$ du potentiel excité. Les quatre graphes correspondent à quatre valeurs différentes du couplage $\frac{1}{2}\Omega$: ① $0,1 \text{ cm}^{-1}$, ② $0,2 \text{ cm}^{-1}$, ③ $0,5 \text{ cm}^{-1}$ et ④ $1,0 \text{ cm}^{-1}$. On a figuré en gris le quasi-continuum de la boîte. La taille de la boîte est de 5000 u.a., soit environ 250 nm.

quatre valeurs de couplage différents, de $0,1$ à $1,0 \text{ cm}^{-1}$, correspondant approximativement à des intensités laser de 10 kW/cm^2 à 1 MW/cm^2 .

Pour la plus faible intensité, on obtient une structure des niveaux d'énergie comparable à celle donnée dans la figure 2.5 au chapitre 2. Les niveaux d'énergie suivent la structure des énergies non-perturbées. En particulier, la résonance se produit lorsque le dernier état lié pénètre dans le quasi-continuum et décale les niveaux de ce quasi-continuum. Pour des intensités plus élevées, la structure des niveaux est fortement modifiée et l'on perd l'image des niveaux non-perturbés. Les croisements sont très fortement évités et les niveaux d'énergie ont une dépendance très douce avec le désaccord du laser Δ . On comprend mieux cette situation dans l'image adiabatique (voir le paragraphe 2.1.1.3). À forte intensité, le couplage laser induit un croisement évité important entre les deux courbes de potentiel adiabatiques (voir la figure 2.2). La voie adiabatique fondamentale est alors pratiquement découplée de la voie excitée : on a quasiment un *problème à une seule voie*. Les énergies obtenues sont donc approximativement celles des états non-perturbés dans la voie adiabatique fondamentale. La variation douce de ces énergies correspond à la déformation continue du potentiel adiabatique fondamental lorsqu'on varie le désaccord du laser Δ .

La quantité $-\delta_k/k$ est représentée sur la figure 6.3 pour les 6 premiers états du quasi-continuum, dans les mêmes conditions que la figure précédente. Pour les deux premières intensités, on constate que les courbes se superposent, montrant que la quantité $-\delta_k/k$ est voisine de la limite à énergie nulle a pour tous ces états. Les deux premiers graphes correspondent donc à

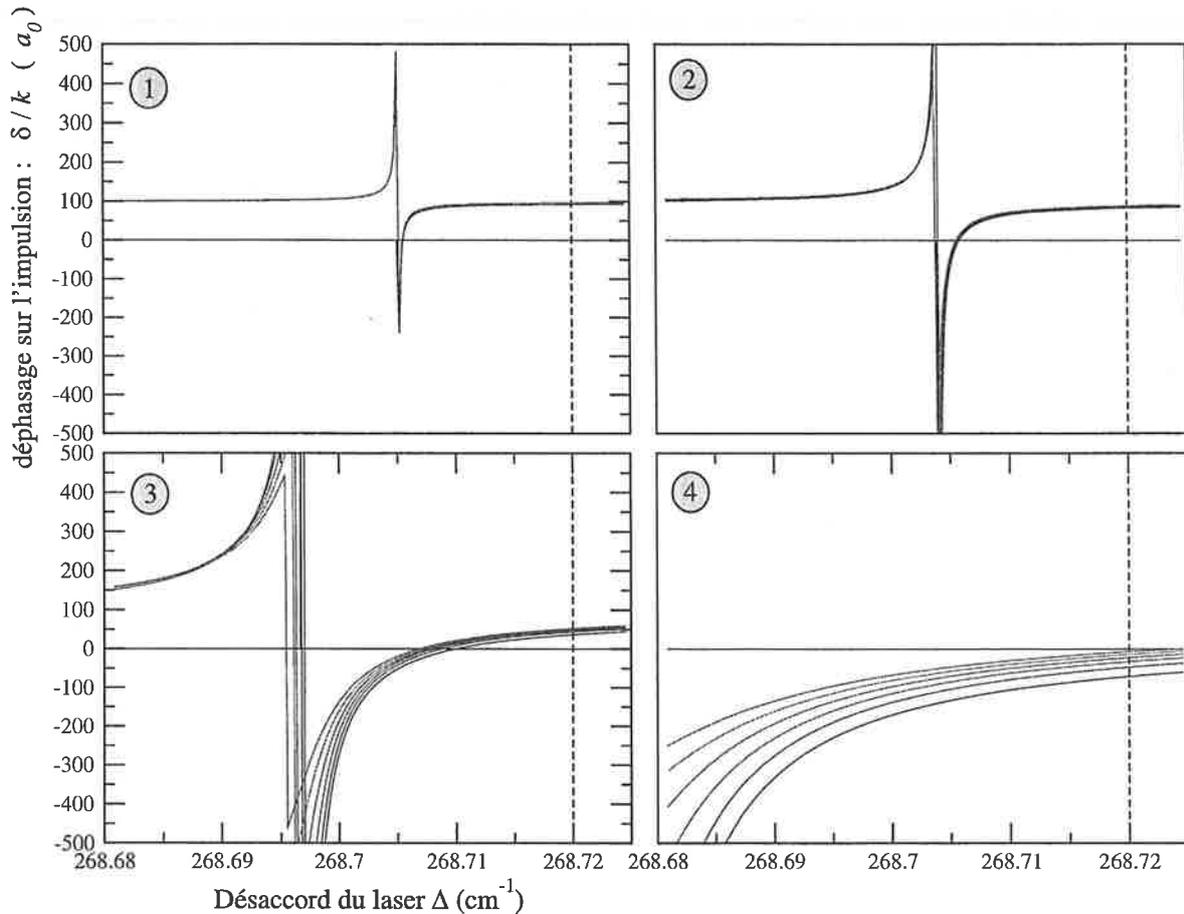


FIG. 6.3 – Variation de la quantité $-\delta_k/k$ (déphasage sur l'impulsion) en fonction du désaccord Δ pour les mêmes intensités ①, ②, ③ et ④ que sur la figure 6.2.

la variation de la longueur de diffusion en fonction de Δ . On obtient le comportement dispersif (2.39) prédit par la théorie pour une résonance isolée.

Pour les plus fortes intensités, le comportement dispersif subsiste, mais on note plusieurs différences avec le comportement à faible intensité. Tout d'abord, la position de la résonance est déplacée. Ce déplacement lumineux est prédit dans la théorie pour une résonance isolée : voir l'équation (2.36). On note ensuite que les courbes ne se superposent plus. Cela signifie que le déphasage δ_k n'est plus linéaire en k aux impulsions considérées. On note que pour la plus forte intensité utilisée, la variation de $-\delta_k/k$ entre les différents états est importante : pour un désaccord $\Delta = 268,72\text{cm}^{-1}$ relativement "éloigné" de la résonance, la quantité $-\delta_k/k$ passe de -100 à 0 unités atomiques en allant du premier au sixième état du quasi-continuum. Nous avons représenté sur la figure 6.4 la variation de $-\delta_k/k$ en fonction de l'impulsion pour ce désaccord. Pour les plus faibles intensités, $-\delta_k/k$ est pratiquement constant et égal à la longueur de diffusion, alors que qu'il présente une variation importante pour les intensités plus fortes. La longueur de diffusion est en principe obtenue par extrapolation de ces courbes en $k = 0$. On voit qu'il est difficile d'obtenir une valeur précise de la longueur de diffusion de cette manière. Les méthodes de grille où les états sont quantifiés dans une boîte ne paraissent donc pas les plus adaptées pour calculer la longueur de diffusion. On pourrait penser qu'il serait plus judicieux d'utiliser une méthode de propagation de la fonction d'onde le long de l'axe internucléaire, pour une énergie choisie strictement nulle. Néanmoins, les résultats de la figure 6.4 montrent que la quantité $-\delta_k/k$ n'atteint pas la valeur de la longueur de diffusion aux énergies de collision considérées, typiques de l'expérience. Par conséquent, la longueur de diffusion n'est plus une quantité pertinente, et

on ne peut plus raisonner qu'en terme de déphasage dépendant de l'impulsion de collision.

Par ailleurs, nous pensons que cette dépendance en impulsion provient du fait que la longueur de diffusion n'est en réalité *plus définie*. On peut le comprendre simplement en se plaçant dans la base adiabatique. Nous avons dit qu'à forte intensité, le problème est quasiment équivalent à un problème de diffusion dans le potentiel adiabatique de la voie fondamentale. La forme de ce potentiel dépend explicitement du désaccord du laser. D'une part, en changeant le désaccord, on déforme le potentiel, ce qui explique la variation de la longueur de diffusion avec le désaccord Δ , même entre les résonances. D'autre part, la partie à grande distance du potentiel adiabatique de la voie fondamentale correspond au potentiel diabatique de la voie excitée (voir la figure 2.2). Or, ce potentiel se comporte en $1/r^3$ à grande distance. Par conséquent, la longueur de diffusion du potentiel adiabatique fondamental n'est pas rigoureusement définie : elle tend vers $-\infty$ (voir le paragraphe 2.1.2.1). Cela explique la variation de la quantité δ_k/k avec l'énergie de collision, et la difficulté de trouver une longueur de diffusion en extrapolant à énergie de collision nulle.

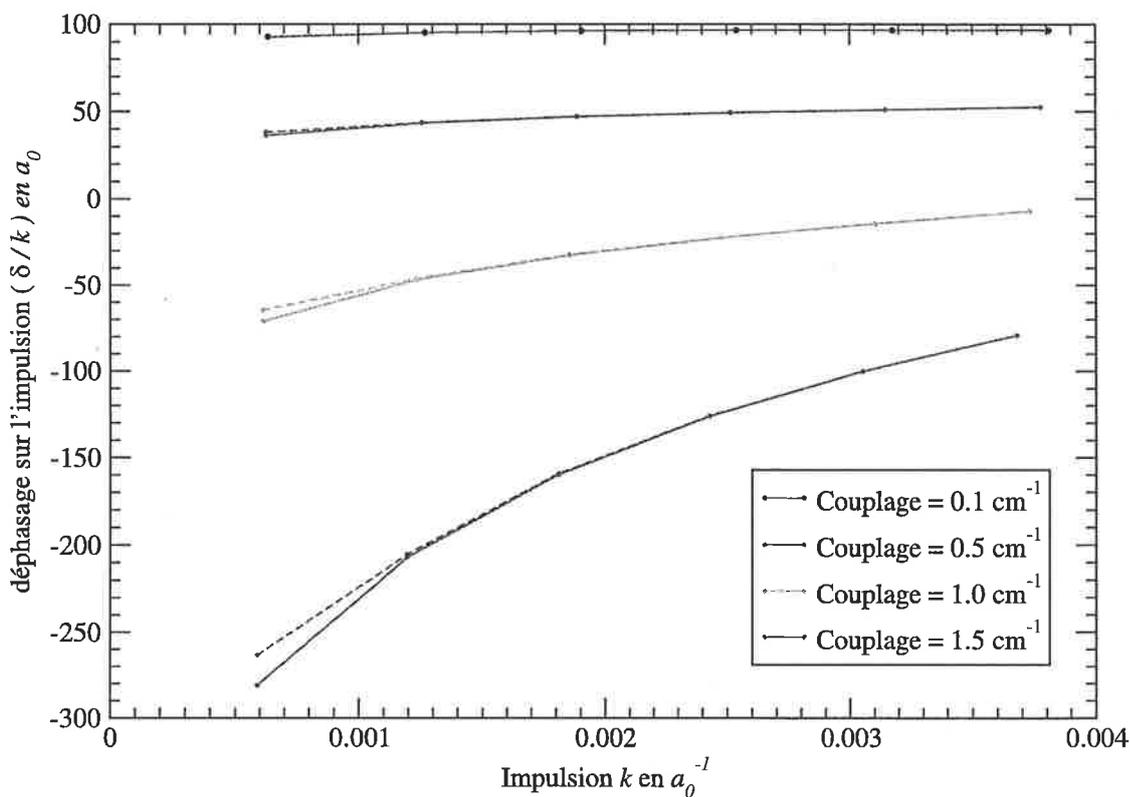


FIG. 6.4 – Variation de la quantité $-\delta_k/k$ (déphasage sur l'impulsion) en fonction de l'impulsion de collision k . Les quatre intensités utilisées correspondent à des couplages de 0,1 - 0,5 - 1,0 - 1,5 cm^{-1} , et le désaccord $\Delta = 268,72 \text{cm}^{-1}$ correspond aux lignes verticales en tireté indiquées sur les figures 6.3. Les lignes pleines ont été obtenues avec la méthode de l'énergie et les lignes tiretées correspondent à la méthode du maximum.

6.1.2 Photoassociation du sodium 23

Nous nous sommes particulièrement intéressés à l'expérience de photoassociation dans un condensat de sodium effectuée au NIST [McKenzie2002] (voir paragraphe 6.1.2.1). Nous donnons ici quelques calculs numériques préliminaires dans le cadre de la théorie à deux atomes. Nous

avons utilisé ici la méthode numérique décrite dans le chapitre 5 et qui sera aussi utilisée pour les calculs à N corps. Ces calculs nous ont donc permis de préparer et valider la résolution numérique dans le cadre des modèles à N corps, en déterminant au préalable les quantités à deux corps pertinentes comme la longueur de diffusion ou l'énergie des états liés.

6.1.2.1 Expérience de photoassociation du NIST

Donnons brièvement les conditions de l'expérience [McKenzie2002]. Un condensat d'environ 4×10^6 atomes de sodium dans l'état hyperfin $|F = 1; m_F = -1\rangle$ est formé dans un piège magnétique. Le piège est anisotrope et de fréquences d'oscillations $\omega_x/\sqrt{2} = \omega_y = \sqrt{2}\omega_z = 2\pi 198$ Hz. L'extension du condensat (rayon de Thomas-Fermi) est d'environ $15 \mu\text{m}$ dans la direction y , et la densité maximale au centre du piège est de 4×10^{14} atomes/cm³. Un laser de photoassociation est appliqué sur le condensat. Le faisceau du laser est focalisé sur $120 \mu\text{m}$ au niveau du condensat. Il est appliqué par pulses d'une durée de 10 à 400 μs , avec un temps de montée et de descente inférieur à 0,5 μs . Pendant le pulse, l'intensité est maintenue constante avec une valeur comprise entre 50 à 1200 W/cm². La fréquence du laser est ajustée à $169313,37(2) \text{ cm}^{-1}$, à 43 cm^{-1} de la raie D1. Dans ces conditions, l'état de diffusion dans l'état électronique fondamental $X^1\Sigma_g^+$ est couplé avec l'état lié $v = 135$, $J = 1$ de l'état électronique excité $A^1\Sigma_u^+$ (voir la figure 6.5).

Le but principal de cette expérience était d'explorer les effets de la photoassociation à un très faible température, pour laquelle les atomes se déplacent très lentement (de l'ordre du $\text{mm}\cdot\text{s}^{-1}$). Il paraît intuitivement plus difficile de photoassocier ces atomes, car il faut attendre que ces atomes se rencontrent pour s'apparier sous l'influence du laser de photoassociation. En supposant que la photoassociation a lieu lorsque les atomes sont à une distance r_C de l'ordre du point de Condon, avec une probabilité P de transition vers l'état excité, on peut estimer classiquement que la section efficace de photoassociation est de l'ordre de $\sigma = \pi r_C^2 P$. Le taux de photoassociation est alors $K = \sigma v$, où v est la vitesse des particules. Pour de très faibles vitesses, le taux de photoassociation « classique » tend donc vers zéro. En revanche, le théorème quantique des collisions prévoit un taux de photoassociation non-nul, donné par la formule (2.45) établie au chapitre 2. La raison est qu'à énergie de collision nulle, les atomes sont délocalisés dans l'espace, de par leur nature quantique. Leur fonction d'onde indique une probabilité de présence non-nulle à courte distance où intervient la photoassociation, même si la distance moyenne entre ces atomes reste grande. Aux vitesses typiques de collisions dans l'expérience de [McKenzie2002] (de l'ordre de $6 \text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$), le taux de photoassociation « classique » est nettement plus bas que le taux « quantique ». L'observation de la perte d'atomes au voisinage de la résonance selon un taux prédit par la mécanique quantique est donc une illustration particulièrement frappante de la nature quantique des collisions à ces faibles énergies.

Tant que la résonance est isolée, le taux de photoassociation à énergie nulle est linéaire avec l'intensité du laser, comme le montrent les formules (2.45) et (2.46). Cette expression du taux découle uniquement de la théorie à deux atomes. Les travaux théoriques de Juha Javanainen et Matt Mackie [Javanainen2002] prévoient une saturation du taux de photoassociation dans le problème à N corps, du fait de la « photodissociation rebelle » survenant dans leur modèle (voir la formule (4.41)). Pour l'intensité maximale de l'expérience (1200 W/cm²), le taux de photoassociation est du même ordre que le taux de saturation prévu par Juha Javanainen. Cette expérience cherche donc également à tester d'éventuelles indications de ces effets de saturation à N corps. Elle n'a cependant pas mis en évidence de déviation par rapport à la théorie à deux corps pour les intensités utilisées.

6.1.2.2 Longueur de diffusion près de la résonance $v = 135$, $J = 1$

Le résonance de photoassociation de l'expérience [McKenzie2002] a déjà été étudiée numériquement par Philippe Pellegrini au cours de sa thèse et nous avons réutilisé les courbes potentiels

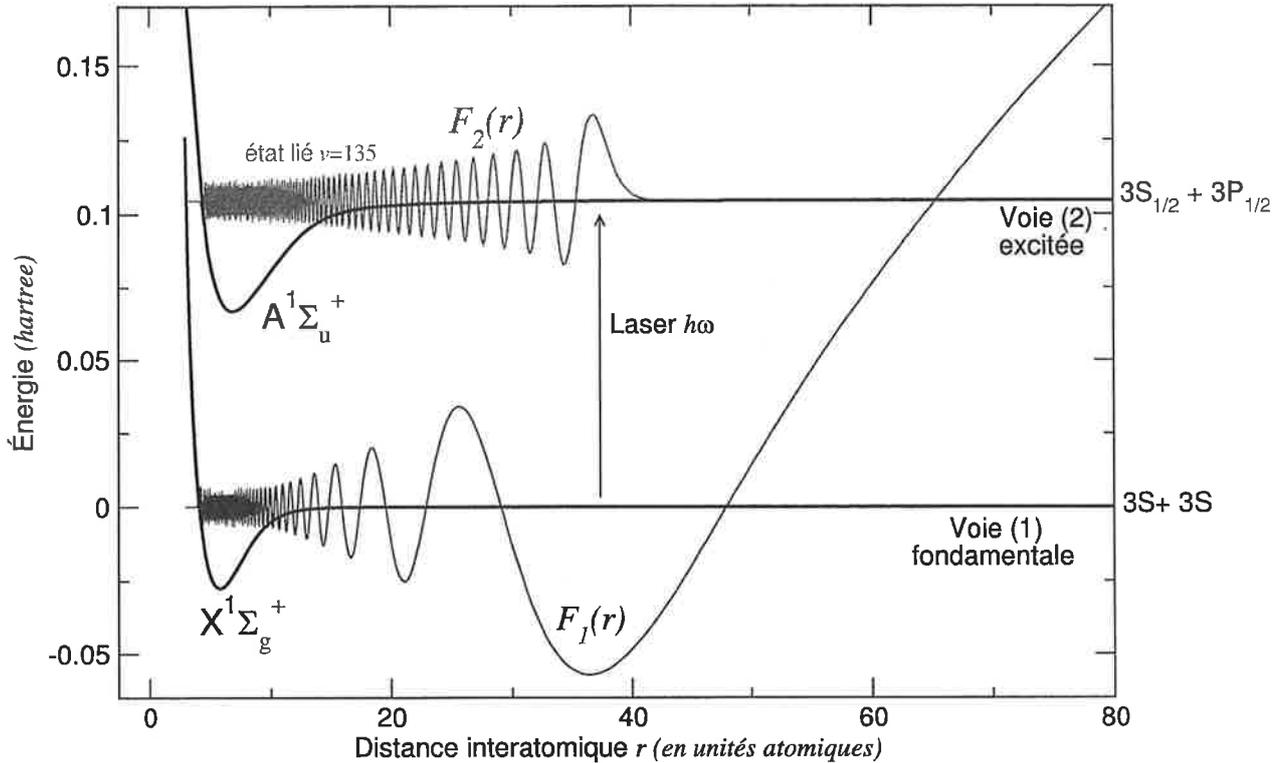


FIG. 6.5 – Courbes de potentiels $X^1\Sigma_g^+$ et $A^1\Sigma_u^+(3S+3P_{1/2})$ du sodium utilisées pour modéliser l'expérience [McKenzie2002]. On a également figuré la partie radiale F_1 de la fonction d'onde de l'état de diffusion à énergie nulle dans le potentiel du bas, et la partie radiale F_2 de la fonction d'onde de l'état lié $v = 135$ du potentiel excité. Elles correspondent aux états "non-perturbés" dans chacune des voies.

des états fondamentaux $X^1\Sigma_g^+$ et excité $A^1\Sigma_u^+$ qu'il a construites à partir des résultats d'études spectroscopiques effectuées par le groupe d'E. Tiemann [Tiemann1996, Samuelis2000]. La longueur de diffusion du potentiel fondamental est ajustée à environ 54,9 unités atomiques.

Sur la figure 6.6, on a représenté l'énergie du dernier état lié en fonction du désaccord Δ du laser près de cette résonance pour une intensité de 140 W/cm^2 . On retrouve la structure générale décrite dans la figure 2.5. Le dernier état lié du potentiel fondamental a un croisement évité avec l'état lié « résonant » du potentiel excité, et l'on passe adiabatiquement de l'un à l'autre en augmentant le désaccord. L'état lié du système couplé est en général un mélange ayant une composante sur chaque voie. On a figuré les fonctions d'onde dans les voies fondamentale et excitée pour différentes valeurs du désaccord Δ . Avant le croisement évité, l'état a une composante dominante dans la voie fondamentale, correspondant à peu près à l'état lié non-perturbé du potentiel fondamental. Après le croisement, c'est la composante dans la voie excitée qui domine. On note toutefois que la composante dans la voie fondamentale ne disparaît pas complètement. C'est un point important et apparaîtra lorsque nous effectuerons les calculs pour les modèles à N corps.

Il faut noter que la position de la résonance obtenue est relativement peu précise. La figure 6.6 montre que le dernier état lié pénètre dans le continuum pour un désaccord d'environ 49 cm^{-1} alors que la résonance est expérimentalement observée à 43 cm^{-1} . C'est une différence importante, bien au-dessus de nos incertitudes numériques, qui vient peut-être du manque de finesse des

potentiels. Par ailleurs, la position précise de la résonance implique la prise en compte de l'onde partielle d que nous n'avons pas considérée [McKenzie2002]. Nous n'avons cependant pas cherché à améliorer la précision de la modélisation des voies couplées, le but de notre démarche étant avant tout d'observer des effets qualitatifs.

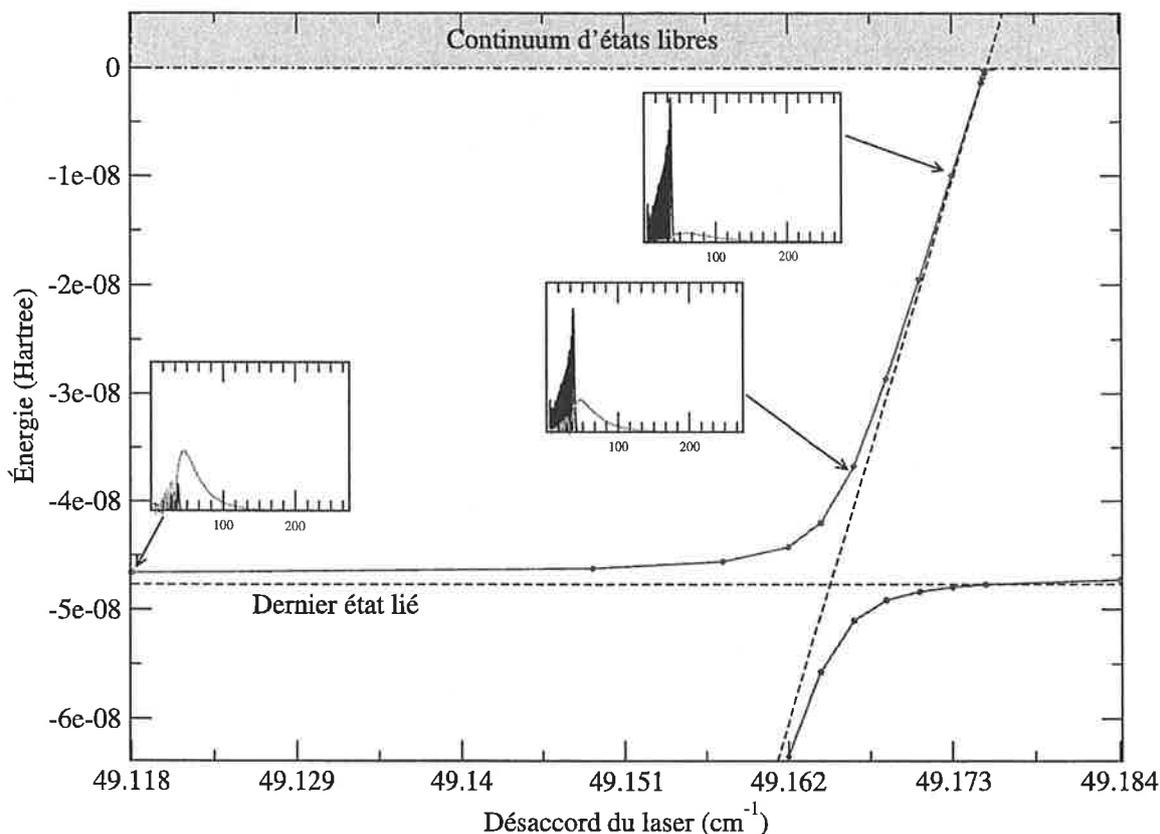


FIG. 6.6 – Structure des énergies d'une paire d'atomes de sodium soumis à un laser de photoassociation de 140 W/cm^2 près de la résonance avec l'état ($v = 135$, $J = 1$). En trait tireté, on donne les énergies à la limite d'une intensité nulle. On a en outre représenté les composantes de la fonction d'onde du dernier état lié pour quelques valeurs du désaccord. Dans chacun de ces graphes, la courbe en trait noir correspond à la composante dans la voie excitée, et la courbe en trait clair correspond à la composante dans la voie fondamentale.

Nous avons ensuite calculé la longueur de diffusion à l'aide des trois méthodes exposées dans la partie 5.4. Le calcul de la longueur de diffusion par la méthode de l'amplitude de diffusion, quoi que plus lourd numériquement, donne des résultats très précis, en très bon accord avec les deux autres méthodes. Ceci est illustré sur la figure 6.7 où nous avons représenté la longueur de diffusion au voisinage de la résonance pour une intensité de 140 W/cm^2 , calculée avec la méthode du maximum et avec la méthode de l'amplitude de diffusion. Ces calculs valident l'utilisation de la formule (4.53) pour calculer numériquement le champ moyen lorsque nous traiterons la résonance dans un condensat.

Pour les plus fortes intensités du laser, nous retrouvons des résultats similaires au cas du rubidium. D'une part la longueur de diffusion hors-résonance ne correspond plus à la longueur de diffusion en absence de couplage. La figure montre clairement la variation de cette longueur entre les différentes résonances. D'autre part, la longueur de diffusion devient également dépendante

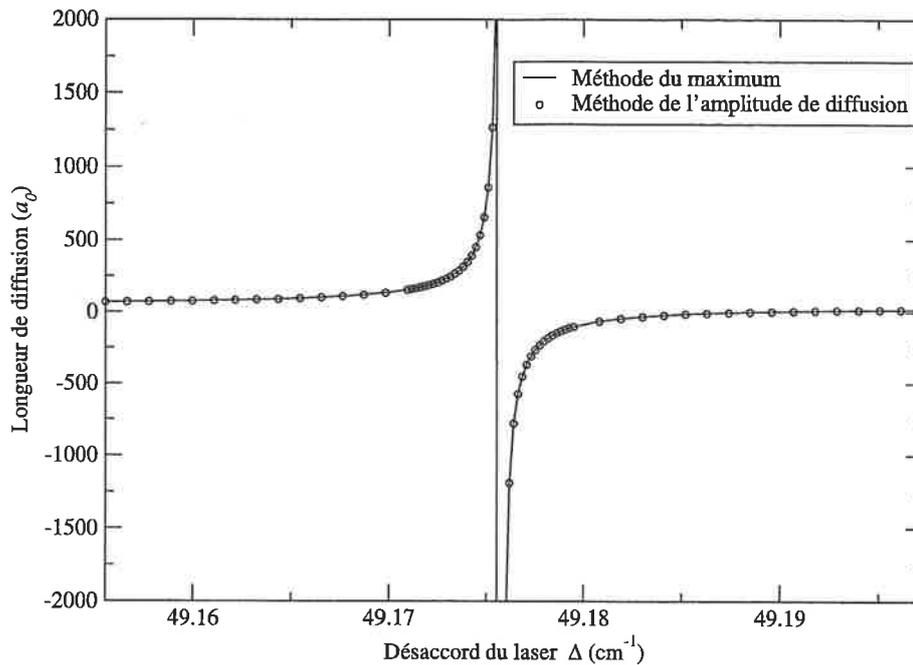


FIG. 6.7 – Variations de la longueur de diffusion en fonction du désaccord Δ du laser pour une intensité de 140 W/cm^2 . Cette longueur obtenue en calculant le premier état du quasi-continuum pour le système couplé. On extrait la longueur de diffusion par deux méthodes : la méthode du maximum (paragraphe 5.4.1) et la méthode de l'amplitude de diffusion (paragraphe 5.4.3).

de l'énergie de collision.

6.1.3 Différentes possibilités de résonances de Feshbach optiques

6.1.3.1 Variation de la longueur de diffusion au voisinage d'une résonance

Dans la proposition originale [Fedichev1996] d'utiliser un laser de photoassociation pour induire une résonance de Feshbach optique, les auteurs ont considéré le comportement dispersif de la longueur de diffusion près d'une résonance. Par analogie avec les résonance de Feshbach magnétique, ils ont analysé la possibilité de contrôler la valeur de la longueur de diffusion au voisinage de cette résonance en variant la fréquence du laser, pour une intensité donnée du laser. Les auteurs ont conclu que pour des intensités suffisamment élevées, on trouve un domaine de fréquence suffisamment loin de la résonance pour minimiser les pertes mais néanmoins suffisamment près pour modifier efficacement la longueur de diffusion. C'est la méthode utilisée récemment dans l'expérience d'Innsbruck [Theis2004]. Nos calculs confirment cette analyse. Mais ils suggèrent également d'autres méthodes pour contrôler les collisions entre les atomes.

6.1.3.2 Variation de la longueur de diffusion entre les résonances

Pour de fortes intensités, nous avons vu que la longueur de diffusion est modifiée près des résonances, mais également entre les résonances.

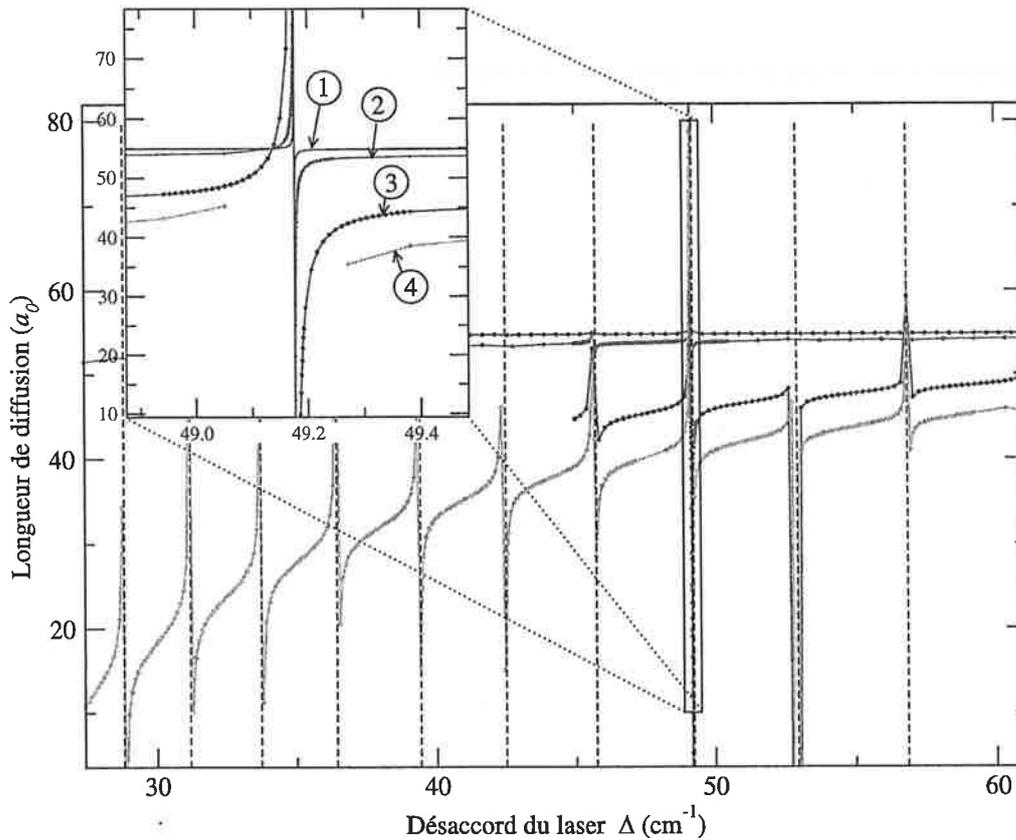


FIG. 6.8 – Variations de la longueur de diffusion en fonction du désaccord Δ du laser, pour différentes intensités : (1) 140 W/cm^2 , (2) 1200 W/cm^2 , (3) 10 kW/cm^2 et (4) 15 kW/cm^2 . En tireté, on a représenté les niveaux d'énergie non-perturbés du potentiel excité.

Variation avec l'intensité du laser

Une possibilité est donc de se placer entre deux résonances, et de faire varier l'intensité. Pour des intensités suffisamment fortes, les calculs précédents suggèrent qu'on peut faire varier efficacement la longueur de diffusion avec des pertes minimales.

Variation avec l'énergie de collision

Nous avons aussi noté que le comportement du déphasage n'est plus linéaire avec l'impulsion pour les énergies de collision typiques. La longueur de diffusion, issue d'une extrapolation à énergie nulle, n'est plus définie et il faut tenir compte explicitement de l'énergie finie des collisions. On a alors une longueur de diffusion effective $-\delta_k/k$ dépendant de l'énergie de collision. Dans un piège suffisamment étroit par exemple, on pourrait imaginer d'altérer les énergies de collision en changeant la taille du piège. Cela modifierait en retour la longueur de diffusion effective.

Il faut évidemment prendre ces résultats avec précaution, car d'autres phénomènes peuvent entrer en jeu aux fortes intensités laser, comme des transitions à deux photons. La description à deux voies sur laquelle nous nous sommes basée peut-être mise en défaut à ces intensités. Par ailleurs, les comportements observés dépendent cruciallement du fait que le couplage laser s'étend à grande distance : c'est ce qui permet de se coupler avec les états du continuum de l'état excité, et de faire intervenir la partie asymptotique du potentiel excité. À très grande distance,

la description du couplage laser n'est cependant plus correcte et il faut tenir compte des effets de retard. Les prédictions numériques ne sont probablement pas correctes quantitativement ; néanmoins, on peut s'attendre à ce que le comportement qualitatif reste le même.

6.2 Photoassociation dans un condensat

Nous nous intéressons maintenant au traitement explicite de la photoassociation dans un condensat, dans les conditions de l'expérience [McKenzie2002]. Les équations que nous avons choisi de résoudre sont les systèmes (4.47) et (4.52). Pour rendre possibles les calculs, nous nous sommes placés dans le cas d'un *système uniforme*, et nous n'avons par ailleurs tenu compte que des ondes de paire *isotropes* (on se restreint aux composantes s de moment cinétique nul). La densité du système uniforme a été choisie à 4×10^{14} atomes/cm³. On décrit donc la photoassociation au centre du piège de l'expérience. En utilisant les équations dans l'approximation des cumulants au premier ordre (5.4) et dans l'approximation de la paire réduite (5.8), on calcule en fonction du temps la densité du condensat, la densité d'atomes non-condensés dans la voie (1) et la densité d'atomes dans la voie (2). Le taux de photoassociation dynamique que nous trouvons correspond au taux local de photoassociation, et ne tient pas compte du caractère non-uniforme de l'échantillon.

6.2.1 Photoassociation d'un condensat avec un laser continu

Dans un premier temps, nous avons simulé un laser continu, tel qu'il est décrit dans dans l'expérience [McKenzie2002]. Cette expérience a été également analysée numériquement par Thomas Gasenzer [Gasenzer2004] en utilisant la méthode des cumulants au premier ordre avec des potentiels séparables. Nous reprenons donc les mêmes paramètres de calcul pour faciliter la comparaison, mais nous utilisons des potentiels réalistes. On simule le branchement du laser par une rampe linéaire en intensité partant de zéro pour finir à une valeur maximale :

$$I(t) = \begin{cases} I_0(t - t_0) & t \leq t_0 \\ I_0 & t > t_0 \end{cases}$$

La durée t_0 de cette rampe est de $0,5 \mu\text{s}$. L'intensité est ensuite maintenue constante. Les valeurs d'intensité choisies sont 140 W/cm^2 , 1200 W/cm^2 puis de 10 kW/cm^2 . Les deux premières valeurs correspondent aux intensités typiques de l'expérience.

6.2.1.1 Régime de Gross-Pitaevskiï et apparition d'atomes non-condensés

Nous avons estimé dans l'article [Naidon2003] que pour des lasers continus d'intensité modérée, la dynamique de paire ne jouait pas un rôle important. On s'attend à ce que la photoassociation soit correctement décrite par les équations de Gross-Pitaevskiï couplées, avec un taux de photoassociation conforme à celui de la théorie à deux atomes. À titre de comparaison, nous avons résolu ces équations de Gross-Pitaevskiï couplées pour les mêmes conditions expérimentales. Dans le cas d'un système uniforme, il ne s'agit que deux équations différentielles ordinaires ne portant que sur deux nombres complexes. Nous les avons résolues simplement par une méthode de propagation de type "point-milieu" [Press1996].

Pour chaque système d'équations utilisé (Gross-Pitaevskiï couplées, Cumulants au 1er ordre ou Paire Réduite), on peut définir une longueur de champ moyen (4.34) à partir de l'équation donnant la dynamique de la fonction d'onde du condensat. Sur la figure 6.9, on a représenté en fonction du temps la fraction d'atomes condensés $\Psi(t)/\Psi(0)$, la fraction d'atomes non-condensés $R'(0, t)/\Psi(0)$, ainsi que les parties réelles et imaginaires de la longueur de diffusion de champ

moyen. Rappelons que la partie imaginaire de la longueur de diffusion est proportionnelle au taux de photoassociation.

Pour les intensités correspondant à l'expérience ($140\text{--}1200\text{ W/cm}^2$), nous trouvons un accord entre tous les systèmes d'équation. Cela confirme la validité des équations de Gross-Pitaevskiï et le taux de photoassociation prédit par la théorie à deux atomes. La partie imaginaire de la longueur de diffusion est en effet sensiblement la même dans tous les modèles. Pour l'intensité de 1200 W/cm^2 , on note cependant l'apparition d'une fraction non-condensée de quelques pourcents dans le cas des équations des cumulants et de la paire réduite. De même, on observe une différence notable dans la partie réelle de la longueur de diffusion de champ moyen : pendant le processus de photoassociation, le condensat interagit plus fortement que ne le décrivent les équations de Gross-Pitaevskiï. Cela n'a pas de conséquence directe sur la population des atomes condensés, mais sur leur phase. Cet effet ne serait donc visible qu'en faisant interférer le condensat.

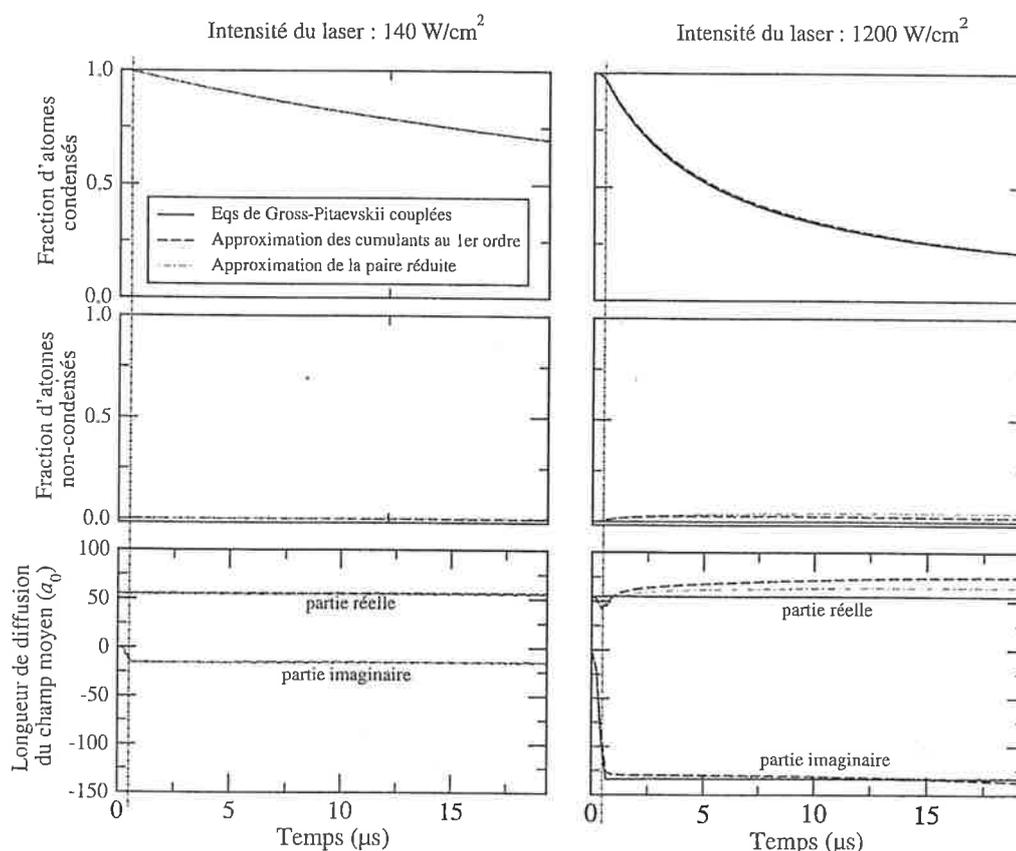


FIG. 6.9 – Photoassociation dans un condensat uniforme de sodium avec un laser continu pour une intensité de 140 et 1200 W/cm^2 , correspondant aux conditions de l'expérience [McKenzie2002]. Pour chacune des intensités, on a représenté en fonction du temps la fraction d'atomes condensés, la fraction d'atomes non-condensés, ainsi que les parties réelle et imaginaire de la longueur de diffusion de champ moyen. Les calculs ont été effectués avec les équations de Gross-Pitaevskiï (traits pleins), l'approximation des cumulants au 1er ordre (traits tiretés) et l'approximation de la paire réduite (traits pointillés-tiretés). Les traits verticaux indiquent la fin de montée de l'intensité du laser (fin du « branchement »).

En suivant la démarche de Thomas Gasenzer, nous avons poursuivi les calculs pour une intensité de 10 kW/cm^2 , afin d'observer d'éventuels phénomènes de saturation. La figure 6.10 montre les résultats des calculs pour cette intensité. On observe ici une différence marquée entre les modèles. Les solutions des équations des cumulants et de la paire réduite présentent des déviations qualitativement similaires par rapport aux solutions des équations de Gross-Pitaevskiï

couplées. D'une part le taux de photoassociation est plus faible, comme on peut le voir dans l'évolution de la population condensée, et plus nettement dans la partie imaginaire de la longueur de diffusion. D'autre part, le condensat atomique beaucoup plus fortement avec une partie réelle de longueur de diffusion avoisinant les 500 unités atomiques. Enfin, il apparaît une fraction importante d'atomes non-condensés dans la voie (1) qui se stabilise autour de 25%.

Cela signifie que du fait du fort couplage laser, une partie des paires d'atomes photoassociées ont le temps de revenir dans la voie fondamentale (1) (par émission stimulée) en contribuant à la fois au mode condensé, mais aussi aux modes non-condensés. Par conséquent, le nombre de paires d'atomes se désexcitant par émission spontanée se retrouve réduit, en particulier les paires d'atomes se désexcitant vers des états moléculaires stables : on a donc une saturation du nombre de molécules froides potentiellement formées. Ce résultat a également été obtenu dans les travaux de Thomas Gasenzer. Comme notre calcul implique le traitement des potentiels moléculaires, alors que celui de Thomas Gasenzer repose sur l'utilisation de potentiels séparables, cela signifie que ce phénomène de saturation est général et n'est pas lié à la description précise de l'interaction.

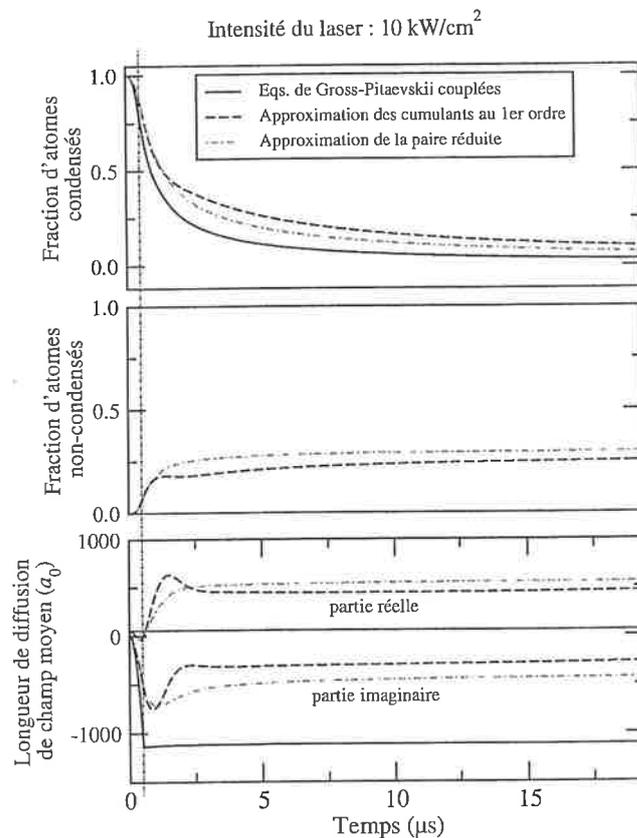


FIG. 6.10 – Même graphes que dans la figure 6.9 pour un intensité de 10 kW/cm^2 .

6.2.1.2 Origine des atomes non-condensés

Ces modes non-condensés peuvent être de deux origines : soit il s'agit de paires liées dans la voie (1), soit il s'agit de paires libres "chaudes". Thomas Gasenzer les attribue à des paires d'atomes chauds. Nous avons représenté sur la figure 6.11 les fonctions d'onde de paire Φ et Φ_m après $20 \mu\text{s}$ d'application du laser de photoassociation, pour les deux types d'équations. On constate que la fonction d'onde de paire Φ dans la voie (1) présente un grand lobe s'étendant

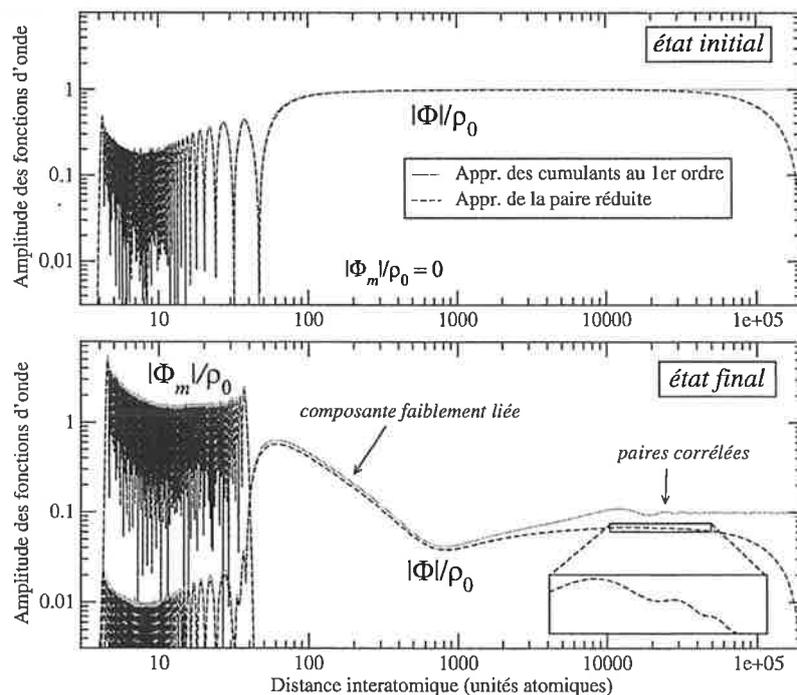


FIG. 6.11 – Fonctions d'onde de paire initiales (graphe du haut) et finales (graphe du bas) après $20 \mu\text{s}$ d'application d'un laser d'une intensité de 10 kW/cm^2 . On a représenté les modules des fonctions de paire $\Phi(r)$ et $\Phi_m(r)$ divisés par la densité initiale du condensat ρ_0 . Les résultats pour l'approximation des cumulants sont indiqués en traits pleins et ceux de l'approximation de la paire réduite en traits tiretés. Notons qu'une échelle logarithmique a été utilisée pour les deux axes.

jusqu'à environ 700 unités atomiques. Ce lobe est caractéristique d'un état faiblement lié. Ce caractère lié n'est pas une surprise : un calcul stationnaire à deux atomes pour une intensité de 10 kW/cm^2 montre également la présence de cette composante liée dans la voie fondamentale. La présence de ce lobe nous a incité à penser dans un premier temps que les modes non-condensés observés dans la voie (1) correspondaient à ces paires liées.

Néanmoins, nous avons repris les calculs en coupant l'intensité du laser au bout de $20 \mu\text{s}$, une première fois de manière adiabatique (avec une rampe de $0,5 \mu\text{s}$), puis une seconde fois de manière instantanée. Dans le premier cas, on s'attend à ce que les paires liées dans la voie (1) disparaissent et reviennent dans le condensat alors que dans le second cas, le changement de l'interaction est soudain et les paires n'ont pas le temps d'évoluer : elles demeurent dans un état lié qui devient brusquement un état non stationnaire du système, ce qui induit des battements dans la fonction d'onde.

On observe effectivement de légers battements dans le cas d'une coupure instantanée, mais les deux types de coupure (adiabatique et instantanée) conduisent à des résultats très similaires : en coupant le laser, on arrête simplement le processus de photoassociation, et la densité d'atomes condensés et non-condensés deviennent constantes. Il n'y a donc pas de reconversion des atomes non-condensés en atomes condensés, ce qui indique que les atomes non-condensés produits au cours de la photoassociation sont principalement des paires d'atomes « libres ». Par ailleurs, on observe bien une disparition de la composante liée dans la fonction d'onde de paire de la voie (1). En inspectant la courbe d'évolution des modes non-condensés, nous avons noté un petit saut de $0,3 \%$ environ. On peut interpréter ce saut comme la disparition des paires liées qui contribuaient aux modes non-condensés. Cela signifie que le processus de photoassociation forme environ $0,3 \%$ de molécules dans la voie (1).

Les modes non-condensés produits doivent être cherchés ailleurs que dans la partie liée de la fonction de paire de la voie (1). En comparant les fonctions d'onde de paire initiales et finales (voir la figure 6.11), on note des oscillations à grande distances ($> 10\,000$ u.a. $\approx 0,5 \mu\text{m}$) dans la composante Φ associée à la voie fondamentale. Ces ondes sont en fait produites dès le branchement du laser et se propagent très vite vers les grandes distances. Elles ne sont pas affectées par la coupure du laser car elles sont suffisamment loin de la zone de couplage avec la voie (2). Nous identifions ces ondes comme étant l'origine principale des atomes non-condensés. L'examen de ces ondes à grande distance appelle à quelques commentaires.

Tout d'abord, on remarque que leur amplitude est plus importante dans le cas de l'approximation des cumulants au premier ordre que dans l'approximation de la paire réduite, alors qu'on obtient plus d'atomes non-condensés dans le dernier cas. Dans le cas de l'approximation des cumulants, on sait que la densité d'atomes non-condensés est directement relié à la corrélation de paire Φ' :

$$\rho_{nc} = \int d^3\mathbf{r} |\Phi'(\mathbf{r})|^2 + \text{constante} \quad (6.1)$$

Si cette relation était encore vérifiée pour l'approximation de la paire réduite, on devrait donc trouver moins d'atomes non-condensés. Néanmoins, la relation entre corrélation et modes non-condensés est différente et inconnue dans l'approximation de la paire réduite. Les atomes non-condensés sont comptés différemment, ce qui explique que les résultats peuvent être différents entre les deux approximations.

On remarque ensuite que les ondes à grandes distances paraissent très petites comparées à la composante liée (voir la figure 6.11). On pourrait s'attendre à ce que leur contribution soit négligeable dans l'expression (6.1), par rapport à la contribution de l'état lié. D'une part, il faut faire attention que nous avons représenté les fonctions d'onde en échelle logarithmique, et par ailleurs l'élément de volume $d^3\mathbf{r} = 4\pi r^2 dr$ donne énormément plus d'importance à ces ondes à grandes distances qu'à l'état lié.

Les ondes se propageant à grande distance sont produites très tôt : elles apparaissent dès qu'on a branché le laser. On assiste en même temps à la montée du nombre d'atomes non-condensés. Très rapidement, ce nombre se stabilise autour de sa valeur finale. Le mécanisme de production des ondes semble donc lié au branchement du laser. En diminuant la vitesse de la rampe en intensité, nous avons vérifié que la production d'atomes non-condensés était également amoindrie. Il semble donc que la production initiale des paires corrélées soient liée à un effet non-adiabatique du couplage. Néanmoins, la rampe initiale d'intensité ne suffit pas : il faut maintenir l'intensité du laser pendant quelques temps pour qu'un nombre appréciable d'atomes non-condensés puissent se former. Des calculs avec un pulse laser très court (quelques dizaines de nanosecondes) n'ont pas mis en évidence de formation importante d'atomes non-condensés.

Enfin, il faut noter que les ondes à grande distance correspondent à des paires d'atomes corrélées, toutes dans le même état. Les atomes non-condensés ainsi produits ne sont pas des atomes complètement incohérents comme dans le cas d'un gaz thermique. Évidemment, ce résultat est une conséquence, voire une limitation, des approximations utilisées. Par construction, dans les deux approches, les atomes non-condensés ne peuvent provenir que des corrélations de la fonction d'onde de paire macroscopique Φ . Il est raisonnable de penser que dans la réalité, cette fonction d'onde de paire étant initialement macroscopiquement peuplée par rapport aux autres, c'est bien les corrélations de celle-ci qui sont à l'origine de la formation initiale d'atomes non-condensés dans le système. Néanmoins, les paires corrélées ainsi formées au sein du condensat se séparent dans toutes les directions, formant vraisemblablement une « explosion » d'atomes comme celles observées dans les expériences de Bosenova par résonances de Feshbach magnétique [Cornish2000, Donley2002]. Il est possible que les collisions à trois corps, ici négligées dans les deux approximations, modifient la nature et la cohérence des paires lors de cette expansion.

6.2.2 Photoassociation d'un condensat avec une rampe de fréquence

Par analogie avec les expériences de résonance de Feshbach où le champ magnétique est varié linéairement dans un sens ou dans l'autre, nous avons essayé de voir l'influence d'une rampe de fréquence du laser. Nous avons vu aux chapitres 2 et 4 que le formalisme décrivant le couplage avec un laser et celui décrivant une résonance de Feshbach magnétique sont le même, en faisant abstraction de l'émission spontanée. Nous avons donc d'abord effectué les calculs sans émission spontanée, afin de recréer artificiellement des conditions similaires aux résonances de Feshbach magnétiques. Par commodité, nous avons conservé les courbes de potentiel et les couplages du condensat de sodium étudié précédemment.

6.2.2.1 Rampe vers le haut

Considérons tout d'abord des rampes de Feshbach "vers le haut" : on fait remonter l'état lié résonant à travers le continuum (voir la figure 2.5). Cela signifie qu'on se place initialement au-delà de la résonance et qu'on diminue progressivement la fréquence du laser de manière à traverser la résonance. Dans ce cas, on peut dire intuitivement que les paires d'atomes condensés passent transitoirement dans l'état excité de la voie (1) en suivant l'état lié résonant puis se dissocient dans le continuum, formant un ensemble de paires d'atomes libres "chauds". C'est l'interprétation des expériences de Bosenova donnée par F.A. van Abeelen et B.J. Verhaar [vA1999].

Nous avons effectué les calculs pour différentes rampes, et nous trouvons effectivement que les atomes condensés sont convertis en atomes non-condensés à la traversée de la résonance (voir la figure 6.12). Par ailleurs, on observe que la voie (2) se peuple juste pendant une période transitoire au cours de laquelle la fonction d'onde de paire des atomes correspond à la forme de l'état quasi-lié présent dans le continuum. Ces comportements sont très semblables pour l'approximation des cumulants au 1er ordre et l'approximation de la paire réduite. Les deux approches semblent donc confirmer l'interprétation de F.A. van Abeelen et B.J. Verhaar.

Il s'agit d'un régime *a priori* très différent du régime de Gross-Pitaevskiï : ici le comportement de paire est manifeste lors de la création de paires d'atomes « chauds » peuplant les modes non-condensés. Néanmoins, si l'on résout les équations de Gross-Pitaevskiï couplées dans les mêmes conditions, on trouve des fractions finales d'atomes dans la voie (1) et d'atomes dans la voie (2) très voisines de celles obtenues avec les autres équations pour les atomes condensés et non-condensés de la voie (1). Physiquement, les atomes non-condensés de la voie (1) n'ont absolument rien à voir avec les atomes de la voie (2) dans les équations de Gross-Pitaevskiï. Néanmoins, les trois types d'équations semblent contenir la même structure mathématique conduisant à des fractions finales voisines, même si leur interprétation physique est différentes. Ce point a été analysé dans une série d'articles par le groupe d'Oxford [Köhler2004, Góral2004a]; les auteurs ont comparé plusieurs modèles à 2 corps et N corps et ont conclu qu'ils conduisaient tous à des fractions finales identiques dans le cas de rampes linéaires, même si la physique sous-jacente est complètement différente. Les fractions finales obtenues sont approximativement données par un modèle de type Landau-Zener [Nikitin1996]. Ce modèle à deux niveaux donne les probabilités de transition d'un niveau à l'autre, et par conséquent les fractions finales attendues :

$$\begin{aligned} X_{\text{condensé}} &= e^{-2\pi\delta_{LZ}} \\ X_{\text{non-condensé}} &= 1 - e^{-2\pi\delta_{LZ}} \end{aligned} \quad (6.2)$$

où l'exposant de Landau-Zener δ_{LZ} est donné par :

$$\delta_{LZ} = \frac{|W|^2}{\hbar \frac{\partial \Delta}{\partial t}} \quad (6.3)$$

où W est l'intensité du couplage entre les deux niveaux, et Δ est l'écart (dépendant du temps) entre les deux niveaux. Ici, le couplage entre les deux niveaux est $W = \rho w$, où ρ est la densité et w est défini par l'équation 4.37.

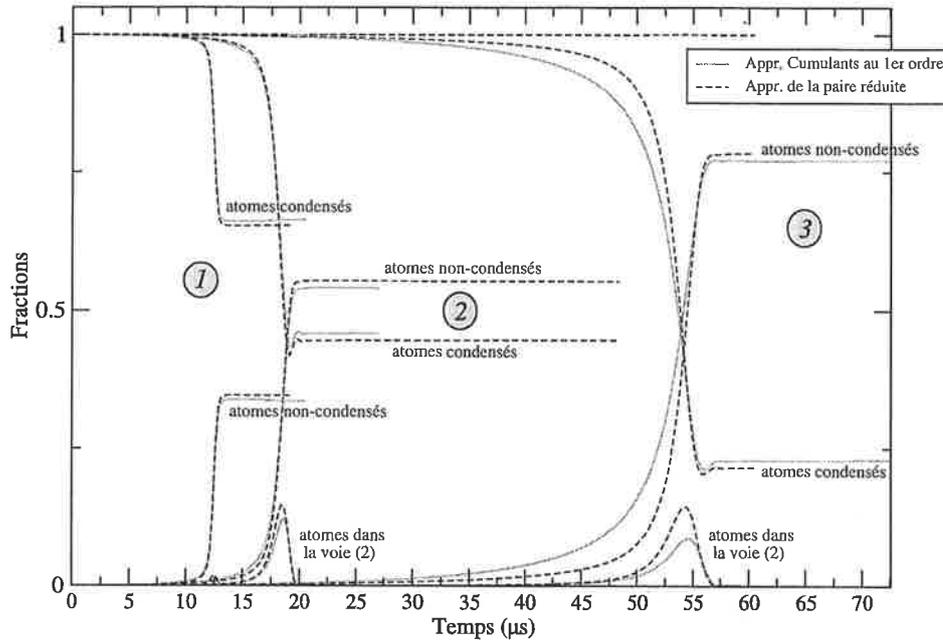


FIG. 6.12 – Fractions des différentes espèces d'atomes dans le système au cours du temps pour différentes rampes de fréquence « vers le haut » : (1) Intensité $I = 1200 \text{ W/cm}^2$; temps de montée de la rampe $T = 1 \times 10^{12} \text{ u.a.} \approx 25 \mu\text{s}$; variation de l'écart entre les potentiels $\Delta = 2,2404 \times 10^{-4} \rightarrow 2,2408 \times 10^{-4} \text{ u.a.}$; (2) $I = 140 \text{ W/cm}^2$; $T = 1 \times 10^{12} \text{ u.a.} \approx 25 \mu\text{s}$; $\Delta = 2,24059 \times 10^{-4} \rightarrow 2,24061 \times 10^{-4} \text{ u.a.}$; (3) $I = 140 \text{ W/cm}^2$; $T = 3 \times 10^{12} \text{ u.a.} \approx 75 \mu\text{s}$; $\Delta = 2,24059 \times 10^{-4} \rightarrow 2,24061 \times 10^{-4} \text{ u.a.}$ Dans tous les cas, on n'observe pas de différence majeure entre l'approximation des cumulants au 1er ordre (traits pleins) et l'approximation de la paire réduite (traits pointillés)

Il semblerait donc qu'il y ait un certain caractère universel pour les rampes de Feshbach : il existe toute une classe de modèles prédisant les mêmes fractions finales. Des comparaisons entre ces prédictions et l'expérience ont été effectuées [vA1999, Köhler2004]. Elles trouvent un bon accord avec l'expérience pour certaines résonances pas trop fortes (par exemple la résonance étroite à 853 gauss dans le sodium 23 [Stenger1998]), mais sont nettement en désaccord pour d'autres résonances (par exemple la résonance plus large à 907 gauss [Stenger1998], où la résonance à 155 gauss dans le rubidium 85 [Cornish2000]). Le fait que ces différents modèles sont en bon accord avec l'expérience dans certains cas ne permet pas de les valider les différents mécanismes internes sur lesquels ils sont basés. Le caractère apparemment universel des rampes de Feshbach empêche de discriminer les différents modèles.

Ce résultat est confirmé par nos calculs. D'une part, l'approximation de la paire réduite semble se rattacher à la classe de modèles mise en évidence par le groupe d'Oxford, puisqu'elle prédit les mêmes fractions finales que les autres modèles. D'autre part, le fait que nous utilisons des potentiels réalistes dans les calculs n'a pas d'incidence sur le résultat final. Ce type de phénomènes semble donc particulièrement insensible au détail microscopique de l'interaction.

6.2.2.2 Rampe vers le bas

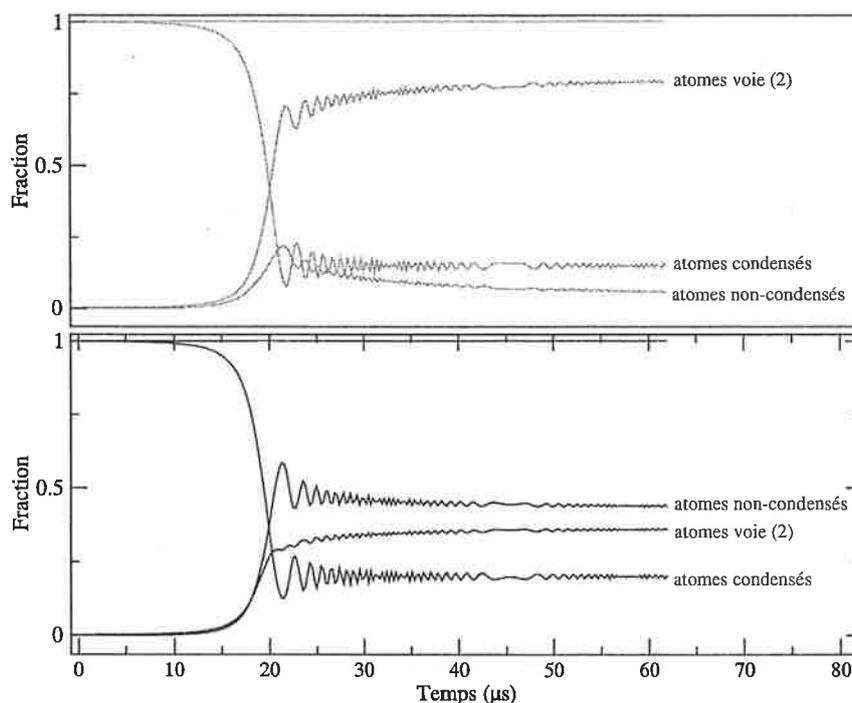


FIG. 6.13 – Évolution des différentes espèces d'atomes (atomes condensés et non-condensés dans la voie (1) et atomes dans la voie (2)). Le graphe du haut correspond aux résultats dans l'approximation des cumulants au premier ordre, et le graphe du bas aux résultats dans l'approximation de la paire réduite.

Intéressons-nous maintenant aux rampes “vers le bas”. Dans ce cas, on fait descendre l'énergie des paires d'atomes condensés et on les transforme progressivement en paires liées. C'est la méthode utilisée pour obtenir les premiers condensats moléculaires à partir d'un condensat atomique à l'aide de résonances de Feshbach magnétiques. Dans le cas d'une résonance de photoassociation, cela signifie qu'on part en deçà de la résonance et on augmente progressivement la fréquence du laser.

L'équipe d'Oxford a montré que le caractère universel observé pour les rampes de Feshbach vers le haut se retrouve également dans les rampes de Feshbach vers le bas [Góral2004a]. Pour des densités suffisamment faibles, les fractions finales d'atomes condensés et de molécules condensées sont toujours données par une formule de type Landau-Zener :

$$\begin{aligned} X_{\text{atomes}} &= e^{-2\pi\delta_{LZ}} \\ X_{\text{molécules}} &= 1 - e^{-2\pi\delta_{LZ}} \end{aligned} \quad (6.4)$$

où δ_Z est encore donnée par l'expression (6.3).

Nos calculs par la méthode des cumulants au premier ordre confirment cet analyse : l'utilisation de potentiels réalistes décrivant précisément l'interaction microscopique donne les mêmes fractions finales que les calculs avec les équations de Gross-Pitaevskiï couplées. Le phénomène semble donc encore largement indépendant des détails microscopiques. On a représenté sur la figure 6.13 l'évolution des différentes espèces d'atomes au cours du temps. Dans l'approximation des cumulants, les atomes non-condensés n'apparaissent que transitoirement lors de la traversée de la résonance. Les fractions finales d'atomes condensés dans la voie (1) et d'atomes dans la voie (2) correspondent approximativement aux fractions données par les équations de Gross-Pitaevskiï couplées. On a représenté les fractions finales en fonction de la durée de la rampe sur le graphe

du haut de la figure 6.14. On voit qu'il y a un bon accord entre les fractions prédites par la méthode des cumulants et celles prédites par Gross-Pitaevskiï. On peut noter que ces prédictions s'éloignent de celles données par Landau-Zener, et ce d'autant plus que la rampe est lente. Ceci est un effet dû à la densité du condensat : pour de plus faibles densités, les fractions finales se rapprochent davantage des prédictions de Landau-Zener.

Les résultats numériques que nous avons obtenus dans l'approximation de la paire réduite nous ont tout d'abord paru très étonnants. La fraction condensée reste très proche de celle donnée par l'approximation des cumulants au premier ordre ou les équations de Gross-Pitaevskiï couplées. En revanche, les fractions d'atomes non-condensés dans la voie (1) et d'atomes dans la voie (2) sont différentes. On observe une population beaucoup plus faible dans la voie (2), alors qu'un nombre important d'atomes non-condensés est produit (voir le graphe du bas de la figure 6.13). Les fractions finales ont été reportées sur la figure 6.14 pour différentes durées de la rampe. On observe un maximum de population dans la voie (2) d'environ 40 % pour une durée de rampe de 40 μs . En revanche, le nombre d'atomes non-condensés produits croît pour des rampes de plus en plus lentes. Ici encore se pose la question de l'origine des atomes non-condensés.

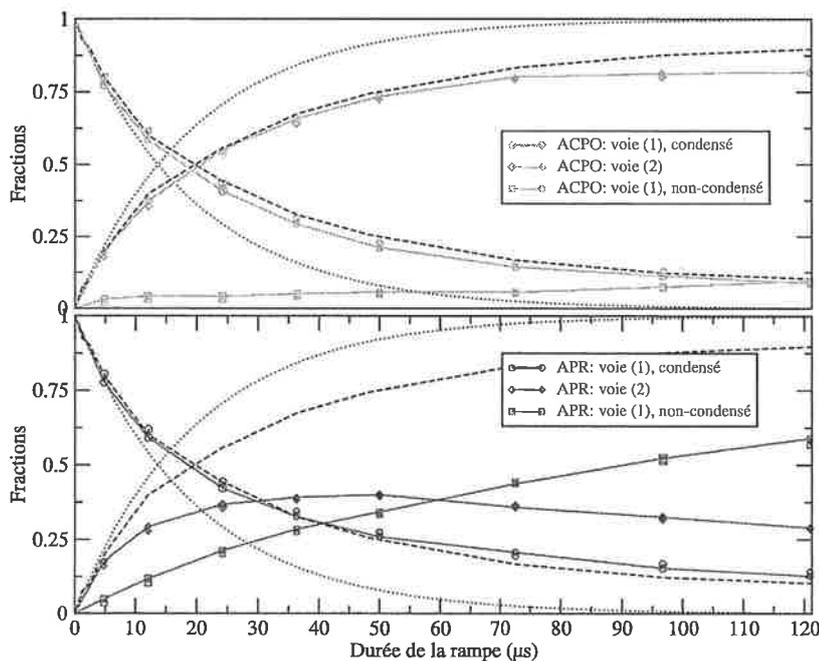


FIG. 6.14 – Fractions finales des différentes espèces d'atomes dans le système en fonction de la durée de la rampe de Feshbach. Les calculs sont effectués pour une densité de $\rho = 4 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$, une intensité $I = 140 \text{ W/cm}^2$ et l'écart entre les potentiels Δ varie de $2,24061 \times 10^{-4}$ à $2,24059 \times 10^{-4}$ u.a. En pointillés, on a représenté les fractions prédites par les formules de Landau-Zener (6.4). En trait tireté, on a représenté les prédictions des équations de Gross-Pitaevskiï couplées. Le graphe du haut correspond aux résultats dans l'approximation des cumulants au premier ordre, et le graphe du bas aux résultats dans l'approximation de la paire réduite.

Origine des atomes non-condensés - nature des molécules formées

En inspectant les fonctions d'onde de paires (représentées sur la figure 6.15), nous n'avons pas mis en évidence d'ondes à grande distance, comme dans le cas de la photoassociation avec un laser continu. En revanche, on a toujours la présence d'une composante faiblement liée dans la fonction d'onde de la voie (1), s'étendant jusqu'à 500 unités atomiques environ (25 nm). Cette caractéristique est également présente dans l'approximation des cumulants au premier ordre. Elle

est même plus prononcée dans ce cas, car l'amplitude du lobe lié est plus importante que dans l'approximation de la paire réduite. Il est difficile à ce stade de conclure sur l'origine des atomes non-condensés.

Nous avons donc utilisé la même technique que précédemment : débrancher adiabatiquement le laser pour observer si les modes non-condensés subsistent ou non. On constate alors que les atomes non-condensés et les atomes de la voie (2) disparaissent, alors que le condensat retrouve sa densité initiale. Il semble donc que les atomes non-condensés observés dans ce cas soient uniquement dûs aux paires liées dans la voie (1). Il n'y a donc pas de différence physique fondamentale entre les deux approches : toutes deux prédisent une conversion réversible du condensat atomique en condensat moléculaire. Néanmoins, la description du condensat moléculaire diffère dans les deux cas : dans l'approximation des cumulants, l'état moléculaire possède principalement une composante sur la voie (2) et une faible composante sur la voie (1), alors que dans l'approximation de la paire réduite, la composante sur la voie (1) est plus importante, et ce d'autant plus que l'on traverse la résonance à faible vitesse. Il y aurait donc un accord sur le nombre de molécules formées, mais un désaccord sur leur nature, entre les deux approximations.

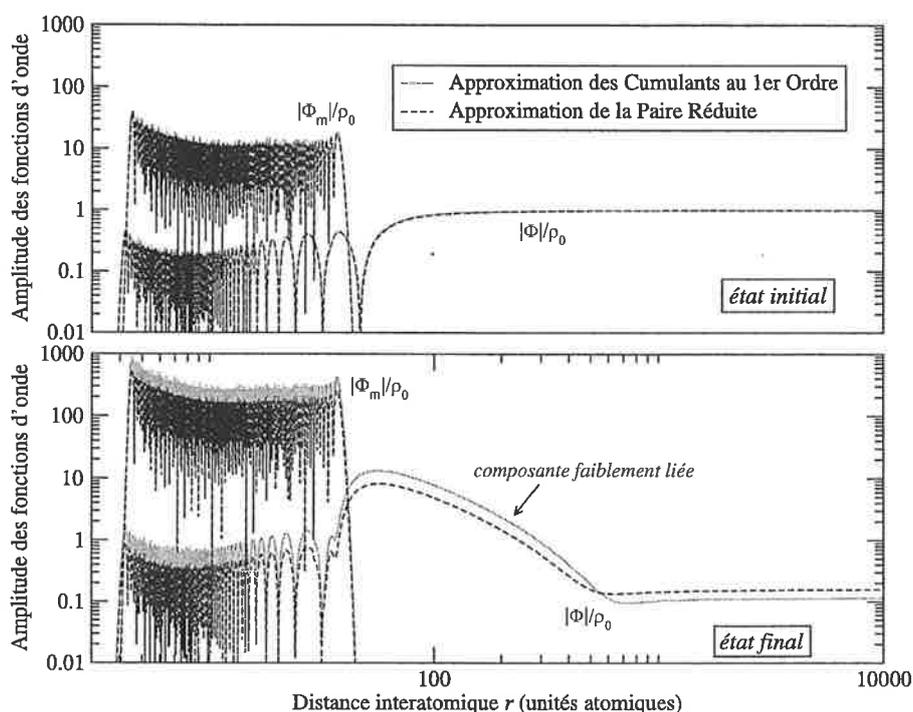


FIG. 6.15 – Fonctions d'onde de paire initiales (graphe du haut) et finales (graphe du bas) après une rampe de fréquence pour l'approximation des cumulants (traits pleins) et l'approximation de la paire réduite (traits en tiretés). On a représenté les modules des fonctions $\Phi(r)$ et $\Phi_m(r)$ divisés par la densité initiale du condensat ρ_0 . La durée de la rampe est de $100 \mu\text{s}$ environ, l'écart entre les potentiels étant balayé de $2,24061 \times 10^{-4}$ à $2,24059 \times 10^{-4}$ u.a. pour une intensité de 140 W/cm^2 . Notons qu'une échelle logarithmique a été utilisée pour les deux axes.

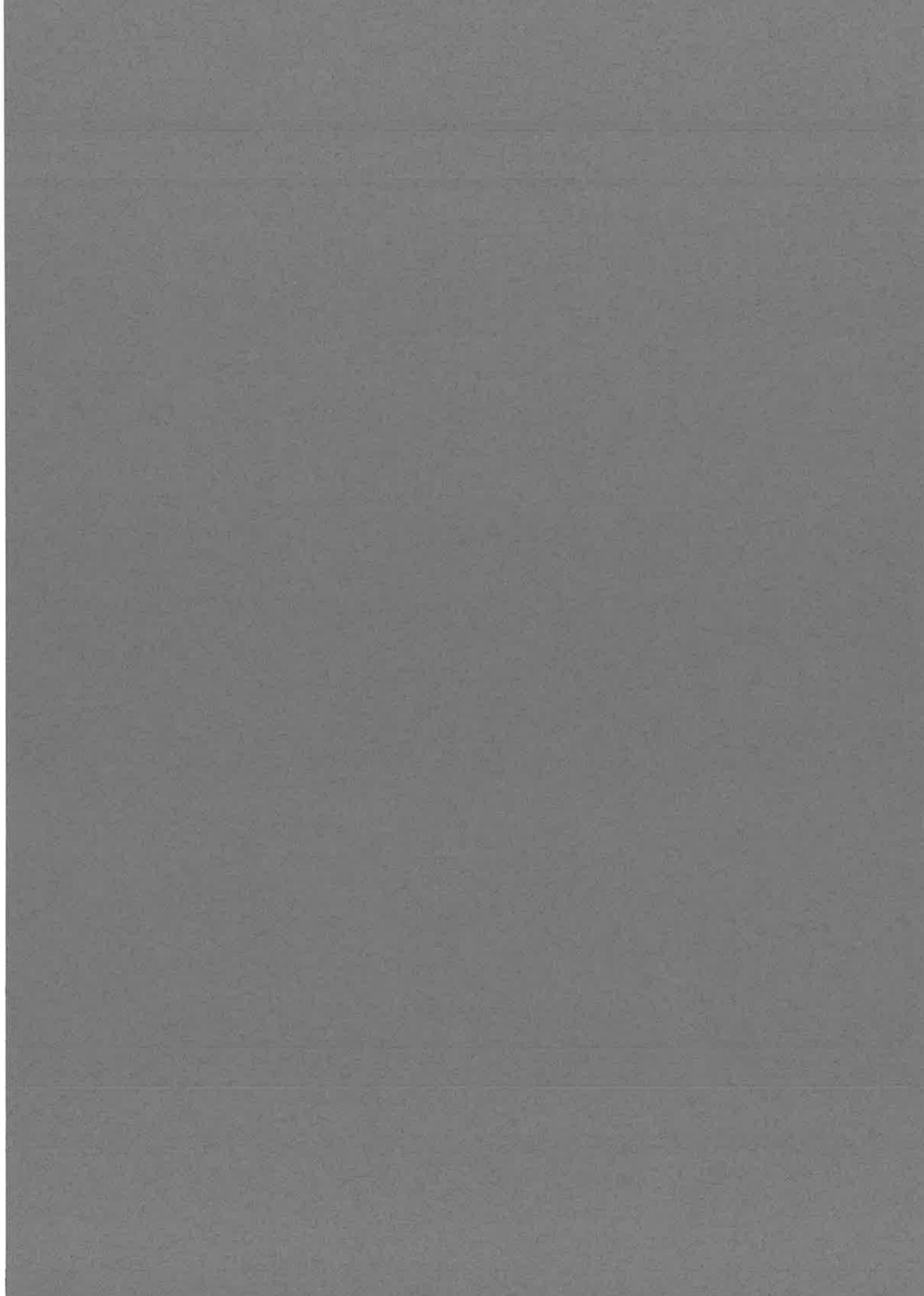
Pertinence des calculs vis-à-vis des expériences de résonance de Feshbach

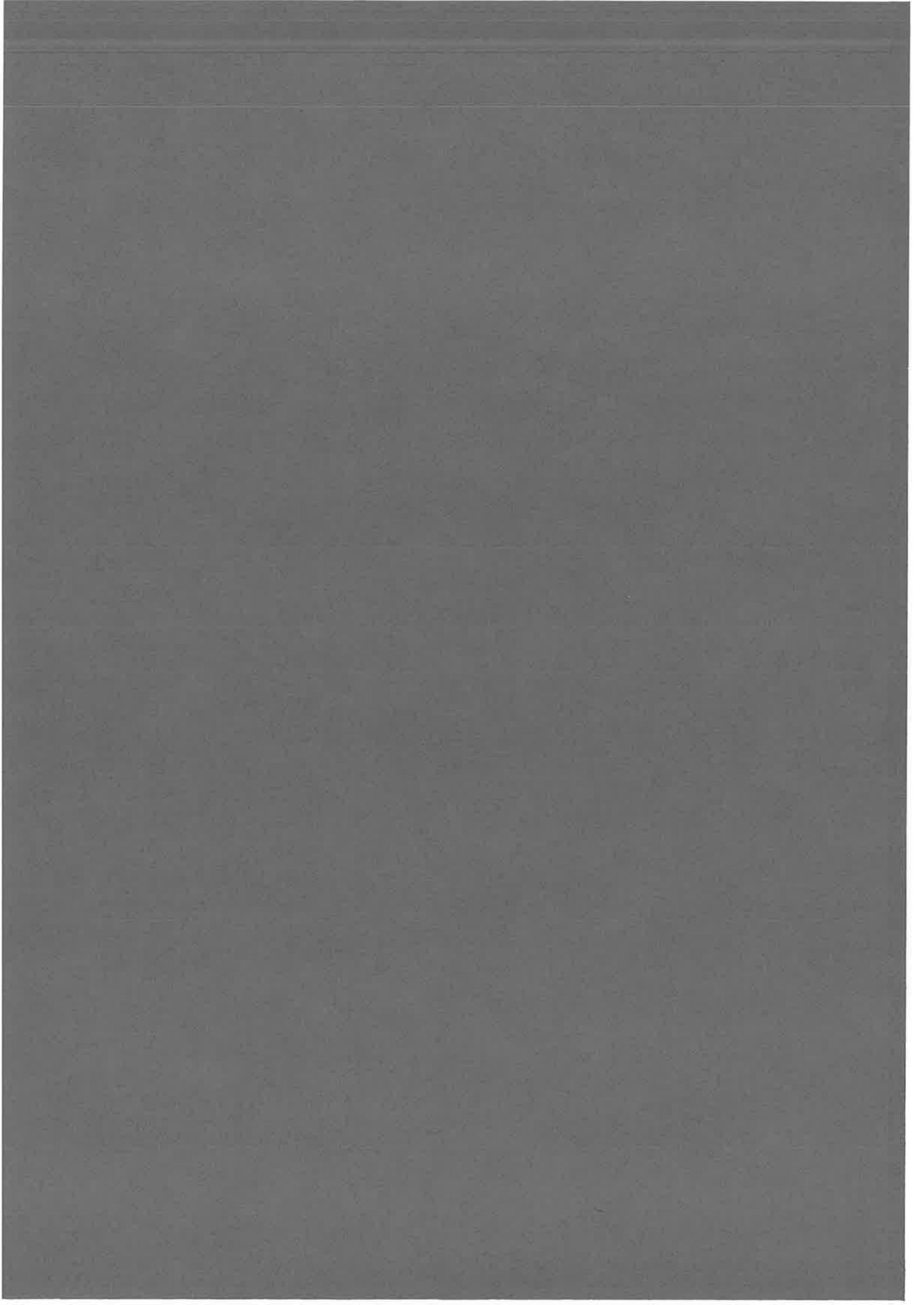
Ces calculs ne tiennent pas compte de l'émission spontanée. Ils sont donc davantage représentatifs de résonances de Feshbach magnétiques effectives. Nous n'avons pas effectué les calculs pour des paramètres réalistes d'une véritable résonance de Feshbach magnétique, mais nous pen-

sons que les résultats obtenus précédemment sont assez généraux et s'observent pour tous les types de résonances. Ceci est corroboré par le fait que la fraction condensée prédite dans tous les modèles suit toujours approximativement la prédiction de Landau-Zener, qui ne dépend que de quelques paramètres, comme le montre la formule (6.3).

En revanche, les expériences ont conduit à des pourcentages de condensat moléculaire relativement faibles, incompatibles avec les fractions obtenues dans les calculs précédents. On pense actuellement que ces faibles rendements s'expliquent par la nature fragile des molécules formées. La figure 6.15 montre le caractère très peu lié de ces molécules, qui s'étendent à de très grandes distances. Ces molécules sont donc fortement susceptibles de se briser au cours de collisions avec d'autres atomes ou molécules. Un argument important en faveur de cette interprétation est que les expériences similaires de rampe de Feshbach dans les gaz de Fermi dégénérés ont conduit à des rendements bien meilleurs, alors qu'il a été montré que ces molécules d'atomes fermioniques sont beaucoup plus stables au cours des collisions, du fait du principe d'exclusion de Pauli [Petrov2004].

Les modèles présentés ici ne tiennent pas compte de ce type de collisions, et ne peuvent donc pas rendre compte des faibles rendements observés dans le condensat. Ils est donc vraisemblable qu'ils ne décrivent que le processus de formation initial des molécules. Il faut néanmoins noter que l'approximation de la paire réduite est un premier pas dans la prise en compte des collisions atomes-molécules, de par la présence du champ moyen à courte distance dans l'équation (4.52). On peut penser qu'un calcul dans le cadre plus général de l'approximation de paire (3.139) pourrait rendre compte de ces collisions sous forme de champ moyen.





6.3 **Projet d'article**

Photoassociation and optical Feshbach resonances in an atomic Bose-Einstein condensate : treatment of correlation effects

Pascal Naidon* and Françoise Masnou-Seeuws

Laboratoire Aimé Cotton, CNRS, Bât. 505 Campus d'Orsay, 91405 Orsay Cedex, France.

Abstract

The aim of the present paper is to investigate the influence of short range correlation effects in the description of coupled atomic-molecular condensates. By considering non-condensate modes, it completes previous work [Phys. Rev. A **68** 033612 (2003)] which developed a model generalizing to two-channel problems the Cherny-Shanenkov approach [Phys. Rev. E **62** 1646 (2000)] where the finite size of the interaction potentials is explicitly introduced. The pair dynamics is described by pair wave functions, and we compare with calculations using the first order cumulant approach introduced by Köhler and Burnett [Phys. Rev. A **65** 033601 (2002)]. Both methods, as well as coupled Gross Pitaevski equations, are used to compute the depletion of a sodium condensate in the presence of a cw photoassociation laser. The results are equivalent at low intensities but for $I \geq 10 \text{ kW/cm}^2$ significant differences appear, in particular in the proportion of non-condensed atoms.

PACS numbers:

*Electronic address: pascal.naidon@lac.u-psud.fr

I. INTRODUCTION

The possibility to create molecular condensates opens a new research road. Major applications are expected, including test of fundamental symmetries, determination of fundamental constants through molecular spectroscopy with unprecedented accuracy, creation of molecular lasers and invention of a coherent super-chemistry at ultralow temperatures. Since direct laser cooling or sympathetic cooling appear more difficult for molecules than for atoms, many experimental groups have worked on procedures to transform an atomic quantum degenerate gas into a molecular condensate. During the last two years a wealth of new experimental results have been published concerning the formation of molecules in a degenerate gas condensates, starting either from an atomic Bose-Einstein condensate (BEC) [1–5] or from an atomic Fermi gas [6–12].

In the first case, it seems that the most successful scheme involves an adiabatic sweep of a Feshbach resonance achieved by varying in time the intensity of an homogeneous external magnetic field applied to the atomic condensate. An alternative possibility would consist in varying the frequency of the laser in a photoassociation experiment, therefore sweeping across an optically induced Feshbach resonance. Such resonances have already been discussed in theoretical papers [13–15] and explored in recent experiments [16, 17]. The introduction of time-dependent laser frequencies opens the way to experiments manipulating condensates with chirped laser pulses, and more generally to the development of control experiments in this domain. In particular, since Feshbach resonances usually create molecules in an excited vibrational level of the ground state potential curve, usually short-lived due to collisional quenching, making the molecules in a very short time would allow to design a series of pulses shaped to transfer quickly the population to the ground vibrational level of the same state [18]. The use of pulses could therefore be an answer to the problem of the short lifetime of molecules, in particular bosonic dimers.

Several theoretical papers [19–21] have discussed the possibilities offered by chirped laser pulses to control the photoassociation process in an assembly of cold atoms and to optimize the formation of ultracold molecules. Recent work [20] has predicted an important population transfer to several bound levels of the excited molecule, in an energy-range defined

by a photoassociation window which markedly depends upon the shape of the potentials and upon the spectral distribution of the laser pulse around the central frequency. In other words, the variation of the laser frequency may sweep a large number of optically-induced Feshbach resonances. The model is very sensitive to details of the molecular dynamics, and a correct description of the molecular potentials, both in the initial channel of two colliding atoms and in the final channel of a bound molecule in an excited electronic state, as well as a precise knowledge of the time-dependent radiative coupling must therefore be introduced. An important result of Ref.[20] is that molecules can also be formed with a large probability in the last bound levels of the ground electronic state, thus avoiding the problem of stabilization of the excited photoassociated molecules. Finally, the long range nature of such bound molecules should be stressed.

In case of a condensate, the efficiency of chirped laser pulses is presently unknown, and a theoretical approach must be developed to achieve modelling of the incoming experiments.

The theoretical models capable to describe a mixed atomic and molecular condensate, formed by magnetic or optically induced Feshbach resonances, must go beyond the mean-field approximation, with two coupled Gross-Pitaevski equations. Indeed, in order to reproduce the observed [1] damped oscillations between the atomic and the molecular components, the significant role of correlations should be introduced [22–25] at a satisfactory level of approximation. In case of an isolated resonance, it may be sufficient to describe the microscopic quantum dynamics by effective operators such as contact potentials, involving parameters fitted on two-body calculations. However, when several resonances are involved, a more explicit treatment of the microscopic dynamics is necessary. Two methods are presently available :

- In a series of papers, [25–28] the Oxford group has developed a model, based on a truncation of the expansion of correlation functions in terms of noncommutative cumulants [29], and hereafter referred to as first order cumulant approximation. The method is approximating the atom-atom interaction potential by a separable potential. It has successfully interpreted the already mentioned damped oscillations observed in the experiment of Ref.[1] for a ^{87}Rb condensate exposed to a time-dependent magnetic field pulse, sweeping a Feshbach resonance. Recent calculations

of T. Gasenzer [30] use the same method to analyze the photoassociation in a ^{23}Na condensate, in the experiment of Mc Kenzie *et al*, with a cw laser of variable intensity. The interpretation is successful, and saturation effects are predicted at large intensities, beyond the range (up to 1 kW/cm^2) considered in the experiment.

- In a previous paper [31], hereafter referred to as paper I, we have revisited the treatment of photoassociation and Feshbach resonances by introducing another approximation, hereafter referred to as pair wave approximation. This work generalizes to two coupled channels the approach of Cherny and Shanenko [32] where the finite size of the potential is introduced. Besides the individual dynamics of the condensed and non-condensed atoms, their pair dynamics is explicitly treated by means of pair wave functions. When the time-scale of this pair dynamics is short relative to the time-scales associated to the atomic, to the molecular condensate and to their coupling, the set of coupled equations reduces to the usual mean field coupled Gross-Pitaevski equations. Application to the interpretation of the photoassociation experiment in a sodium condensate of Ref.[33] was also given, showing that under those particular experimental conditions the mean-field approximation is still valid.

As a first step in the direction of modelling experiments in an atomic condensate using chirped laser pulses, the aim of the present paper is to go further in the implementation of the pair wave approximation, and to compare it with the first order cumulant approach and with mean field approximation. We shall apply the three methods to the description of a photoassociation reaction in a condensate, the example chosen being the sodium condensate of Ref.[33], which decays when illuminated by a cw photoassociation laser. We shall analyze the optically induced Feshbach resonance by varying the intensity of the laser, and we shall compare the results obtained with the three methods to assess the importance of correlations. Sweeping across the resonance will be discussed in a following paper.

The paper is organized as follows:

- In Section II, we discuss the necessity of going beyond contact potentials and we present two methods to describe correlations in a condensate using realistic poten-

tials, the first order cumulant approximation (getting rid of the separable potential constraint) and the reduced pair wave approximation.

- In Section III, we give the coupled equations for a two-channel treatment of photoassociation in a condensate, using the two models described in Sec.II.
- Section IV describes the numerical methods used in the present work.
- In Section V, we present and discuss the results of our calculations for photoassociation in a sodium condensate, in the conditions of the experiment of Ref [33].
- Finally, Section VI is the conclusion.

Atomic units will be used except when otherwise stated, the length unit being $a_0 = 0.529177 \cdot 10^{-10}\text{m}$

II. DIFFERENT METHODS TO TREAT THE CONDENSATE DYNAMICS

A. Methods with a contact potential

In many theoretical treatments of the condensed Bose gas [34, 35], the interacting potential U is replaced by an effective contact potential of the form

$$U_\delta(\mathbf{r}) = \frac{4\pi\hbar^2 a}{m} \delta^3(\mathbf{r}), \quad (1)$$

where a is the scattering length associated to the potential. The physical argument is that at very low collision energies, the detailed structure of the potential is not resolved at the scale of the typical de Broglie wavelength associated to the relative motion. It is expected that the physical scattering length a is well reproduced in the Born approximation[33]

$$a_{Born}(U_\delta) = \frac{m}{4\pi\hbar^2} \int d\mathbf{r} U_\delta(\mathbf{r}) = a, \quad (2)$$

which allows the use of perturbative many-body treatments. To prevent ultraviolet divergences related to the zero-range nature of the contact potential, one must regularize the delta function in Eq.(1) using a pseudopotential [36], or renormalize the coupling constant of the contact potential [37]. In spite of their simplicity, effective contact potentials have been

successful for the to description of many situations, in particular the damped oscillations in a mixed condensate already cited [23, 24].

However, since the effective contact potentials eliminate the details of the real potential, some physical quantities, such as the kinetic and interaction energies of the gas [38] cannot be predicted. Similarly, the presence of bound levels in the potential is not taken into account, although such the last bound levels can play an important role in the dynamics of photoassociation [20]. The details of the potentials will be particularly important when photoassociation is using chirped laser pulses, since, when the frequency is swept, the potential structure is explored on a wide range of internuclear distances. For these strongly time-dependent situations, we expect that effective contact potentials may be inadequate and a realistic interaction potential should be implemented.

B. Methods using a realistic potential

The potentials describing the interaction between two atoms usually exhibit a repulsive wall at short relative distances r . This wall prevents the colliding atoms to come closer than a few Bohr radii, the scattering wave function vanishing exponentially for $r \leq r_w$. Because of the wall most potentials are singular, in the sense that the Fourier transform of $U(r)$ is not defined. A perturbation treatment within the Born approximation is inadequate, since the scattering length

$$a_{Born} = \frac{m}{4\pi\hbar^2} \int d\mathbf{r} U(r) \rightarrow \infty, \quad (3)$$

is infinite due to the divergence of the r.h.s. integral in (3) at short distances. In order to determine the scattering length, and to treat the two-body dynamics, it is necessary to solve the full Schrödinger equation. Similarly, in the many-body problem, the usual perturbative theories are not appropriate because they are valid only for soft potentials satisfying the Born approximation. One needs therefore to devise a non-perturbative many-body treatment which can be used with realistic potentials.

The key idea to construct such a model (which we will refer to as a *strong-interaction model*) is to make sure that the correlations induced by the interaction are taken into account and tend to zero at short distances r [39]. The problem of the hard wall can be bypassed provided in all equations the potential is multiplied by a correlation function vanishing at

small distances and therefore suppressing the divergence. This suggests a new potential $\mathcal{U}(r) = U(r)\varphi(r)$ which is the bare potential renormalized by some correlation function φ , asymptotically equal to 1. The function $\varphi(r)$ is expected to be the solution of the stationary two-body Schrödinger equation in the region where $U(r)$ is not negligible, so that the integral of \mathcal{U} leads to the correct scattering length

$$a_{\mathcal{U}} = \frac{m}{4\pi\hbar^2} \int d\mathbf{r} U(r)\varphi(r) = a \quad (4)$$

In the limit of a soft potential inducing a weak correlation $\varphi \approx 1$, Eq.(4) retrieves the perturbative expression (3).

Therefore, in the many-body problem, one would expect that the strong-interaction models will have essentially the same structure as the soft-interaction models with the replacement $U(r) \rightarrow \mathcal{U}(r)$. This was illustrated in Refs. [32, 40] where strong-interaction Bogoliubov equations were derived, exhibiting the in-medium effective interaction \mathcal{U} . However, the two replacements $U(r) \rightarrow U_{\delta}(r)$ and $U(r) \rightarrow \mathcal{U}(r)$ are not equivalent. Firstly, the Fourier transform of the effective in-medium potential $\mathcal{U}(r)$ has a momentum dependence, whereas the contact potential U_{δ} is constant in momentum space : some differences might therefore arise from high-momenta, *ie* short distances. Secondly, in the time-dependent case, the correlation function should be time-dependent and complex-valued, leading to a *time-dependent complex-valued* effective interaction $\mathcal{U}(r, t)$. This feature is not present in the soft-interaction models where the contact interaction U_{δ} remains constant and real. This is another indication that in time-dependent cases, models based either on a delta interaction or on an explicit description of the short-range interaction might differ. In all cases, the time-dependent structure of short-range correlations in Bose-Einstein condensates is widely unknown and deserves further investigation.

C. General equations

We shall derive some general equations suited for a realistic interaction. Let us first consider a Bose-condensed atomic gas with only one scattering channel. The dynamics of this many-body system is given in the second-quantization formalism by the Heisenberg

equation of motion

$$i\hbar \frac{\partial \hat{\psi}}{\partial t}(\mathbf{x}, t) = H_{\mathbf{x}} \hat{\psi}(\mathbf{x}, t) + \int d^3 \mathbf{z} \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{z}, t) U(|\mathbf{z}-\mathbf{x}|) \hat{\psi}(\mathbf{z}, t) \hat{\psi}(\mathbf{x}, t), \quad (5)$$

$$H_{\mathbf{x}} = -\frac{\hbar^2 \nabla_{\mathbf{x}}^2}{2m} + V(\mathbf{x}) \quad (6)$$

where $\hat{\psi}(\mathbf{x})$ is the field operator annihilating an atom at point \mathbf{x} , $H_{\mathbf{x}}$ is the one-body Hamiltonian describing the motion of atoms in an external potential V , and U is the single-channel interacting potential between two atoms (because of the very low density, we neglect interactions involving more than two atoms). In the $U(1)$ symmetry-breaking picture [35], the condensate wave function Ψ is given by the quantum average of the field operator

$$\Psi(\mathbf{x}, t) = \langle \hat{\psi}(\mathbf{x}, t) \rangle$$

and therefore obeys the equation

$$i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t}(\mathbf{x}, t) = H_{\mathbf{x}} \Psi(\mathbf{x}, t) + \int d^3 \mathbf{z} U(\mathbf{z}-\mathbf{x}) \langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{z}, t) \hat{\psi}(\mathbf{z}, t) \hat{\psi}(\mathbf{x}, t) \rangle. \quad (7)$$

Eq. (7) is a one-body Schrödinger equation with an extra term corresponding to the influence of surrounding atoms. According to Eq.(60) in the appendix, assuming that we may neglect the influence of the non-condensed atoms colliding with the condensate atoms, we can write

$$\langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{z}, t) \hat{\psi}(\mathbf{z}, t) \hat{\psi}(\mathbf{x}, t) \rangle \approx \Psi(\mathbf{z}, t) \Phi(\mathbf{z}, \mathbf{x}, t) \quad (8)$$

where we introduce the quantum average:

$$\Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) = \langle \hat{\psi}(\mathbf{x}, t) \hat{\psi}(\mathbf{y}, t) \rangle$$

This anomalous average is related to the pair wave function of two condensate atoms (see Appendix). Eq. (7) becomes

$$i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t}(\mathbf{x}, t) = H_{\mathbf{x}} \Psi(\mathbf{x}, t) + \int d^3 \mathbf{z} \Psi^*(\mathbf{z}, t) U(\mathbf{z}-\mathbf{x}) \Phi(\mathbf{z}, \mathbf{x}, t), \quad (9)$$

and can cast it in the form of a Gross-Pitaevskii equation

$$i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t}(\mathbf{x}, t) = \left(H_{\mathbf{x}} + \frac{4\pi\hbar^2 a_M(\mathbf{x}, t)}{m} |\Psi(\mathbf{x}, t)|^2 \right) \Psi(\mathbf{x}, t)$$

by introducing a time and position dependent scattering length $a_M(\mathbf{x}, t)$, hereafter called the mean-field scattering length, [50]

$$a_M(\mathbf{x}, t) = \frac{m}{4\pi\hbar^2} \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{z}-\mathbf{x}) \frac{\Psi^*(\mathbf{z}, t)\Phi(\mathbf{z}, \mathbf{x}, t)}{|\Psi(\mathbf{x}, t)|^2\Psi(\mathbf{x}, t)} \quad (10)$$

In the usual Gross-Pitaevskii theory, the pair wave function Φ is assumed to be uncorrelated: $\Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) \approx \Psi(\mathbf{x}, t)\Psi(\mathbf{y}, t)$, which leads to $a_M(\mathbf{x}, t) = \frac{m}{4\pi\hbar^2} \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{z}-\mathbf{x}) = a_{Born}$, where a_{Born} is defined in Eq.(3). If the true scattering length a of the potential is close to its Born approximation a_{Born} , then we retrieve the standard Gross-Pitaevskii equation for Ψ . However, this is not the case for realistic molecular potentials with a repulsive wall, for which the Born approximation $a \approx a_{Born}$ cannot be satisfied, since $a_{Born} \rightarrow +\infty$. We therefore have to keep the correlation contained in Φ , so that its correct structure at short distance regularizes the singular character of the potential U and leads to a value of the mean-field scattering length close to the physical value a .

The next step is to determine $\Phi(\mathbf{z}, \mathbf{x}, t)$. Starting from the Heisenberg equation (5), one can derive the exact equation for Φ :

$$i\hbar \frac{\partial \Phi}{\partial t}(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) = (H_{\mathbf{x}} + H_{\mathbf{y}} + U(\mathbf{x}-\mathbf{y}, t))\Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) + \left\{ \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{z}-\mathbf{y}) \langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{z}, t) \hat{\psi}(\mathbf{z}, t) \hat{\psi}(\mathbf{x}, t) \hat{\psi}(\mathbf{y}, t) \rangle \right\} + \{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\} \quad (11)$$

Eq.(11) is a two-body Schrödinger equation with an extra term corresponding to the influence of the medium. In order to take this term into account, we have to determine the quantum average $\langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{z}) \hat{\psi}(\mathbf{z}) \hat{\psi}(\mathbf{x}) \hat{\psi}(\mathbf{y}) \rangle$. In fact, since Eqs. (9) and (11) are the first equations of an infinite set of equations coupling each quantum average to higher-order quantum averages, we would like to truncate this set and restrict the dynamics to the condensate wave function Ψ and the pair wave function Φ . For that purpose, we need to approximate the average $\langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{z}) \hat{\psi}(\mathbf{z}) \hat{\psi}(\mathbf{x}) \hat{\psi}(\mathbf{y}) \rangle$ in terms of Ψ and Φ .

D. First order cumulant approximation

1. Approximation

A systematic method to truncate the infinite set of equations, named the cumulant method, has been proposed by J. Fricke [29]. This method redefines the different quantum averages in terms of quantities called noncommutative cumulants (see Appendix), which are constructed in such a way that for a sufficiently weak interaction, they decrease towards zero when the order is increasing. It is therefore natural to neglect, in the infinite set of equations, all the cumulants of order larger than a given order n . In this way, a consistent truncated set of equations can be obtained for any desired order n .

Doing so, one assumes that the system is close to the ideal gas. However, this assumption might fail for realistic interactions which can induce strong changes in the correlation structure at short distances. To extend the validity of the cumulant method, T. Köhler and K. Burnett [26] have devised a modified version of the truncation scheme where the free evolution of the cumulants of order $n + 1$ and $n + 2$ is taken into account. This renormalizes the interaction in the first n equations, in a way similar to the regularization we discussed in Section II B. As a consequence, this extended cumulant approach is technically applicable to realistic potentials, although it has been used so far with effective separable potentials in the context of atomic and molecular condensates [28, 30]. We show below how it can be applied to realistic potentials.

Writing the cumulant equations to the first order, one finds Eqs.(9) and (11) with the following approximation:

$$\langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{z}, t) \hat{\psi}(\mathbf{z}, t) \hat{\psi}(\mathbf{x}) \hat{\psi}(\mathbf{y}, t) \rangle \approx \Psi^*(\mathbf{z}, t) \Phi(\mathbf{z}, \mathbf{y}, t) \Psi(\mathbf{x}, t) \quad (12)$$

The resulting coupled equations between the condensate wavefunction and the pair wavefunction can be written as follows [51]

$$i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t}(\mathbf{x}, t) = \left(H_{\mathbf{x}} + M(\mathbf{x}, t) \right) \Psi(\mathbf{x}, t) \quad (13)$$

$$i\hbar \frac{\partial \Phi}{\partial t}(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) = \left(H_{\mathbf{x}} + H_{\mathbf{y}} + U(|\mathbf{x}-\mathbf{y}|) \right) \Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) \\ \left(M(\mathbf{x}, t) + M(\mathbf{y}, t) \right) \Psi(\mathbf{x}, t) \Psi(\mathbf{y}, t), \quad (14)$$

involving the mean-field function

$$M(\mathbf{x}, t) = \frac{4\pi\hbar^2 a_M(\mathbf{x}, t)}{m} |\Psi(\mathbf{x}, t)|^2. \quad (15)$$

These equations have been recently rederived from pair wave function considerations [41]. We notice that the mean-field M acts as an extra potential in Eq.(13) but as a source term in Eq.(14). We can verify that in Eqs.(13,14) the interacting potential U is multiplied by the pair wave function Φ , which vanishes at short distances if the correct boundary conditions are ensured. These equations can therefore be used with a realistic molecular potential.

2. Stationary states

The cumulant method is designed mainly to propagate the dynamical equations during a limited period of time [26]. It is not well designed for stationary states, which would require that the equations are valid for an infinite period of time. However, in order to solve the time-dependent equations (13,14), an initial condition is required. Here, one cannot assume that the pair wave function is initially uncorrelated, as is proposed in [28], since it is not suitable for realistic interactions, and would lead to divergence as we explained in Section II C. If we start from equilibrium, the initial condition has to be chosen as close as possible to a physical stationary state, typically given by the stationary Gross-Pitaevskii equation.

Setting $\Psi(\mathbf{x}, t) = \bar{\Psi}(\mathbf{x})e^{-i\mu t/\hbar}$, where μ is identified with the chemical potential we have to set $\Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) = \bar{\Phi}(\mathbf{x}, \mathbf{y})e^{-i2\mu t/\hbar}$ accordingly to obtain, from Eqs.(13,14), stationary equations for $\bar{\Psi}$ and $\bar{\Phi}$. These equations read

$$\mu\bar{\Psi}(\mathbf{x}) = \left(H_{\mathbf{x}} + M(\mathbf{x}, 0) \right) \bar{\Psi}(\mathbf{x}) \quad (16)$$

$$2\mu\bar{\Phi}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = \left(H_{\mathbf{x}} + H_{\mathbf{y}} + U(\mathbf{x}-\mathbf{y}) \right) \bar{\Phi}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \\ + \left(M(\mathbf{x}, 0) + M(\mathbf{y}, 0) \right) \bar{\Psi}(\mathbf{x})\bar{\Psi}(\mathbf{y}) \quad (17)$$

and, as explained in Ref. [41], lead to the stationary Gross-Pitaevskii equation for $\mu \rightarrow 0$. However, in typical experiments, μ is much larger than the energy level spacings of the confining trap, for which the potential $V(\mathbf{x})$ is contained in the hamiltonian H_x (see Eq.6). In the experiment of Ref.[33] for instance, the trap frequency is about 200 Hz, while the chemical potential $\mu \approx \frac{4\pi\hbar^2 a}{m} \rho_c$ (where ρ_c is the density at the centre of the trap) is about 6 kHz. For

chemical potentials of this order of magnitude, there is a problem when the Eq. (18) is solved formally using the Green's function $G_\mu(\mathbf{x}', \mathbf{y}', \mathbf{x}, \mathbf{y})$ of the operator $H_x + H_y + U(\mathbf{x} - \mathbf{y}, 0) - 2\mu$

$$\bar{\Phi}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = \int d^3\mathbf{x}' d^3\mathbf{y}' G_\mu(\mathbf{x}', \mathbf{y}', \mathbf{x}, \mathbf{y}) \left(M(\mathbf{x}') + M(\mathbf{y}') \right) \bar{\Psi}(\mathbf{x}') \bar{\Psi}(\mathbf{y}'), \quad (18)$$

since this Green's function has a singularity for each value of μ lying close an energy level of the trap. When Eqs. (16) and (18) are solved consistently, this leads to series of unphysical resonances of the mean-field scattering length as μ sweeps the series of energy levels of the trap (or equivalently, as the density of the system is varied). As noted in Ref. [41], this problem can be fixed in the limit of a homogeneous system: the Green's function becomes undefined for any value of μ , since singularities form a continuous spectrum in this limit, and one can regularize it either by taking the principal value of the integral in Eq. (??) or by evaluating it slightly outside the singularity line at $\mu \pm i\varepsilon$. The difficulty remains however in a numerical implementation, as the calculations have to be made within a limited box (see Section IV), leading to a discretization of the continuum. In between the spurious resonances, the mean-field scattering length is equal to the correct scattering length a , as we shall show in Section IV.

3. Conservation laws

Although we have neglected the influence of the noncondensate atoms in Eqs.(13-14), these atoms are present in the system and described by the second-order cumulant

$$R'(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) = \langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{x}, t) \hat{\psi}(\mathbf{y}, t) \rangle - \Psi^*(\mathbf{x}, t) \Psi(\mathbf{y}, t)$$

which we shall call the noncondensate density matrix. To first-order in the cumulant truncation scheme, this density matrix obeys the following equation:

$$i\hbar \frac{dR'}{dt}(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) = [H_y - H_x] R'(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) + \int d^3\mathbf{z} \Phi'^*(\mathbf{x}, \mathbf{z}, t) U(|\mathbf{z} - \mathbf{y}|) \Phi(\mathbf{z}, \mathbf{y}, t) - \{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\}^* \quad (19)$$

where $\Phi'(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) = \Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) - \Psi(\mathbf{x}, t) \Psi(\mathbf{y}, t)$ is the scattering part of the pair wave function. We can check [28] that Eqs.(13) and (19) lead to the conservation of the total number N of particles,

$$N = \int d^3\mathbf{x} |\Psi(\mathbf{x}, t)|^2 + \int d^3\mathbf{x} R'(\mathbf{x}, \mathbf{x}, t). \quad (20)$$

Moreover, one can deduce [28], from the equations, the very interesting relation

$$R'(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) = \int d^3\mathbf{z} \Phi'^*(\mathbf{x}, \mathbf{z}, t)\Phi'(\mathbf{z}, \mathbf{y}, t), \quad (21)$$

which guarantees the positivity of the noncondensate density matrix, so that all occupation numbers of the noncondensed modes remain positive. As noted in [41], this relation is an approximation of the Bogoliubov relation for small values of the condensate depletion,

$$R'(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) + \int d^3\mathbf{z} R'(\mathbf{x}, \mathbf{z}, t)R'(\mathbf{z}, \mathbf{y}, t) = \int d^3\mathbf{z} \Phi'^*(\mathbf{x}, \mathbf{z}, t)\Phi'(\mathbf{z}, \mathbf{y}, t)$$

E. Reduced pair wave approximation

1. Approximation on quantum averages

We now start from another approach to close the dynamics of Eqs.(9) and (11). The pair wave function approach, developed in paper I [31], and recalled in the Appendix, shows that we can express some quantum averages in terms of eigenvectors of the two-body density matrix, called pair wave functions. If we retain only the contribution from the condensate atoms, and neglect that of the noncondensate atoms, we can express the quantum averages of interest in terms of Ψ and Φ exclusively. For instance, the quantum average which appears in Eq. (11) can be approximated by

$$\langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{z}, t)\hat{\psi}(\mathbf{z}, t)\hat{\psi}(\mathbf{x}, t)\hat{\psi}(\mathbf{y}, t) \rangle \approx \Psi^*(\mathbf{z}, t) \frac{\Phi(\mathbf{z}, \mathbf{x}, t)\Phi(\mathbf{z}, \mathbf{y}, t)\Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t)}{\Psi(\mathbf{x}, t)\Psi(\mathbf{y}, t)\Psi(\mathbf{z}, t)}. \quad (22)$$

Compared with (12), this approximation contains extra correlations between the coordinates, in a way which respects the symmetry of the quantum average by permutation of the last three coordinates. Note that in Eq. (11) this average is multiplied by the interaction potential $U(\mathbf{z} - \mathbf{y})$, and also that Eq. (11) is the equation of motion for the pair wave function $\Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y})$. As a consequence, we suspect that the correlation between the points \mathbf{z} and \mathbf{y} , and the correlation between the points \mathbf{x} and \mathbf{y} are the most essential ones in that equation. Neglecting the correlation contained in $\Phi(\mathbf{z}, \mathbf{x})$, we get the expression

$$\langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{z}, t)\hat{\psi}(\mathbf{z}, t)\hat{\psi}(\mathbf{x}, t)\hat{\psi}(\mathbf{y}, t) \rangle \approx \frac{\Psi_0^*(\mathbf{z}, t)}{\Psi_0(\mathbf{y}, t)} \Phi(\mathbf{z}, \mathbf{y}, t)\Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t), \quad (23)$$

which now breaks the symmetry.

The resulting equations can then be written

$$i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t}(\mathbf{x}, t) = \left(H_{\mathbf{x}} + M(\mathbf{x}, t) \right) \Psi(\mathbf{x}, t), \quad (24)$$

$$i\hbar \frac{\partial \Phi}{\partial t}(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) = \left(H_{\mathbf{x}} + H_{\mathbf{y}} + U(\mathbf{x} - \mathbf{y}) + M(\mathbf{x}, t) + M(\mathbf{y}, t) \right) \Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t), \quad (25)$$

where the mean-field M , defined as in Eq. (15), now plays the role of a potential in both equations. Comparing with Eq.(14), one sees that a condensate pair feels the mean-field as a potential at large interatomic distances, but also at shorter distances where the atoms of the pair are correlated. This is the only difference with the first order cumulant equations (13-14) : although it may seem minimal, we shall see in Section V that it has some consequences on the dynamics.

For convenience, we will express the pair wave function Φ in terms of a product of independent particle wave functions,

$$\Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) = \Psi(\mathbf{x}, t) \Psi(\mathbf{y}, t) \varphi(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t), \quad (26)$$

so that all the correlation between two condensate atoms is concentrated into the reduced pair wave function φ [31, 41]. Assuming that $\Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t)$ is uncorrelated at large distances $|\mathbf{x} - \mathbf{y}|$, we must have $\varphi(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) \approx 1$ at these distances. Using Eq.(11) and the approximation (23), we find,

$$i\hbar \frac{\partial \varphi}{\partial t}(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) = \left[-\frac{\hbar^2}{2m} (\nabla_{\mathbf{y}}^2 + \nabla_{\mathbf{y}}^2) + \mathcal{C}_{\mathbf{y}} + \mathcal{C}_{\mathbf{x}} + U(\mathbf{x} - \mathbf{y}) \right] \varphi(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t), \quad (27)$$

with $\mathcal{C}_{\mathbf{y}} = -\frac{\hbar^2}{m} \vec{\nabla}_{\mathbf{y}} \ln \Psi(\mathbf{y}) \cdot \vec{\nabla}_{\mathbf{y}}$. Since the condensate wave function Ψ is expected to be almost uniform in the domain of variation of φ , we can neglect the crossed terms $\mathcal{C}_{\mathbf{y}}$ and $\mathcal{C}_{\mathbf{x}}$ in Eq. (27). This condition is of course exact in a uniform system, where the crossed terms are strictly zero. In such conditions, no momentum transfer is occurring between the wave function of the condensate and the pair wave function : the equation (27) is then simply the two-body Schrödinger equation in free space. In principle, this equation should contain other terms caused by the influence of the medium [31]: since they are not present within the approximation (23), we call it the reduced pair wave approximation.

2. Stationary states

The stationary states are found easily. Setting again $\Psi(\mathbf{x}, t) = \bar{\Psi}(\mathbf{x})e^{-i\mu t/\hbar}$ and $\Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) = \bar{\Phi}(\mathbf{x}, \mathbf{y})e^{-i2\mu t/\hbar}$, which implies $\varphi(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) = \varphi(\mathbf{x}, \mathbf{y}, 0) = \bar{\varphi}(\mathbf{x}, \mathbf{y})$, we find

$$\mu\bar{\Psi}(\mathbf{x}) = (H_{\mathbf{x}} + M(\mathbf{x}, 0))\bar{\Psi}(\mathbf{x}), \quad (28)$$

$$0 = \left[-\frac{\hbar^2}{2m}(\nabla_{\mathbf{y}}^2 + \nabla_{\mathbf{y}}^2) + U(|\mathbf{x} - \mathbf{y}|) \right] \bar{\varphi}(\mathbf{x}, \mathbf{y}). \quad (29)$$

From (29), we see that independently of the value of μ , $\bar{\varphi}(\mathbf{x}, \mathbf{y})$ is the stationary solution $\varphi^{(0)}(\mathbf{x} - \mathbf{y})$ of the two-body problem at zero energy, with the limiting condition $\bar{\varphi} \rightarrow 1$ at large distances. As a result, the mean-field scattering length is given by

$$\bar{a}_M(\mathbf{x}) = \frac{m}{4\pi\hbar^2} \int d^3\mathbf{z} U(|\mathbf{z} - \mathbf{x}|) \varphi^{(0)}(\mathbf{x} - \mathbf{y}) \frac{|\bar{\Psi}(\mathbf{z})|^2}{|\bar{\Psi}(\mathbf{x})|^2}, \quad (30)$$

$$\approx \frac{m}{4\pi\hbar^2} \int d^3\mathbf{r} U(r) \varphi^{(0)}(\mathbf{r}), \quad (31)$$

where we have assumed, as discussed in paper I [31], that the condensate wavefunction is not varying significantly at the scale of the potential range. Eq. (31) is precisely the expression for the scattering length a . Consequently, Eq.(28) is nothing but the usual stationary Gross-Pitaevskiĭ equation. To this respect, the reduced pair wave approximation (23) is free of the difficulty encountered with the first order cumulant approximation (12). This improvement is obtained because the truncation of the higher order quantum averages is less strict, so that the pair wave approximation does include a correlation term from the three-body wave function which is not taken into account in the first order cumulant scheme.

3. Conservation laws

Using Eqs. (5) and (7), we can deduce the exact equation of motion for the noncondensate density matrix:

$$i\hbar \frac{dR'}{dt}(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) = [H_{\mathbf{y}} - H_{\mathbf{x}}]R'(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) + \left\{ \int d^3\mathbf{z} U(\mathbf{z}, \mathbf{y}, t) (\langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{x}, t) \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{z}, t) \hat{\psi}(\mathbf{z}, t) \hat{\psi}(\mathbf{y}, t) \rangle - \Psi^*(\mathbf{x}, t) \langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{z}, t) \hat{\psi}(\mathbf{z}, t) \hat{\psi}(\mathbf{y}, t) \rangle) \right\} - \{\mathbf{x} \leftrightarrow \mathbf{y}\}^*$$

Retaining only the contribution from the condensate atoms, Eqs. (60-61) from the Appendix show that R' satisfies Eq. (19), so that the conservation equation (20) still holds. In

contrast, the approximate Bogoliubov relation (21) is not fulfilled any longer. We have not been able so far to find an alternative relation which would guarantee the positivity of the non-condensate occupation numbers.

III. TWO-CHANNEL COUPLED EQUATIONS FOR PHOTOASSOCIATION

A. Coupled equations for two atoms with a photoassociation laser

Let us now turn to the standard two-channel model describing the photoassociation reaction in a thermal gas of atoms, schematized in Fig.1, with a ground potential $U_g(r)$, an excited potential $U_e(r) + E_e$ and a time-dependent radiative coupling due to a laser red-detuned by $\hbar\Delta$ relative to an atomic resonance line. We assume that $U_e(\infty) \rightarrow E_e$, $U_g(\infty) \rightarrow 0$, E_e being the dissociation limit of the excited potential, while the origin of energy is the dissociation limit of the ground potential. The relative motion of two atoms is described by a two-component wave function Φ , with $F_{\text{ground}}(\mathbf{r}, t)$ describing two atoms colliding in the potential U_g (open channel), and a $F_{\text{exc}}(\mathbf{r}, t)$ for the vibrational motion in the excited potential U_e (closed channel). For a continuous laser with constant frequency ω such that $\hbar\omega = \hbar\omega_0 - \Delta$. In a classical model the electric field is oscillating as $\cos(\omega t)$ and coupled with the transition dipole moment \mathbf{D} between the two electronic states. At low temperature, only s -wave scattering should be considered, and we shall neglect rotation effects, so that only radial functions $\phi_g(r, t)$, $\phi_{\text{exc}}(r, t)$ need to be introduced. We shall also neglect transfer of momentum between the light field and the pair of atoms. Using the rotating wave approximation [42], it is possible to eliminate the rapid oscillations in the coupling term by defining new wavefunctions ;

$$\phi_e(r, t) = \exp(i\omega t)\phi_{\text{exc}}(r, t) \quad (32)$$

so that the the time-dependent Schrödinger equation becomes [20]

$$\begin{aligned} & i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \begin{pmatrix} \phi_g(r, t) \\ \phi_e(r, t) \end{pmatrix} \\ &= \begin{pmatrix} \hat{\mathbf{T}} + U_g(r) & W \\ W & \hat{\mathbf{T}} + U_e(r) + E_e - \hbar\omega \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \phi_g(r, t) \\ \phi_e(r, t) \end{pmatrix}, \end{aligned} \quad (33)$$

where we have introduced the kinetic energy operator $\hat{\mathbf{T}}$ and a coupling term

$$W(t) = -\frac{1}{2} \sqrt{\frac{2I(t)}{c\epsilon_0}} D. \quad (34)$$

$I(t)$ is the intensity of the laser, the constants c and ϵ_0 are respectively the light velocity and the vacuum permittivity, and D is one component of the dipole moment operator, depending upon the polarisation of the laser. Since $E_e - \hbar\omega = \Delta$, the 2-channel Hamiltonian in (33) reads

$$\mathbf{H}^{(2)} = \begin{pmatrix} \hat{\mathbf{T}} + U_g(r) & W \\ W & \hat{\mathbf{T}} + U_e(r) + \Delta \end{pmatrix} \quad (35)$$

The relevant quantities for the photoassociation reaction are illustrated in Fig. 1.

B. Coupled equations for a condensate

Considering now photoassociation in a condensate, we treat the many-body problem, with a two-component pair wave function Φ : it has a usual component Φ_g in the ground (open) channel, and a new component Φ_e in the excited (closed) channel. The component in the open channel is connected at large distances to a product of condensate wave functions Ψ , whereas the component in the closed channel corresponds to a bound state and vanishes at large distances:

$$\Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) = \begin{pmatrix} \Phi_g(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) \\ \Phi_e(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t) \end{pmatrix} \xrightarrow{|\mathbf{x}-\mathbf{y}| \rightarrow \infty} \begin{pmatrix} \Psi(\mathbf{x}, t) \Psi(\mathbf{y}, t) \\ 0 \end{pmatrix}$$

For simplicity, we will consider a homogeneous system. In this case, the condensate wave function $\Psi(\mathbf{x}, t)$ is uniform, and the functions $\Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t)$ and $R'(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t)$ depend only on the relative coordinate $\mathbf{x} - \mathbf{y} = \mathbf{r}$. Assuming an isotropic situation with s-wave scattering only we simply note: $\Psi(t)$, $\Phi(r, t)$ and $R'(r, t)$.

1. Coupled equations in the first order cumulant approximation

The first-order cumulant equations (13-14) are generalized as follows[30]:

$$i\hbar \frac{\partial \Psi(t)}{\partial t} = M(t) \Psi(t) \quad (36)$$

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \begin{pmatrix} \Phi_g(r, t) \\ \Phi_e(r, t) \end{pmatrix} = (H^{(2)}(r, t)) \cdot \begin{pmatrix} \Phi_g(r, t) \\ \Phi_e(r, t) \end{pmatrix} + 2M(t) \begin{pmatrix} \Psi^2(t) \\ 0 \end{pmatrix} \quad (37)$$

with the mean-field:

$$M(t) = \frac{1}{\Psi(t)} \int d^3\mathbf{r} \Psi^*(t) \left(U_g(r, t) \Phi_g(r, t) + W(r, t) \Phi_e(r, t) \right) \equiv \frac{4\pi\hbar^2 a(t)}{m} |\Psi(t)|^2 \quad (38)$$

We have the conservation equation:

$$\rho = \rho_{\text{op}}(t) + \rho'_{\text{op}}(t) + \rho_{\text{cl}}(t) \quad (39)$$

where ρ is the total density, $\rho_g(t) = |\Psi(t)|^2$ is the density of condensed atoms in the initial channel, $\rho'_g(t) = R'(\mathbf{0}, t)$ is the density of noncondensate atoms in the initial channel, and $\rho_e = \int d^3\mathbf{r} |\Phi_{\text{cl}}(\mathbf{r}, t)|^2$ is the density of atoms in the excited molecule channel. Furthermore, we have the Bogoliubov relation,

$$R'(\mathbf{r}, t) = \int d^3\mathbf{z} \Phi_{\text{op}}^*(\mathbf{z}, t) \Phi'_{\text{op}}(\mathbf{r} - \mathbf{z}, t). \quad (40)$$

2. Coupled equations in the reduced pair wave approximation

The generalized form of Eqs. (24-25) is

$$i\hbar \frac{\partial \Psi(t)}{\partial t} = M(t) \Psi(t) \quad (41)$$

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \begin{pmatrix} \Phi_g(\mathbf{r}, t) \\ \Phi_e(\mathbf{r}, t) \end{pmatrix} = \left(H^{(2)}(r, t) + \begin{pmatrix} 2M(t) & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} \right) \cdot \begin{pmatrix} \Phi_g(\mathbf{r}, t) \\ \Phi_e(\mathbf{r}, t) \end{pmatrix} \quad (42)$$

with the mean field M still defined by Eq.(38). The conservation equation (39) still holds, but the Bogoliubov relation (40) is no longer valid.

C. Introduction of the spontaneous emission

When a pair of atoms in a confining trap is photoassociated towards a bound level of the potential $U_e(r)$, the excited molecule has a finite lifetime and decays back to the ground electronic state by spontaneous emission of a photon. Most of the time, the final state is a continuum level of the ground potential $U_g(r)$, where the pair of atoms has enough energy to escape the trap. In some cases, the radiative transition populates a bound level of $U_g(r)$, leading to the formation of stable molecules [43, 44].

In the previous equations, spontaneous emission is not accounted for. If we assume that it is mainly a loss phenomenon, we can take it into account by adding an imaginary term to the excited potential $U_e(r)$

$$U_e(r) \rightarrow U_e(r) - i\frac{\hbar\gamma}{2} \quad (43)$$

where $2\pi/\gamma$ is the radiative lifetime of the bound levels in the excited potential. The component of the pair wave function in the closed channel therefore contains an exponentially decreasing factor : as a result, the total density (39) is no longer conserved during the time-evolution.

IV. NUMERICAL METHODS AND CALCULATIONS

The main difficulty is to implement a numerical procedure to solve the time-dependent equations describing simultaneously the microscopic dynamics, with short characteristic times, and the macroscopic dynamics, with longer ones. At each time step, the mean-field scattering length $a(t)$ and the mean-field $M(t)$ must be determined through Eq.(38) from the two pair wave functions $\Phi_g(r, t)$ and $\Phi_e(r, t)$ and from the condensate wavefunction $\Psi(t)$. Then the mean field is influencing the evolutions of the three wave functions in the coupled equations (36,37) or (41,42). Note that in previous calculations based on the cumulant equations [30], the use of a non-local, separable potential made possible to first perform an independent integration of the two-body equation (42), then inject the results into the condensate equation to solve a non-Markovian non-linear Schrödinger equation. This simplifying procedure is not implemented in the present paper where we use the same realistic potentials in both approaches.

The pair wave functions are represented on a grid, using a mapping procedure where the grid steps are adjusted to the local de Broglie wavelength [45] in the two potentials (choosing the smallest of the two values at given r) to describe the short range oscillations with a dense grid and the long range behaviour with a diffuse one. Typical value of the grid length L is 20 000 a_0 . The whole set of equations, either (36-37) or (41-42)) may then be solved, the propagation in time using the standard Crank-Nicholson method [46]. The solutions at $t = 0$ are chosen as stationary solutions for the open channel, when no laser

coupling is present.

A. Initial state in the first order cumulant approximation

Stationary solutions (in the rotating frame defined by Eq. (32) of Eqs. (36-37) are given by

$$\bar{\Psi} = \sqrt{\bar{\rho}_{\text{op}}} \quad (44)$$

$$\begin{pmatrix} \bar{\Phi}_{\text{g}}(\mathbf{r}, t) \\ \bar{\Phi}_{\text{e}}(\mathbf{r}, t) \end{pmatrix} = (H^{(2)}(\mathbf{r}, t) - 2\mu)^{-1} \cdot 2\mu \begin{pmatrix} \bar{\rho}_{\text{g}} \\ 0 \end{pmatrix} \quad (45)$$

where $\bar{\rho}_{\text{g}}$ is the initial condensate density, and $\mu = \bar{M}$ is the chemical potential (the initial mean-field in this case). We start from a given value for the condensate density $\bar{\rho}_{\text{g}}$ and a guess value for μ . We then determine the two pair wave functions from (45), i.e. by performing the matrix inversion. This gives a new value of the mean-field through Eq. (38), and the procedure is iterated until convergence is reached for μ . As explained in Section II, this gives rise to a series of unphysical resonances of the mean-field scattering length when the matrix is singular, for various values of the density $\bar{\rho}_{\text{g}}$. Between the resonances the mean-field scattering length is essentially equal to the expected scattering length of the two-channel system. This difficulty is illustrated in Fig. 2. We therefore choose an initial density close to the experimental value and such that the mean-field scattering length lies in-between the resonances.

B. Initial state in the reduced pair wave approximation

Stationary solutions of Eqs. (41-42) are obtained by solving

$$\bar{\Psi} = \sqrt{\bar{\rho}_{\text{op}}} \quad (46)$$

$$0 = \left(H_{\mathbf{r}}^{(2)} + U^{(2)}(\mathbf{r}, t) - \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 2\mu \end{pmatrix} \right) \cdot \begin{pmatrix} \bar{\Phi}_{\text{e}}(\mathbf{r}, t) \\ \bar{\Phi}_{\text{g}}(\mathbf{r}, t) \end{pmatrix} \quad (47)$$

The two-component function $(\bar{\Phi}_{\text{e}}, \bar{\Phi}_{\text{g}})$ is therefore the zero energy stationary solution of the two-channel problem, the potential U_{e} being shifted by twice the chemical potential. This means that the optically induced Feshbach resonance is shifted by the mean-field energy

of the condensate atoms, even though the collision energy is nearly zero. To determine eigenfunctions of equation (47) we propagate Eq.(42) in imaginary time with the Crank-Nicholson scheme. The finite value of the time step value acts as an energy filter, which selects the zero energy scattering state in a few steps.

C. Accuracy check : computation of the scattering length

Checks on the macroscopic dynamics can be performed by comparing to standard coupled Gross-Pitaevski equations in conditions where they are equivalent (see below). As for the microscopic dynamics, we have to ensure that the mean-field scattering length, given by the integral expression (38), is computed accurately enough. To that purpose, we have solved the standard two-channel equations describing photoassociation in a dilute gas and extracted the phaseshift of the continuum wavefunction in the open channel from its asymptotic behaviour. The scattering length can easily be deduced by extrapolation to zero collision energy. This was done for the photoassociation experiment in sodium described below in Section V A, considering two atoms with parallel spin, interacting through the $a^3\Sigma_u^+$ potential, colliding in presence of a laser field of intensity $I=15$ kW/cm². In Fig. 3, we compare the scattering length computed by this method, and the mean-field scattering length given by Eq. (38). One can see from the excellent agreement that the latter is indeed accurately computed in the stationary case. Note that away from the resonance the computed scattering length differs from the $a=54.9 a_0$ value computed for the single $a^3\Sigma_u^+$ potential. This is due to the laser coupling, and to the vicinity of other resonances. (3.73 below, or 3.41 cm⁻¹ above)

V. APPLICATION: PHOTOASSOCIATION IN A SODIUM CONDENSATE

A. Experimental conditions of the NIST experiment

The chosen example starts from the photoassociation experiment in NIST [33], where a condensate of sodium atoms is illuminated by a cw laser of intensity I varying from 0.1 to 1 kW/cm². The frequency (16 913.37 cm⁻¹) is chosen at resonance with the $J=1$, $v=135$ vibrational level in the 0_v^+ ($3S + 3P_{1/2}$) potential curve of Na₂. The detuning of the photoassociation laser relative to the D₁ resonance line is rather large (43 cm⁻¹), and corresponds to the binding energy of the $v=135$ level. Since the molecules formed in the

excited electronic state decay by spontaneous emission, the atomic condensate is depleted with a rate proportional to the intensity of the laser [30, 31, 33]. In paper I, we have computed this rate within a model considering only two channels, representing the atomic and the molecular condensate. Here, we shall consider also the non-condensate modes.

Recent calculations by Gasenzer [30], using both coupled Gross-Pitaevski equations and non-markovian linear Schrödinger equations based on the first order cumulant approach discuss high intensity effects and possible saturation phenomena. At $I \geq 1.2 \text{ kW cm}^2$, they show a marked difference between the predictions of coupled Gross-Pitaevski equations and of more elaborate calculations taking account of correlations, and they predict a saturation effect.

B. Molecular data for calculations

For the two-channel calculations, the potentials curves for the ground state of $\text{Na}_2 \text{ X}^1\Sigma_g^+$ and $0_u^+(3s+3p_{1/2})$ have been taken from Ref. [47]. The ground state potential is chosen so that the scattering length is $54.9a_0$, as in Gasenzer's work [30]. Hyperfine structure is not included, and the last bound level has a binding energy of 317.78 MHz ($\sim 10^{-2} \text{ cm}^{-1}$). In the excited curve, the level $v=135$ is bound by 49.23 cm^{-1} , the two neighbouring levels being $v=134$ at -52.95 and $v=136$ at -45.757 cm^{-1} . As a consequence, the outer turning point of the vibrational wave function in the excited state is at located a distance $r_{out} \sim = 38 a_0$ which cannot be considered as very large, being smaller than the ground state scattering length. Therefore, as discussed in paper I, the Franck-Condon factor between a continuum wave function and the bound vibrational wavefunction is rather small, ensuring the validity of a perturbative model in the intensity range studied here. The dipole moment matrix element is taken as $D=2$, assuming linear polarisation of the laser, neglecting r -dependence, and deducing the atomic lifetime from the long range coefficient $C_3= 6.128$ of Marinescu and Dalgarno [48]. The coupling term W in the equations (33) is therefore linked to the intensity I by $W = \sqrt{2I/(c\epsilon_0)}$.

C. Results for a continuous laser

In the calculations, we consider a cw laser, for which the frequency is constant and detuned by 49.27 cm^{-1} relative to the sodium D_1 atomic resonance line. The intensity, chosen 0 at time $t=0$, is turned on with a linear branching function $I_b = I \times t/\tau$; $t \leq \tau$ to become constant and equal to I after $\tau = 0.5 \mu\text{s}$. This time-constant has been chosen large enough to avoid transitory phenomena, and is compatible with realistic branching of a laser through acousto-optic modulator. The spontaneous emission process has been treated with an imaginary potential as discussed in Section III C. Starting from a pure sodium condensate, with a density $\rho(t=0)=\rho_g(t=0)$, and therefore assuming $\rho'(t=0)=\rho_e(t=0) = 0$, we have solved the coupled equations (36,37) on the one hand, and (41, 42) on the other hand, to compute the relative number of condensed atoms as well as the number of non-condensate atoms, for three values of the intensity I .

We have computed the time-variation of the relative number of condensed atoms

$$\alpha_g(t) = \rho_g(t)/\rho(0); \alpha_g(0) = 1, \quad (48)$$

of non-condensate atoms in the open channel,

$$\alpha'_g(t) = \rho'_g(t)/\rho(0); \alpha'_g(0) = 0 \quad (49)$$

and the relative number of atoms in the closed channel

$$\alpha_e(t) = \rho_e(t)/\rho(0) = 2\beta_e(t); \beta_e(0) = 0, \quad (50)$$

which is twice the relative number of photoassociated molecules $\beta_e(t)$. Note that in our model the spontaneous emission is treated as a loss term, dissociating the photoassociated molecules into pairs of ground state atoms that leave the trap and therefore are counted neither as condensate nor as non-condensate trapped atoms.

We have reported in the Figures 4 and 5 results of our calculations for photoassociation into the $v=135$ level. For a laser intensity of 140 W/cm^2 (left column of Fig. 4), the time-variation of the fraction $\alpha_g(t)$ is found the same with the three theoretical models, since the first order cumulant and the reduced pair wave approximation are giving the same results as the mean-field Gross Pitaevski equation. The fraction of condensed atoms is decaying with a time-constant of $9.4 \mu\text{s}$, and the number of trapped non-condensed

atoms stays negligible. Also reported are the real $\Re[a(t)]$ and imaginary $\Im[a(t)]$ part of the scattering length $a(t)$, which is identical in the three models. We should note the sharp variation of $\Im[a(t)]$ when the laser is turned on, while $\Re[a(t)]$ stays constant and close to the value $a(t=0)=54.9 a_0$ in the absence of laser coupling. For a laser intensity of 1200 W/cm^2 (right column of Fig. 4) the decay constant becomes larger by a factor ~ 8.6 , since the photoassociation rate varies linearly with the intensity. As in the previous example, $\alpha_g(t)$ is found identical in the three models. However, there is now a small difference in the fraction $\alpha'_g(t)$ of non-condensate atoms. Whereas the quantity $\Re[a(t)]$ stays equal to $a(0)$ when the Gross-Pitaevski model is considered, it departs from it in the two other models. Similarly, slight differences appear in $\Im[a(t)]$, which is larger than in the preceding case due to the increase of the coupling.

In contrast, considering a larger intensity, $I=10 \text{ kW/cm}^2$, for the photoassociation laser, we observe marked differences between the three models, as illustrated in Fig. 5. First, the decay of the number of atoms in the condensate differs markedly. A saturation effect is visible in both the first order cumulant approximation and the pair wave approximation, which does not exist in the Gross-Pitaevski treatment. Whereas the latter cannot predict formation of non-condensed atoms, the pair wave approximation predicts that over 25 % of the atoms are transformed into non-condensate atoms. The estimation of the first order cumulant approach is slightly lower. The variation of the scattering length also differs in the three calculations, with one oscillation at the scale of $\sim 2.5 \mu\text{s}$ clearly visible in $\Re[a(t)]$ for the pair wave approximation, and less for the first order cumulant approach. In other words, the dynamics at the μs scale is predicted different with the three models.

D. discussion

The variation of the decay rate can be analyzed from the imaginary part of the scattering length : we have represented in Fig. 6 the variation of $\Im[a]$ as a function of the laser intensity I . For $I \leq 3 \text{ kW/cm}^2$, there is no difference between the three calculations, the use of mean field equations is therefore justified, and a linear dependance as a function of intensity is predicted. Once the intensity is increased, the correlation has to be introduced, and a saturation effect is predicted, with a maximum around 5 kW/cm^2 for the reduced

pair wave model, around 7.5 kW/cm^2 for the first order cumulant equations. The results in the latter case are very similar to Gasenzer's results, who uses a separable potential. The saturation effect is therefore general, and can be explained from the large value of the Rabi frequency at large intensities : atom pairs, excited by photoassociation, are brought back, by stimulated emission, to a continuum or a bound level of the ground state potential. Since the spontaneous emission process does not happen, such pairs do not contribute to the depletion, but populate non-condensate modes. Analysis of such modes is the subject of a forthcoming paper.

VI. CONCLUSION

In the present paper, we have compared various models for calculation of photoassociation processes and optically-induced Feshbach resonances in an atomic condensate, with the aim of developing methods to model experiments using chirped laser pulses, under conditions where details of the interaction potentials may influence the dynamics. We have described two methods to treat the correlation, both going beyond contact potentials and including realistic interatomic potentials. One method is the pair wave function approximation, the other one the first order cumulant method, considered here without separable potential approximation. We have given in both cases the set of coupled equations describing the microscopic and the macroscopic dynamics for our two-channel problem.

The advantages and drawbacks of both methods (in particular spurious resonances in the scattering length, have been discussed, as well as the necessity to go beyond mean-field model). Their predictions are compared through numerical calculations for photoassociation in a sodium condensate, in a model where spontaneous emission is treated as a loss term, for experimental conditions of Mc Kenzie *et al* [33]. At low intensities, the two models give similar results, and do not depart from the predictions of two coupled Gross-Pitaevski equations. When the intensity is increased, saturation effects are predicted both by the pair wave equations and by the first order cumulant approach. Transfer of population to non-condensate modes, up to 25 %, i.e. visible in experiment, is also predicted. Such effects, as well as the saturation effects, depend upon the model, and could be measured to check its validity.

The analysis of the non-condensate modes in the ground electronic state, discriminating

between continuum energy levels with higher energy or bound levels, close to the dissociation limit of the ground state potential, forming stable molecules, will be described in a forthcoming paper, as well as the dynamics of the system when the optical Feshbach resonance is swept by a frequency ramp.

Acknowledgements Discussions with Arkady Shananenko, Thorsten Köhler, Christiane Koch are gratefully acknowledged. This work was performed in the framework of the European Research Training Network “Cold Molecules”, funded by the European Commission under contract HPRN CT 2002 00290. P.N. acknowledges for an invitation in Clarendon Laboratory, Oxford.

-
- [1] E. Donley, N. Claussen, S. Thompson, and C. Wieman. *Nature* **417** (2002).
 - [2] N. Claussen, E. Donley, S. Thompson, and C. Weiman. ‘Microscopic dynamics of a strongly interacting Bose-Einstein condensate.’ *Phys. Rev. Lett.* **89**, 010401 (2002).
 - [3] J. Herbig, T. Kraemer, M. Mark, T. Weber, C. Chin, H.-C. Nägerl, and R. Grimm. ‘Preparation of a pure molecular quantum gas.’ *Science* **301**, 1510 (2003).
 - [4] K. Xu, T. Mukaiyama, J. R. Abo-Shaeer, J. K. Chin, D. E. Miller, and W. Ketterle. ‘Formation of quantum-degenerate sodium molecules.’ *Phys. Rev. Lett.* **91**, 210402 (2003).
 - [5] S. Dürr, T. Volz, A. Marte, and G. Rempe. ‘Observation of molecules produced from a Bose-Einstein condensate.’ *Phys. Rev. Lett.* **92**, 020406 (2003).
 - [6] C. A. Regal, C. Ticknor, J. L. Bohn, and D. S. Jin. *Nature* **424**, 47 (2003).
 - [7] M. W. Zwierlein, C. A. Stan, C. H. Schunck, S. M. F. Raupach, S. Gupta, Z. Hadzibabic, and W. Ketterle. ‘Observation of Bose-Einstein condensation of molecules.’ *Phys. Rev. Lett.* **91**, 250401 (2003).
 - [8] K. E. Strecker, G. B. Partridge, and R. G. Hulet. ‘Conversion of an atomic Fermi gas to a long-lived molecular Bose gas.’ *Phys. Rev. Lett.* **91**, 080406 (2003).
 - [9] J. Cubizolles, T. Bourdel, S. J. J. M. F. Kokkelmans, G. V. Shlyapnikov, and C. Salomon. ‘Production of long-lived ultracold Li_2 molecules from a Fermi gas.’ *Phys. Rev. Lett.* **91**, 240401 (2003).
 - [10] S. Jochim, M. Bartensein, A. Altmeyer, G. Hendl, C. Chin, S. Riedl, J. H. Denschlag, and R. Grimm. ‘Bose-Einstein condensation of molecules.’ *Science* **302**, 2101 (2003).

- [11] S. Jochim, M. Bartensein, A. Altmeyer, G. Hendl, C. Chin, J. H. Denschlag, and R. Grimm. ‘Pure gas of optically trapped molecules created from fermionic atoms.’ *Phys. Rev. Lett.* **91**, 240402 (2003).
- [12] C. A. Regal, M. Greiner, and D. S. Jin. ‘Observation of resonance condensation of fermionic pairs.’ *Phys. Rev. Lett.* **92**, 040403 (2004).
- [13] P. Fedichev, Y. Kagan, G. V. Shlyapnikov, and J. Walraven. ‘Influence of nearly resonant light on the scattering length in low-temperature atomic gases.’ *Phys. Rev. Lett.* **77**, 2913 (1996).
- [14] J. L. Bohn and P. S. Julienne. ‘Prospects for influencing scattering lengths with far-off resonant light.’ *Phys. Rev. A* **56**, 1486 (1997).
- [15] V. Kokoouline, J. Vala, and R. Kosloff. ‘Tuning the scattering length on the ground triplet state of Cs_2 .’ *J. Chem. Phys.* **114**, 3046 (2001).
- [16] F. K. Fatemi, K. M. Jones, and P. D. Lett. ‘Observation of optically induced feshbach resonances in collisions of cold atoms.’ *Phys. Rev. Lett.* **85**, 4462 (2000).
- [17] M. Theis, G. Thalhammer, K. Winkler, M. Hellwig, G. Ruff, R. Grimm, and J. H. Denschlag. ‘Tuning the scattering length with an optically induced Feshbach resonance.’ submitted to *Phys. Rev. Lett.* pp. cond-mat 0404514 (2004).
- [18] C. Koch, J. Palao, R. Kosloff, and F. Masnou-Seeuws. ‘How to obtain ultracold $v=0$ molecules using optimal control theory.’ *Phys. Rev. A* **70**, 013402 (2004).
- [19] J. Vala, O. Dulieu, F. Masnou-Seeuws, P. Pillet, and R. Kosloff. ‘Coherent control of cold molecule formation through photoassociation using chirped pulsed laser field.’ *Phys. Rev. A* **63**, 013412 (2001).
- [20] E. Luc-Koenig, R. Kosloff, F. Masnou-Seeuws, and M. Vatasescu. ‘Time-dependent analysis of photoassociation of cold cesium atoms using chirped laser pulses.’ *Phys. Rev. A* **70** (2004).
- [21] E. Luc-Koenig, M. Vatasescu, and F. Masnou-Seeuws. ‘Optimizing the photoassociation of cold atoms by use of chirped laser pulses.’ *Eur. Phys. J. D* (december 2004).
- [22] A. Vardi, V. A. Yurovsky, and J. R. Anglin. ‘Quantum effects on the dynamics of a two-mode atom-molecule Bose-Einstein condensate.’ *Phys. Rev. A* **64**, 0163611 (2001).
- [23] S. Kokkelmans and M. J. Holland. ‘Ramsey fringes in a Bose-Einstein condensate between atoms and molecules.’ *Phys. Rev. Lett* **89**, 180401 (2002).
- [24] M. Mackie, K.-A. Suominen, and J. Javanainen. ‘Mean-field theory of Feshbach-resonant

- interaction in ^{85}Rb condensate.' Phys. Rev. Lett **89**, 180403 (2002).
- [25] T. Köhler, T. Gasenzer, P. S. Julienne, and K. Burnett. 'Long-range nature of Feshbach molecules in Bose-Einstein condensates.' Phys. Rev. Lett. **91**, 230401 (february 2003).
- [26] T. Köhler and K. Burnett. 'Microscopic quantum dynamics approach to the dilute condensed Bose gas.' Phys. Rev. A **65**, 033601 (2002).
- [27] T. Köhler, T. Gasenzer, and K. Burnett. 'Microscopic theory of atom-molecule oscillations in a Bose-Einstein condensate.' Phys. Rev. A **67**, 013601 (2003).
- [28] K. Góral, T. Köhler, S. A. Gardiner, E. Tiesinga, and P. S. Julienne. 'Adiabatic association of ultracold molecules via magnetic field tunable interactions.' arxiv:cond-mat/ **0312178**, v4 (february 2004).
- [29] J. Fricke. 'Transport equations including many-particle correlations for an arbitrary quantum system. general formalism.' Ann. Phys. **252**, 479 (1996).
- [30] T. Gasenzer. 'High light intensity photoassociation in a Bose-Einstein condensate.' Phys. Rev. A **70**, 021603(R) (2004).
- [31] P. Naidon and F. Masnou-Seeuws. 'Pair dynamics in the formation of molecules in a Bose-Einstein condensate.' Phys. Rev. A **68**, 033612 (september 2003).
- [32] A. Y. Cherny and A. A. Shanenko. 'Short-range particle correlations in dilute bose gas.' Phys. Rev. E **62**, 1646 (2000).
- [33] C. McKenzie, J. H. Denschlag, H. Häffner, A. Browaeys, L. E. de Araujo, F. Fatemi, K. M. Jones, J. Simsarian, D. Cho, A. Simoni, E. Tiesinga, P. Julienne, K. Helmerson, P. Lett, S.L. Rolston, and W. Phillips. 'Photoassociation of sodium in a Bose-Einstein condensate.' Phys. Rev. Lett. **88**, 120403 (2002).
- [34] L. Pitaevskii and S. Stringari. *Bose-Einstein Condensation*. (Oxford University Press, 2003).
- [35] A. J. Leggett. 'Bose-Einstein condensation in the alkali gases: some fundamental concepts.' Rev. Mod. Phys. **73**, 307 (april 2001).
- [36] T. D. Lee, K. Huang, and C. N. Yang. 'Eigenvalues and eigenfunctions of a Bose system of hard spheres and its low-temperature properties.' Phys. Rev. **106**, 1135 (1957).
- [37] S. Kokkelmans, J. Milstein, M. Chiofalo, R. Walser, and M. Holland. 'Resonance superfluidity: Renormalization of resonance scattering theory.' Phys. Rev. A **65**, 053617 (2002).
- [38] A. Y. Cherny and A. A. Shanenko. 'The kinetic and interaction energies of a trapped Bose gas: Beyond the mean field.' Phys. Lett. A **293**, 287 (2002).

- [39] R. Jastrow. ‘Many-body problem with strong forces.’ *Phys. Rev.* **98**, 1479 (june 1955).
- [40] A. J. Leggett. ‘The relation between the Gross-Pitaevskii and Bogoliubov descriptions of a dilute Bose gas.’ *New Journal of Physics* **5**, 103.1 (2003).
- [41] A. Y. Cherny and J. Brand. ‘Self-consistent calculation of the coupling constant in the Gross-Pitaevskii equation.’ (june 2004).
- [42] L. Allen and J. Eberly. *Optical resonance and two-level atoms*. (Dover, New York, 1987).
- [43] A. Fioretti, D. Comparat, A. Crubellier, O. Dulieu, F. Masnou-Seeuws, and P. Pillet. ‘Formation of cold Cs₂ molecules through photoassociation.’ *Phys. Rev. Lett* **80**, 4402 (1998).
- [44] F. Masnou-Seeuws and P. Pillet. ‘Formation of ultracold molecules (t_i 200 μ K) via photoassociation in a gas of laser-cooled atoms.’ *Adv. Atomic. Mol. Opt. Phys.* **47**, 53 (2001).
- [45] V. Kokoouline, O. Dulieu, R. Kosloff, and F. Masnou-Seeuws. ‘Mapped Fourier methods for long range molecules: Application to perturbations in the Rb₂(0_u⁺) spectrum.’ *J. Chem. Phys.* **110**, 9865 (1999).
- [46] W. H. Press and B. P. Flannery and S. A. Teukolsky and W. T. Vetterling. *Numerical Recipes*. (Cambridge University Press, Cambridge, London, New York, New Rochelle, Melbourne, Sydney, 1987).
- [47] P. Pellegrini. Thèse de doctorat en sciences (Ph.D. Thesis, Ecole doctorale Ondes et Matière, Université Paris-Sud (2003).
- [48] M. Marinescu and A. Dalgarno. ‘Dispersion forces and long-range electronic transition dipole moments of alkali-metal dimer excited states.’ *Phys. Rev. A* **52**, 311 (1995).
- [49] F. H. Mies, E. Tiesinga, and P. S. Julienne. ‘Manipulation of Feshbach resonances in ultracold atomic collisions using time-dependent magnetic field.’ *Phys. Rev. A* **61**, 022721 (2000).
- [50] This mean-field scattering length is defined as long as the condensate wave function has no zero, which implies that there is no vortex, for instance.
- [51] Note that the cumulant equations are usually written with the scattering part $\Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y}) - \Psi(\mathbf{x})\Psi(\mathbf{y})$ of the pair wave function, which corresponds to the second order cumulant $\langle \hat{\psi}(\mathbf{x})\hat{\psi}(\mathbf{y}) \rangle^c$.

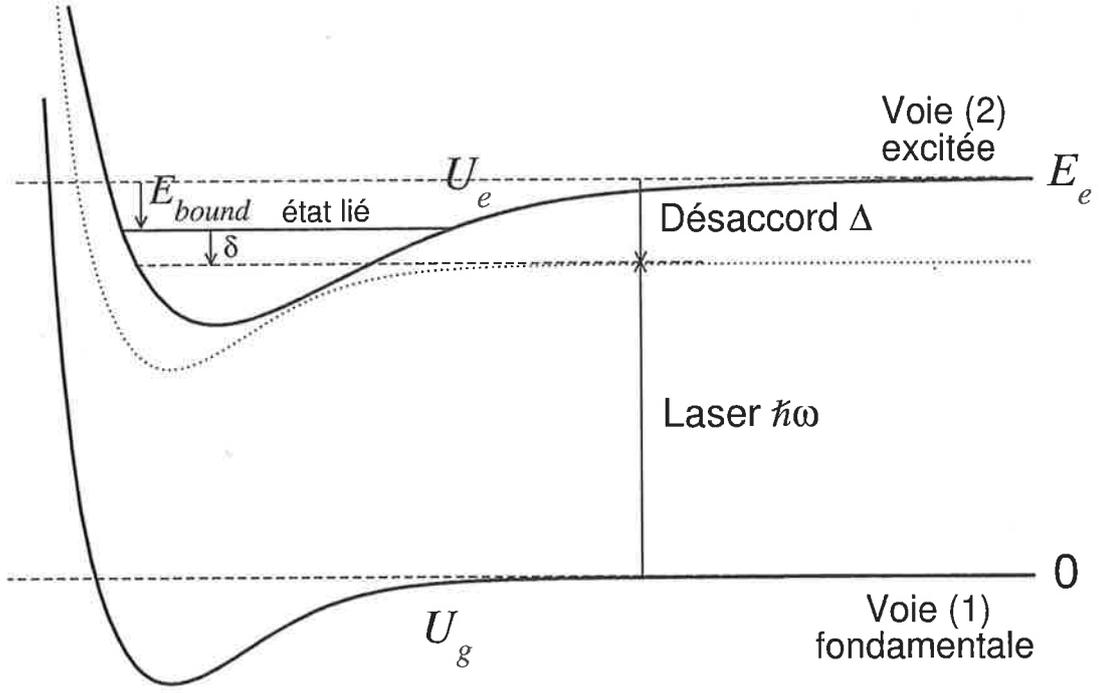


FIG. 1: Scheme of the photoassociation process.

VII. APPENDIX

A. Definition of the noncommutative cumulants

If $\hat{A}_1, \hat{A}_2, \dots, \hat{A}_n$ are n bosonic operators, the n -order cumulant $\langle \hat{A}_1 \hat{A}_2 \dots \hat{A}_n \rangle^c$ is defined recursively as follows:

$$\begin{aligned}
 \langle \hat{A}_1 \rangle &= \langle \hat{A}_1 \rangle^c \\
 \langle \hat{A}_1 \hat{A}_2 \rangle &= \langle \hat{A}_1 \rangle^c \langle \hat{A}_2 \rangle^c + \langle \hat{A}_1 \hat{A}_2 \rangle^c \\
 \langle \hat{A}_1 \hat{A}_2 \hat{A}_3 \rangle &= \langle \hat{A}_1 \rangle^c \langle \hat{A}_2 \rangle^c \langle \hat{A}_3 \rangle^c + \langle \hat{A}_1 \rangle^c \langle \hat{A}_2 \hat{A}_3 \rangle^c \\
 &\quad + \langle \hat{A}_2 \rangle^c \langle \hat{A}_1 \hat{A}_3 \rangle^c + \langle \hat{A}_3 \rangle^c \langle \hat{A}_1 \hat{A}_2 \rangle^c \\
 &\quad + \langle \hat{A}_1 \hat{A}_2 \hat{A}_3 \rangle^c \\
 &\vdots
 \end{aligned}$$

where $\langle \dots \rangle$ denotes the quantum average in the many-body states of the system. For an ideal gas, we can check that all cumulants containing more than two bosonic operators are zero, according to Wick's theorem. For a system close to the ideal gas, the cumulants are

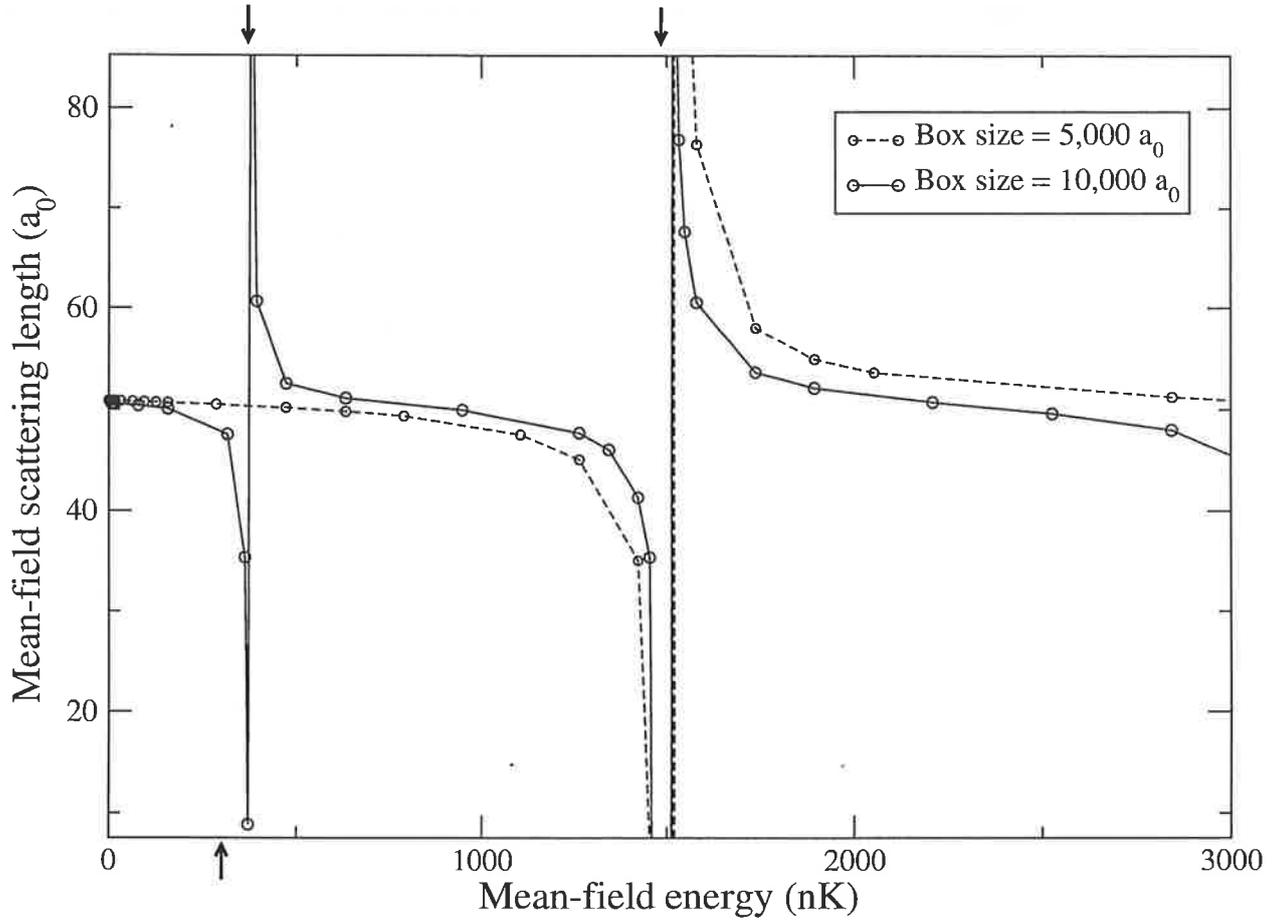


FIG. 2: Mean-field scattering length as defined from Eq.(38) in text, and from the stationary solution of the first order cumulant equations (13, 14), as a function of the mean-field energy. Calculations are performed in case of a sodium condensate, under the conditions of the experiment of Ref. [33], but without any photoassociation laser. By varying the density, the mean field is modified from the value 6 kHz, or xx nK, indicated by an arrow on the lower horizontal axis. Numerical calculations are representing the trap by a square box of width $d=10\,000\,a_0$ (solid lines) or $d=5\,000\,a_0$ (broken line). The position of the first two levels of the wider box are indicated by arrows on the upper horizontal axis, the second one coinciding with the first level of the $d=5\,000$ box. As explained in the text, the mean-field scattering length has an unphysical divergence each time the mean-field energy coincides with an energy level of the box. The latter depend on the arbitrary size the box: d can typically go up to 200,000 atomic units, which would increase the number of resonances

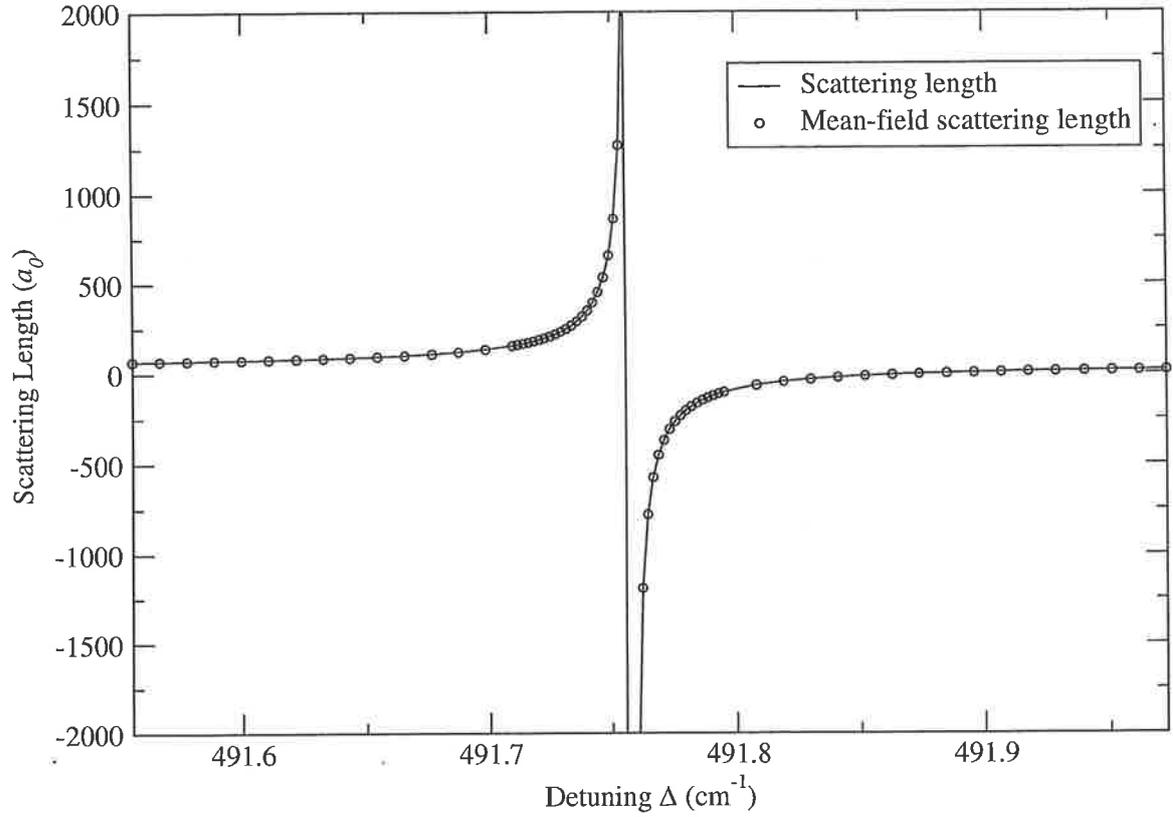


FIG. 3: Optically induced Feshbach resonance as calculated from the reduced pair wave model. Variation of the sodium scattering length as a function of the detuning of the photoassociation laser in the vicinity of the $v=135$, $J=1$ resonance [33], for a laser intensity of 15 kW/cm^2 , and a variable detuning Δ relative to the D_1 atomic resonance line. Spontaneous emission is not included in the model. Solid line : determination from coupled equations calculations. Dots : Calculations from the stationary states of the reduced pair wavefunction, see Eqs. Note that away from the resonance the value $a=54.9$ of the single channel scattering length is not reached, due to the vicinity of other resonances (see text) .

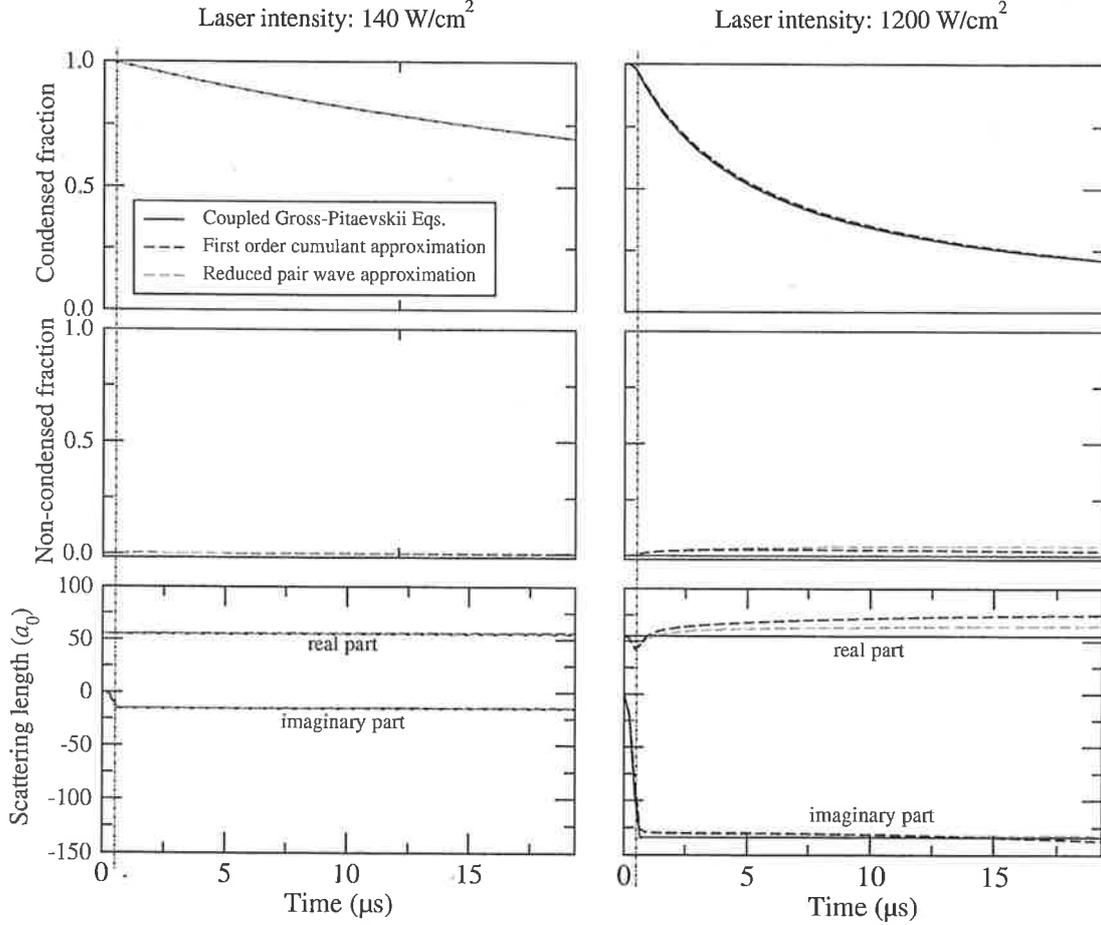


FIG. 4: Photoassociation into the $v=135$ level of Na_2 A $^1\Sigma_u^+$ with a cw laser of intensity (for $t < 0.5\mu\text{s}$) $I=140\text{ W/cm}^2$ (left column) and $I=1200\text{ W/cm}^2$ (right column). For $t < 0.5\mu\text{s}$, the laser is being turned on (see text). (a) and (d) Time variation of the fraction $\alpha_g(t)$ of condensed atoms computed for three theoretical models : solid line, reduced pair approximation; broken line, first order cumulant approximation; dash-dotted line, Gross Pitaevski equation. The spontaneous emission is included in the three models by way of an imaginary potential (see text) and the decay of the condensate is caused by spontaneous emission and dissociation of the photoassociated molecules into pairs of atoms which escape the trap. The decay rate is larger in Fig. (d) since, due to larger intensity 1200 W/cm^2 , the photoassociation rate increases. (b) and (e) time-variation of the fraction of non-condensate ground state atoms $\alpha'_g(t)$, which remains negligible; (c) and (f) time-variation of the real $\Re[a(t)]$ and imaginary $\Im[a(t)]$ part of the scattering length. Note that there is very little difference between the three models.

Laser intensity: 10 kW/cm^2

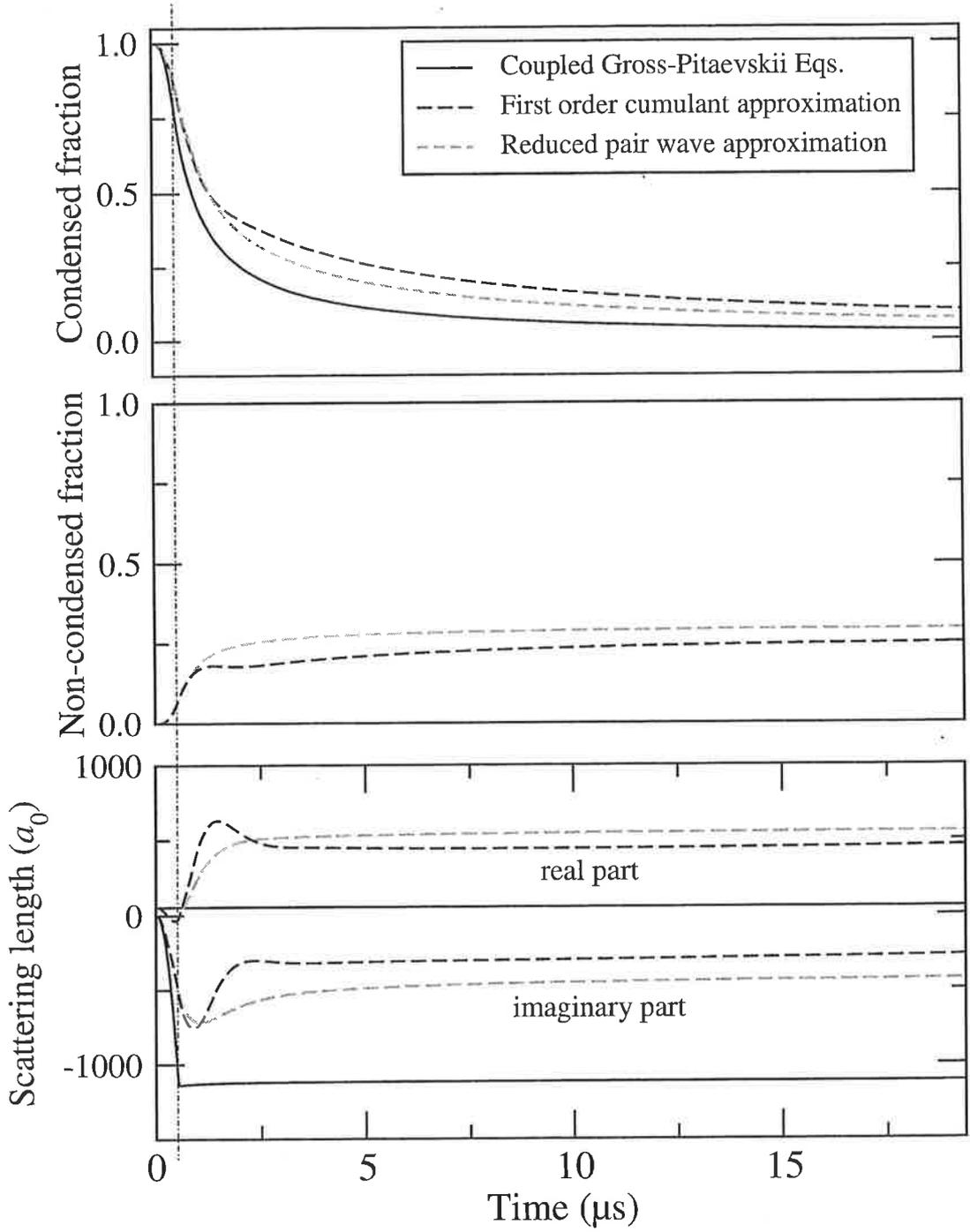


FIG. 5: Same as Fig 4 for photoassociation with a cw laser of intensity $I=10 \text{ kW/cm}^2$. Due to the large intensity, differences between the three models are now manifested. In the top figure, a saturation effect for the fraction $\alpha_g(t)$ of condensed atoms is visible in the reduced pair wave calculations and less pronounced in the first order cumulant results ; in the middle figure, a significant (25%) fraction of non-condensate ground state atoms $\alpha'_g(t)$ is predicted by the reduced pair wave approximation, a slightly smaller one by the reduced pair wave approximation, while the Gross-Pitaevskii model is not considering non-condensate trapped atoms; in the bottom figure, the time-variation of $\Re[a(t)]$ and $\Im[a(t)]$ differs according to the model, with oscillations at the μs scale in case of the reduced pair wave approximation

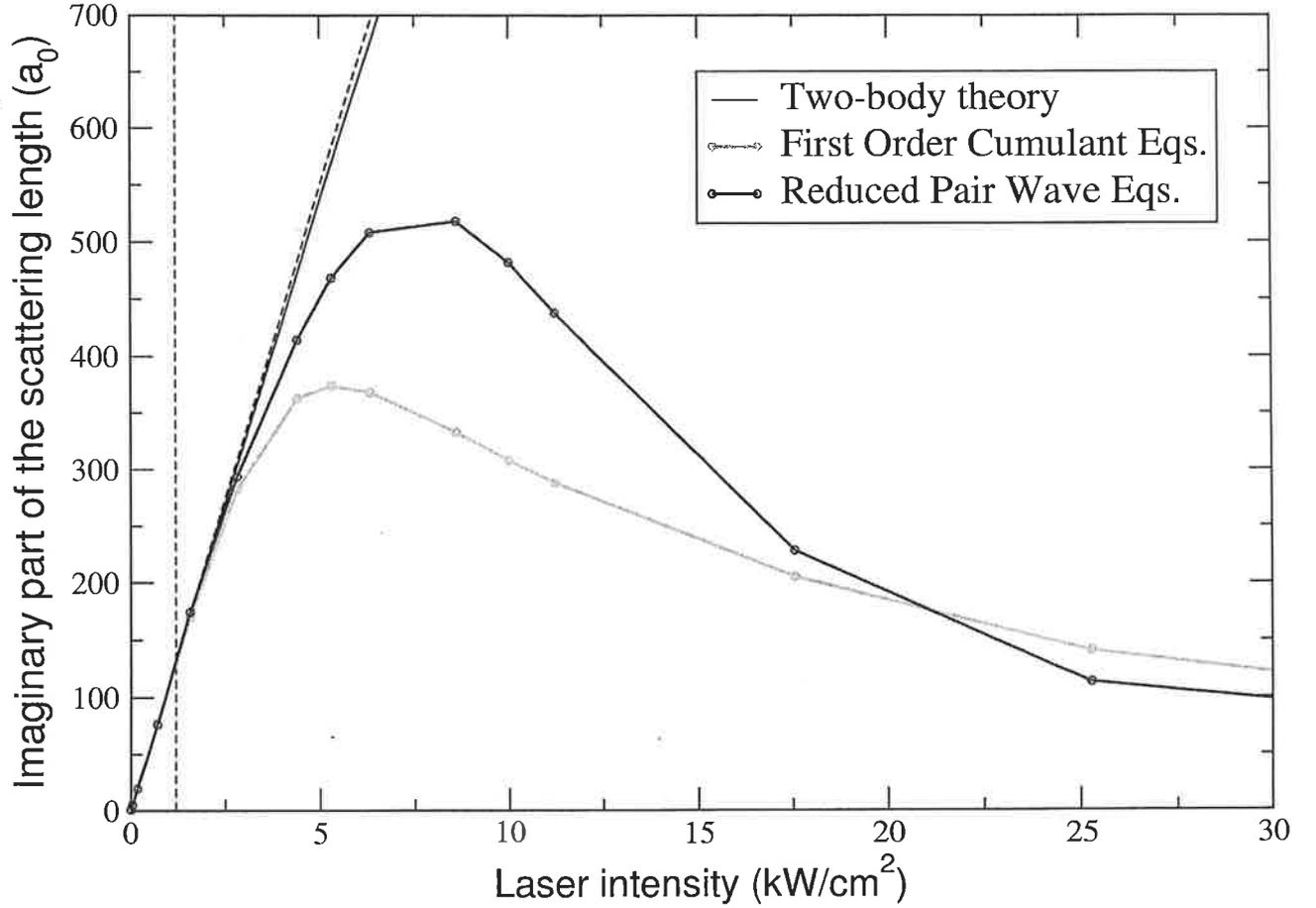


FIG. 6: Variation of the imaginary part of the scattering length $\Im[a]$ as a function of laser intensity I for different models

nonzero but tend to zero as the order is increased. They are therefore a sort of measure of the deviation from the ideal case.

B. In-medium effective wave functions

1. General expressions

The in-medium pair wave function approach, as we may call it, was initiated by a series of papers by A. Yu. Cherny and A. Shanenko. Its aim is to have a many-body description

of the dilute Bose gas which remains valid at short interatomic distances, so that interacting potentials with strong repulsive cores can be treated directly. The authors have mainly addressed the problem of the ground state for a homogeneous system. In Ref. [31], we have generalized some of their ideas to the inhomogeneous time-dependent case. We will recall here the derivation of the in-medium pair wave functions given in [31], and will show in addition how three-body wave functions can be constructed out of these pair wave functions. This will lead to the reduced pair wave approximation used in this paper.

The starting point is to consider the reduced density matrices of the many-boson system. As these matrices are hermitian, they can be diagonalized in a basis of orthogonal eigenvectors, associated with positive eigenvalues. For example, the following one-body, and two-body reduced density matrices can be diagonalized as follows:

$$\langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{x})\hat{\psi}(\mathbf{y}) \rangle = \sum_i \Psi_i^*(\mathbf{x})\Psi_i(\mathbf{y}) \quad (51)$$

$$\frac{1}{2}\langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{w})\hat{\psi}^\dagger(\mathbf{z})\hat{\psi}(\mathbf{x})\hat{\psi}(\mathbf{y}) \rangle = \sum_i \Phi_i^*(\mathbf{w}, \mathbf{z})\Phi_i(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \quad (52)$$

where the Ψ_i are the eigenvectors of the one-body density matrix, and Φ_i are the eigenvectors of the two-body density matrix. We have normalized these vectors to their respective eigenvalues, which means that $N_i = \int d^3\mathbf{x}|\Psi_i(\mathbf{x})|^2$ is the eigenvalue associated with Ψ_i , and $M_i = \int d^3\mathbf{y}d^3\mathbf{x}|\Phi_i(\mathbf{x}, \mathbf{y})|^2$ is the eigenvalue associated with Φ_i . As these eigenvectors have the form of wave functions, we call them effective one-body wave functions and effective pair wave functions. N_i is interpreted as the average number of particles of the system in the one-body state $|\Psi_i\rangle$, and M_i is interpreted as the average number of pairs in the two-body state $|\Phi_i\rangle$. We can check that $\sum_i N_i = N$ and $\sum_i M_i = \frac{1}{2}N(N-1)$, where N is the total number of particles in the system.

In the case of a condensate, a certain one-body wave function Ψ_0 has a macroscopic occupation number $N_0 \gg \sum_{i \neq 0} N_i$. In the $U(1)$ symmetry breaking picture, this one-body wave function is identified with the condensate wave function, or order parameter $\langle \hat{\psi} \rangle$. According to the Bogoliubov prescription, the field operator $\hat{\psi}$ can then be decomposed into its average value Ψ_0 and a remaining fluctuating operator $\hat{\theta}$. Expanding the two-body density matrix (52) with the Bogoliubov prescription, and refactorising the expression, we

showed that it can be written:

$$\begin{aligned} & \sum_{i=0}^{\infty} \Phi_{0i}^*(\mathbf{w}, \mathbf{z}) \Phi_{0i}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \\ & + \frac{1}{2} \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{w}) \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{z}) \hat{\theta}(\mathbf{x}) \hat{\theta}(\mathbf{y}) \rangle - \sum_{i \neq 0}^{\infty} \Phi_{0i}'^*(\mathbf{w}, \mathbf{z}) \Phi_{0i}'(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \end{aligned} \quad (53)$$

where:

$$\Phi_{00}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = \frac{1}{\sqrt{2}} \Psi_0(\mathbf{x}) \Psi_0(\mathbf{y}) + \Phi'_{00}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \quad (54)$$

$$\Phi_{0i}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = \frac{\Psi_0(\mathbf{x}) \Psi_i(\mathbf{y}) + \Psi_0(\mathbf{y}) \Psi_i(\mathbf{x})}{\sqrt{2}} + \Phi'_{0i}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \quad \text{for } i \neq 0 \quad (55)$$

and:

$$\begin{aligned} \Phi'_{00}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) &= \frac{1}{\sqrt{2}} \langle \hat{\theta}(\mathbf{x}) \hat{\theta}(\mathbf{x}) \rangle \\ \Phi'_{0i}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) &= \int d^3 \mathbf{z} \frac{\Psi_i(\mathbf{z})}{\sqrt{2N_i}} \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{z}) \hat{\theta}(\mathbf{x}) \hat{\theta}(\mathbf{y}) \rangle \quad \text{for } i \neq 0 \end{aligned}$$

As the Φ_{0i} 's and Φ_{00} are orthogonal in the limit of large systems, we conclude that we have found the first pair wave functions of the diagonalized form (52).

Φ_{00} is interpreted as the condensate-condensate wave function, *ie* the wave function for a pair of particles both coming from the condensed part. It is composed of two terms: an asymptotic term $\frac{1}{\sqrt{2}} \Psi_0(\mathbf{x}) \Psi_0(\mathbf{y})$ corresponding to the free motion of two independent condensate particles, and a scattering term Φ'_{00} corresponding to their correlated motion due to their interaction. Similarly, Φ_{0i} for $i \neq 0$ is interpreted as the condensate-noncondensate wave function, *ie* the wave function for two particles, one coming from the condensed part and the other coming from the noncondensed part. It is also composed of an asymptotic term $\frac{\Psi_0(\mathbf{x}) \Psi_i(\mathbf{y}) + \Psi_0(\mathbf{y}) \Psi_i(\mathbf{x})}{\sqrt{2}}$ (note the symmetrization) and a scattering term Φ'_{0i} . We can check that for a sufficiently large system the norm of Φ_{00} is $\frac{1}{2} N_0^2$, the number of condensate pairs, and the norm of Φ_{0i} is $N_0 N_i$, the number of pairs involving a condensate particle and a noncondensed particle in state $|\Psi_i\rangle$. The presence of a condensate therefore implies a condensation of unbound pairs, as $\frac{1}{2} N_0^2 \gg \sum_{i \neq 0} N_0 N_i$.

The last line of Eq. (53) corresponds to the remaining pair wave functions of the system. We have no explicit expression for those, but if we assume that the noncondensed particles form an ideal gas (*ie* do not interact), we can use Wick's theorem to express the last line,

and check that it is equal to:

$$\sum_{0 < i \leq j} \Phi_{ij}^*(\mathbf{w}, \mathbf{z}) \Phi_{ij}(\mathbf{x}, \mathbf{y})$$

with:

$$\begin{aligned} \Phi_{ij}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) &= \Psi_i(\mathbf{x}) \Psi_j(\mathbf{y}) \\ \Phi_{ij}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) &= \frac{\Psi_i(\mathbf{x}) \Psi_j(\mathbf{y}) + \Psi_i(\mathbf{y}) \Psi_j(\mathbf{x})}{\sqrt{2}} \quad \text{for } i \neq j \end{aligned}$$

which are indeed the expected pair wave functions for two noninteracting noncondensed atoms[?].

For convenience, we may rewrite the scattering terms appearing in (56) and (57) with multiplicative correlation functions φ_{0i} defined as follows:

$$\Phi_{00}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \equiv \frac{1}{\sqrt{2}} \Psi_0(\mathbf{x}) \Psi_0(\mathbf{y}) \varphi_{00}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \quad (56)$$

$$\Phi_{0i}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \equiv \frac{\Psi_0(\mathbf{x}) \Psi_i(\mathbf{y}) + \Psi_0(\mathbf{y}) \Psi_i(\mathbf{x})}{\sqrt{2}} \varphi_{0i}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \quad \text{for } i \neq 0 \quad (57)$$

We call these functions φ_{0i} the reduced pair wave functions. Assuming that the particles must be decorrelated at large distances, we expect that the reduced pair wave functions tend to 1 at large distances. Thus, we may write $\varphi_{0i} = 1 + \varphi'_{0i}$ for convenience, with φ'_{0i} vanishing at large distances. Another important property is that for an interaction with a strong repulsive core, the probability of finding two particles close to each other should tend to zero at short distances; we therefore expect that the reduced pair wave functions φ_{0i} tend to zero at short distances. This is precisely because they tend to zero at short distances that they have a regularising effect when multiplied with the interaction potential.

We can now express the quantum averages found in Eqs. (7) and (11) in terms of pair wave functions. By expanding the quantum average in Eq. (7) with the Bogoliubov prescription and refactorising the terms, we find:

$$\langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{z}) \hat{\psi}(\mathbf{z}) \hat{\psi}(\mathbf{x}) \rangle = \sqrt{2} \sum_{i=0}^{\infty} \Psi_i^*(\mathbf{z}) \Phi_{0i}(\mathbf{z}, \mathbf{x}) \quad (58)$$

This gives a clear interpretation of this term in Eq. (7): the condensate particles can collide either with another condensate particle or with a noncondensed particle. Each type of collision gives rise to a term looking like a scattering amplitude, where the corresponding two-body wave function is involved.

Similarly, by expanding the quantum average in Eq. (11) in terms of cumulants, and refactorising the terms, we find:

$$\langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{z})\hat{\psi}(\mathbf{z})\hat{\psi}(\mathbf{x})\hat{\psi}(\mathbf{y}) \rangle = \sqrt{3!} \sum_{i=0}^{\infty} \Psi_i^*(\mathbf{z})\Omega_{00i}(\mathbf{z}, \mathbf{x}) \quad (59)$$

with the three-body wave functions:

$$\begin{aligned} \Omega_{000}(\mathbf{z}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) &\equiv \frac{1}{\sqrt{3!}} \Psi_0(\mathbf{z})\Psi_0(\mathbf{x})\Psi_0(\mathbf{y}) \left(1 + \varphi'_{00}(\mathbf{z}, \mathbf{x}) + \varphi'_{00}(\mathbf{z}, \mathbf{y}) + \varphi'_{00}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \right) + \Omega'_{000}(\mathbf{z}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) \\ \Omega_{00i}(\mathbf{z}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) &\equiv \frac{1}{\sqrt{3!}} \left(\begin{aligned} &\Psi_i(\mathbf{z})\Psi_0(\mathbf{x})\Psi_0(\mathbf{y}) \left(1 + \varphi'_{0i}(\mathbf{z}, \mathbf{x}) + \varphi'_{0i}(\mathbf{z}, \mathbf{y}) + \varphi'_{00}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \right) \\ &+ \Psi_i(\mathbf{y})\Psi_0(\mathbf{z})\Psi_0(\mathbf{x}) \left(1 + \varphi'_{00}(\mathbf{z}, \mathbf{x}) + \varphi'_{0i}(\mathbf{z}, \mathbf{y}) + \varphi'_{0i}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \right) \\ &+ \Psi_i(\mathbf{x})\Psi_0(\mathbf{z})\Psi_0(\mathbf{y}) \left(1 + \varphi'_{0i}(\mathbf{z}, \mathbf{x}) + \varphi'_{00}(\mathbf{z}, \mathbf{y}) + \varphi'_{0i}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \right) \end{aligned} \right) + \Omega'_{00i}(\mathbf{z}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) \end{aligned}$$

where:

$$\begin{aligned} \Omega'_{000}(\mathbf{z}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) &= \frac{1}{\sqrt{3!}} \langle \hat{\theta}(\mathbf{z})\hat{\theta}(\mathbf{x})\hat{\theta}(\mathbf{y}) \rangle^c \\ \Omega'_{00i}(\mathbf{z}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) &= \int d^3\mathbf{w} \frac{\Psi_i(\mathbf{w})}{\sqrt{3!}N_i} \langle \hat{\theta}^\dagger(\mathbf{w})\hat{\theta}(\mathbf{z})\hat{\theta}(\mathbf{x})\hat{\theta}(\mathbf{y}) \rangle^c \end{aligned}$$

We note that the first term of each three-body wave functions is not the wave function of independent particles, contrary to what we found with pair wave functions. Indeed, it already contains some pair correlation through the terms φ' . However, these pair correlations are not complete. Indeed, if we have an interaction with a strong repulsive core, the probability of finding three atoms very close to one another must tend to zero. But here, the first term of each three-body wave function does not vanish when $\mathbf{x} \approx \mathbf{y} \approx \mathbf{z}$. We think this is because this first term is only the asymptotic behaviour of the three-body wave function at large distances. The terms Ω' must contain stronger correlations at short distances. We expect that at short distances, the three-body wave functions are in fact fully correlated through a product of reduced pair wave functions akin to a Jastrow wave function[39]:

$$\begin{aligned} \Omega_{000}(\mathbf{z}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) &\equiv \frac{1}{\sqrt{3!}} \Psi_0(\mathbf{z})\Psi_0(\mathbf{x})\Psi_0(\mathbf{y}) \varphi_{00}(\mathbf{z}, \mathbf{x})\varphi_{00}(\mathbf{z}, \mathbf{y})\varphi_{00}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + \Omega''_{000}(\mathbf{z}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) \\ \Omega_{00i}(\mathbf{z}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) &\equiv \frac{1}{\sqrt{3!}} \left(\begin{aligned} &\Psi_i(\mathbf{z})\Psi_0(\mathbf{x})\Psi_0(\mathbf{y}) \varphi_{0i}(\mathbf{z}, \mathbf{x})\varphi_{0i}(\mathbf{z}, \mathbf{y})\varphi_{00}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \\ &+ \Psi_i(\mathbf{y})\Psi_0(\mathbf{z})\Psi_0(\mathbf{x}) \varphi_{00}(\mathbf{z}, \mathbf{x})\varphi_{0i}(\mathbf{z}, \mathbf{y})\varphi_{0i}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \\ &+ \Psi_i(\mathbf{x})\Psi_0(\mathbf{z})\Psi_0(\mathbf{y}) \varphi_{0i}(\mathbf{z}, \mathbf{x})\varphi_{00}(\mathbf{z}, \mathbf{y})\varphi_{0i}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \end{aligned} \right) + \Omega''_{00i}(\mathbf{z}, \mathbf{x}, \mathbf{y}) \end{aligned}$$

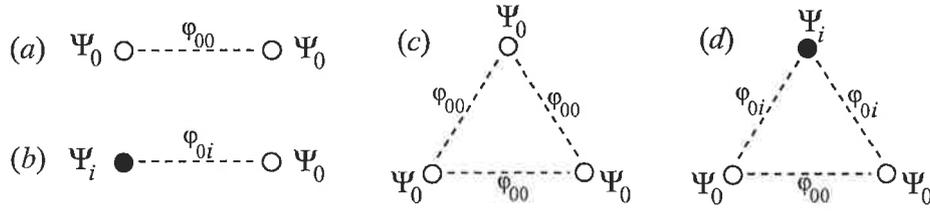


FIG. 7: Schematic representations of some effective in-medium wave functions in a condensate: the condensate pair wave function (a), the condensate-noncondensed pair wave function (b), the condensate three-body wave function (c), and the condensate-condensate-noncondensed three-body wave function (d). The circles indicate the asymptotic one-body behaviours, and the dashed lines represent the correlation.

This is the most natural structure which preserves the symmetry of the three-body wave functions and lead to a zero probability at short distances. The remaining terms Ω'' are supposed to contain the three-body correlations which cannot be expressed in terms of two-body correlations. Note again that the norm of Ω_{000} is $\frac{1}{3!}N_0^3$ corresponding to the number of condensate triplets, while the norm of Ω_{00i} is $\frac{1}{2}N_0^2N_i$, corresponding to the number of triplets involving two condensate particles and one particle in the noncondensed state $|\Psi_i\rangle$.

The interpretation of (59) appearing in Eq. (11) is again very simple: the pairs of condensate atoms can collide either with another condensate atom, or with a noncondensed atom. Each type of collision is accounted for by a scattering amplitude-like term, involving the corresponding three-body wave function.

2. Simplified expressions

Neglecting the collisions with noncondensed particles as well as the three-body correlation Ω''_{000} , we can express the quantum averages in terms of only the condensate wave function $\Psi \equiv \Psi_0$ and the condensate pair wave function $\Phi = \sqrt{2}\Phi_{00}$:

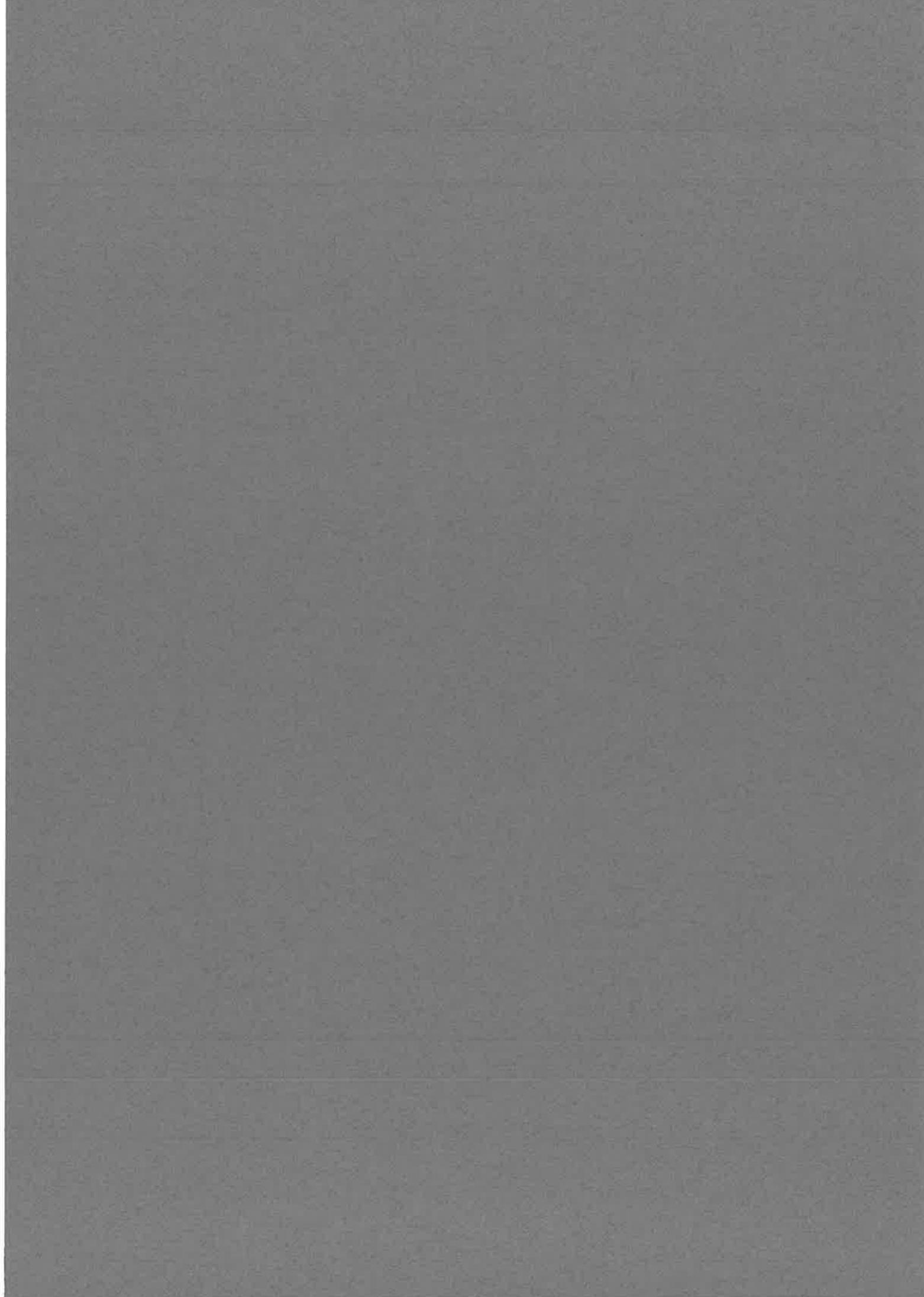
$$\langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{w})\hat{\psi}(\mathbf{z})\hat{\psi}(\mathbf{x}) \rangle \approx \Psi^*(\mathbf{w})\Phi(\mathbf{z}, \mathbf{x}) \quad (60)$$

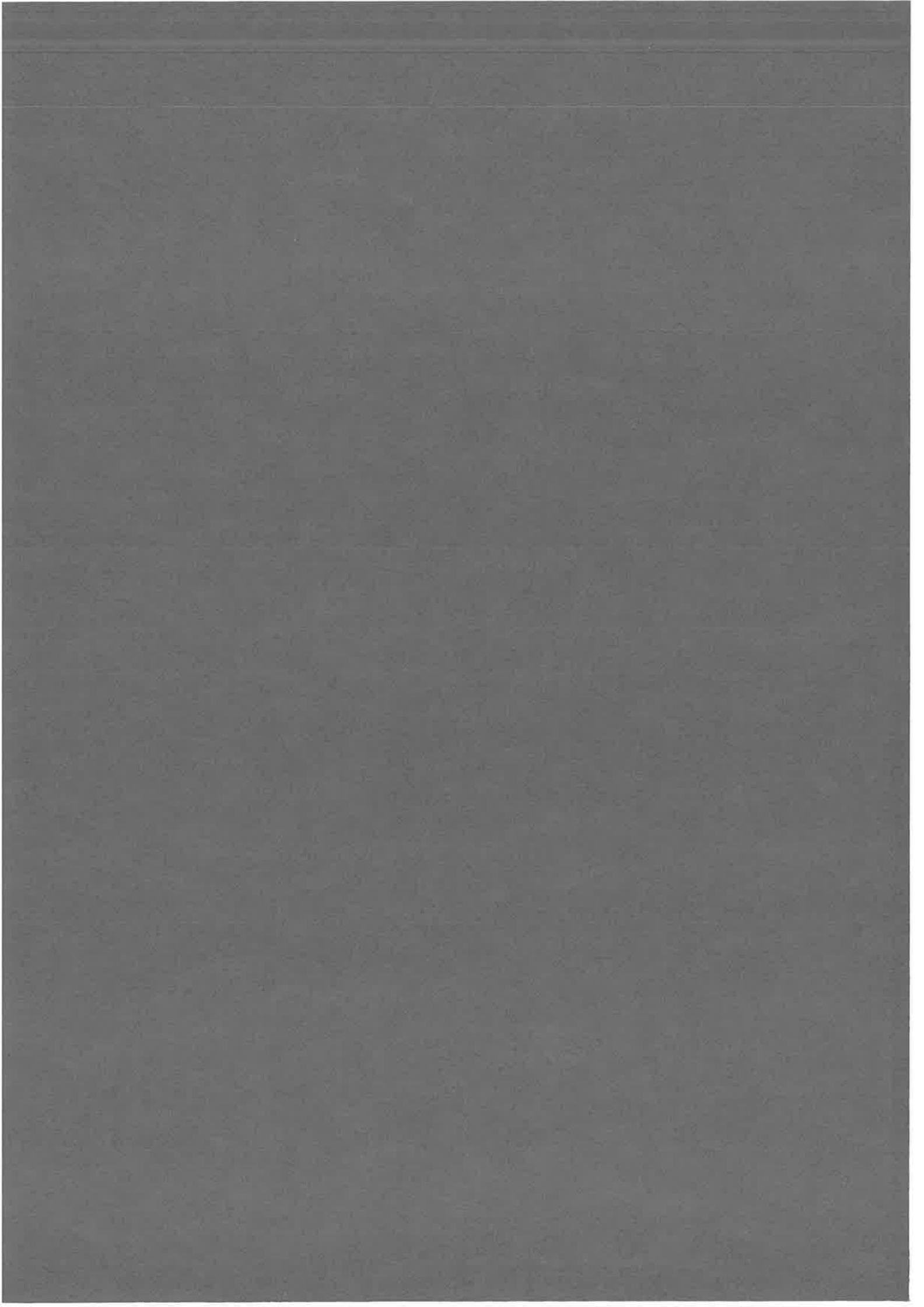
$$\langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{w})\hat{\psi}^\dagger(\mathbf{z})\hat{\psi}(\mathbf{x})\hat{\psi}(\mathbf{y}) \rangle \approx \Phi^*(\mathbf{w}, \mathbf{z})\Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \quad (61)$$

$$\langle \hat{\psi}^\dagger(\mathbf{w})\hat{\psi}(\mathbf{z})\hat{\psi}(\mathbf{x})\hat{\psi}(\mathbf{y}) \rangle \approx \Psi^*(\mathbf{z}, t) \frac{\Phi(\mathbf{z}, \mathbf{x}, t)\Phi(\mathbf{z}, \mathbf{y}, t)\Phi(\mathbf{x}, \mathbf{y}, t)}{\Psi(\mathbf{x}, t)\Psi(\mathbf{y}, t)\Psi(\mathbf{z}, t)} \quad (62)$$

Note that all these expressions respect the symmetry of the quantum averages by exchange

of coordinates. Approximations (60) and (61) are found within the first order cumulant approach, but not Approximation (62). The reduced pair wave approximation (23) used in this paper is a simplified version of (62) where the correlation between \mathbf{z} and \mathbf{x} is neglected.





Chapitre 7

Conclusion

L'objet de cette thèse était de modéliser la réaction de photoassociation dans un condensat atomique. Le rôle essentiel joué par la physique moléculaire dans ce processus nous a incité à chercher une modélisation capable de traiter des potentiels d'interaction réalistes. C'est un objectif qui s'est avéré très ambitieux et qui m'a amené à réfléchir sur le lien entre la physique à N corps et la physique moléculaire.

Nous avons vu en effet que la plupart des modèles à N corps pour les gaz dilués et froids ne traitent pas la physique moléculaire explicitement et remplacent les vrais potentiels d'interaction par des potentiels effectifs, en général des potentiels de contact. L'intérêt de cette approche est de pouvoir appliquer un traitement perturbatif de l'interaction, où un nombre minimal de termes de corrélation est retenu. En particulier, ce traitement perturbatif ne tient pas compte des corrélations à courtes distances. Celles-ci sont en général très fortes pour un vrai potentiel d'interaction, mais sont censées être prises en compte par le potentiel effectif.

Dans le cas de la photoassociation, le vrai potentiel d'interaction est multivoies et induit des corrélations dynamiques à courtes distances, en particulier lorsqu'on utilise des lasers de photoassociation fortement dépendants du temps, tels que des pulses façonnés en fréquence. L'utilisation de potentiels effectifs ne semble *a priori* plus adaptée à cette situation, et il faut traiter explicitement la dynamique des corrélations à courte distance. Dans ce cas, on ne peut plus utiliser les approches perturbatives habituelles, et il faut trouver un modèle plus général. Une partie du travail de thèse a ainsi été consacrée au développement d'un tel modèle. Des applications numériques ont ensuite été menées.

7.1 Résultats théoriques et développement d'un modèle

Dans un premier temps j'ai abordé la physique à N corps dans les condensats à basse température au travers de modèles standard tels que ceux de Hartree-Fock, de Bogolioubov et de Hartree-Fock-Bogolioubov. Le caractère perturbatif de ces modèles a été souligné. Par ailleurs, quelques difficultés théoriques concernant l'utilisation de potentiels de contact effectifs ont été mises à jour. Il s'agit de problèmes généraux d'une autre nature que ceux donnés plus haut pour les situations fortement dépendantes du temps. En effet, des difficultés ont été rencontrées pour l'évaluation de l'énergie fondamentale dans les modèles de Bogolioubov et Hartree-Fock-Bogolioubov. Dans le premier cas, on trouve que la dérivation standard de l'énergie fondamentale donne une valeur correcte, mais ne correspond pas au véritable état fondamental du système. Dans le second l'énergie fondamentale semble incorrecte. Il n'y a en revanche pas de difficulté pour le modèle Hartree-Fock, qui néglige toutes les corrélations du système. On pense que ces problèmes s'expliquent de la manière suivante. Les interactions de contact effectives sont construites pour remplacer les effets à courtes distances du vrai potentiel *dans le problème à deux corps*. En revanche, rien ne garantit qu'elles se substituent correctement aux corrélations *dans le problème*

à N corps. En particulier, les corrélations à trois corps apparaissant sous forme partielle dans les modèles de Bogolioubov et Hartree-Fock-Bogolioubov ne sont pas correctement traitées par les méthodes habituelles de renormalisation ou régularisation du potentiel delta. D'un point de vue mathématique, il serait probablement possible de trouver des méthodes de renormalisation similaires à celles utilisées en physique des particules pour régulariser les corrélations à N corps générées par un potentiel de contact. Néanmoins, il faut dans ce cas redéfinir les paramètres de l'hamiltonien (voir par exemple [Braaten1997]). En physique des particules, cette approche se justifie car le problème est intrinsèquement un problème à N corps et la nature ultime des interactions n'est pas connue. En revanche, dans les gaz d'atomes froids, le potentiel d'interaction entre deux atomes est connu, et rien n'empêche physiquement de ne considérer que deux atomes.

Ces considérations théoriques ont apporté un argument supplémentaire pour chercher à mieux comprendre le rôle des corrélations à courtes distances dans le problème à N corps pour un potentiel d'interaction réaliste. Je me suis ainsi basé sur l'approche de fonctions d'onde effectives initiée par A. Yu Cherny et A. A. Shalenko. J'ai tout d'abord généralisé cette approche au cas non-uniforme et dépendant du temps. Le traitement en termes de fonctions d'onde effectives fait apparaître explicitement les corrélations à 3 corps, exprimées en première approximation par des produits de fonction d'onde de paire. Ces corrélations à trois corps ont un comportement correct à courte distance : elles s'annulent si le potentiel d'interaction est singulier. J'ai cherché à extraire de cette approche un modèle cohérent du point de vue théorique, et pouvant par ailleurs être résolu numériquement. Les efforts dans ce sens ont donné des résultats intéressants. On a ainsi proposé l'*approximation de paire*, où toutes les fonctions de corrélations sont exprimées uniquement en termes de fonctions d'onde à deux corps, de la même manière que l'approximation Hartree-Fock exprime les différentes fonctions de corrélation uniquement en termes de fonctions d'onde à un corps. Ceci permet de retrouver un certain nombre de résultats comme l'énergie de Lee-Yang [Lee1957b] ou l'équation de Gross-Pitaevskiï généralisée [Braaten1997]. Les dérivations proposées sont valables pour n'importe quel potentiel, et justifient les résultats obtenus avec des potentiels effectifs. Néanmoins, il n'a pas encore été démontré que les équations dans l'approximation de paire sont parfaitement cohérentes du point de vue théorique. Afin de pouvoir effectuer des calculs numériques, une version simplifiée appelée *approximation de la paire réduite* a été considérée. Bien qu'incomplète, cette approximation est compatible avec les équations de Gross-Pitaevskiï et permet de juger l'importance des corrélations à courtes distances par rapport à l'approximation du 1er ordre de la *méthode des cumulants* développée à Oxford par T. Köhler et ses collaborateurs.

Dans un second temps, l'approche des fonctions d'onde effectives a été généralisée au cas de voies couplées. J'ai souligné les difficultés inhérentes à la description d'interaction multivoies dans un problème à N corps. Moyennant une description phénoménologique, j'ai pu redériver et justifier [Naidon2003] la théorie de champ moyen formulée par E. Timmermans *et al.* [Timmermans1999]. Cette dérivation fait notamment apparaître un déplacement lumineux absent dans la dérivation originale. J'ai montré que cette théorie de champ moyen était valide tant que la dynamique de paire pouvait être considérée comme quasi-stationnaire vis-à-vis de l'évolution du condensat. Cette analyse conduit aux mêmes prédictions que la théorie à deux corps, ce qui explique l'absence d'observations d'effets à N corps dans les expériences de photoassociation de condensats considérées. Les solutions stationnaires dans l'approximation de la paire réduite ont ensuite été examinées et on a montré comment le champ moyen des atomes induit un léger décalage de la résonance.

7.2 Application à la photoassociation

Deux approximations ont été retenues pour effectuer des calculs numériques avec des potentiels réalistes : l'*approximation des cumulants au 1er ordre* et l'*approximation de la paire réduite*. L'intérêt de ces calculs est double : d'une part, on teste l'influence de la prise en compte de

potentiels réalistes, d'autre part on teste la différence de description des corrélations entre les deux approximations.

Dans ce type de calculs, la longueur de diffusion doit être calculée à chaque instant par intégration du potentiel multiplié par une fonction de corrélation, selon une formule analogue à celle d'une amplitude de diffusion. J'ai montré la faisabilité de tels calculs, en comparant les longueurs de diffusion obtenues avec celles données par d'autres méthodes.

Les calculs concernant la photoassociation avec un laser continu ont confirmé l'analyse théorique : la théorie de champ moyen est vérifiée pour la photoassociation avec des lasers continus d'intensité modérée et est compatible avec la théorie à deux corps. Pour de plus fortes intensités, on obtient une saturation du taux de photoassociation compatible avec les travaux de Thomas Gasenzer. Cette saturation s'explique par l'apparition de modes non-condensés correspondant à des paires d'atomes corrélés formées pendant le branchement du laser. L'approximation des cumulants au 1er ordre et l'approximation de la paire réduite donnent des résultats qualitativement similaires.

Enfin, nous avons considéré des rampes de fréquence laser, analogues aux rampes de champ magnétique dans les expériences de résonances de Feshbach. Les rampes « vers le haut » conduisent à une destruction du condensat (expériences de « Bosenova ») accompagnée de paires d'atomes corrélés. Les deux approximations de la paire réduite et des cumulants au premier ordre donnent sensiblement les mêmes résultats. Les rampes « vers le bas » conduisent à la formation d'un condensat moléculaire dans les deux approximations, mais la nature des molécules semble différer entre les deux cas : l'approximation de la paire réduite donne une importance plus grande à la composante dans la voie du bas. Ce point confirme que les corrélations à courte distance peuvent jouer un rôle important dans ce type de situations.

7.3 Perspectives

Sur le plan théorique, il reste encore à clarifier un certain nombre de propriétés pour véritablement « valider » l'approche des fonctions d'onde effectives. La relation générale entre modes condensés et corrélations reste à ce jour inconnue. A. Yu Cherny et A. A. Shanenko ont conjecturé une extension de la relation de Bogolioubov pour l'état fondamental [Cherny2000] (nous donnons ici sa forme généralisée au cas non-uniforme) :

$$R'(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + \int d^3\mathbf{z} R'^*(\mathbf{z}, \mathbf{x}) R'(\mathbf{z}, \mathbf{y}) = \sum_{i=0}^{\infty} \int d^3\mathbf{z} \Phi'_{0i}^*(\mathbf{z}, \mathbf{x}) \Phi'_{0i}(\mathbf{z}, \mathbf{y})$$

où R' désigne la matrice-densité à un corps des atomes non-condensés, et Φ'_{0i} correspond à la partie corrélée de la fonction d'onde à deux corps pour un atome condensé et un atome dans le i ème état non-condensé. J'ai trouvé quelques indications de la validité de cette relation, sans pouvoir la montrer entièrement. La démonstration d'une telle relation dans le régime non-stationnaire serait essentielle, notamment pour garantir la positivité des modes non-condensés au cours du temps. L'approche pourrait également être étendue au cas des fermions, qui font l'objet d'une intense activité expérimentale depuis plus d'un an. Un premier pas dans ce sens a récemment été effectué par A. A. Shanenko [Shanenko2004].

Il reste également de nombreux points à étudier numériquement. Je me suis restreints au cas des lasers continus et des rampes de fréquences. Ces situations ont mis en défaut la théorie de champ moyen, mais n'ont pas mis en évidence d'effets réclamant une description détaillée de l'interaction. Néanmoins, on a montré que la prise en compte de potentiels réalistes ne pose pas de problèmes particulier sur le plan numérique. Il serait donc intéressant d'étendre les calculs à la photoassociation à deux couleurs ou la photoassociation avec des pulses lasers. Par ailleurs, les calculs ont été jusqu'à présent effectués dans un système uniforme. Il serait également intéressant de généraliser la méthode numérique pour des système piégés.

Bibliographie

- [Amiot2002] C. AMIOT, O. DULIEU, R. F. GUTTERRES, AND F. MASNOU-SEEUWS. *Determination of the $Cs_2 0_g^-(p_{3/2})$ state and of the $Cs 6P_{1/2,3/2}$ atomic radiative lifetimes from photoassociation spectroscopy.* *Phys. Rev. A*, 66 :052506, 2002.
- [Anderson1995] M.H. ANDERSON, J.R. ENSHER, M.R. MATTHEWS, C.E. WIEMAN, AND E.A. CORNELL. *Observations of Bose-Einstein condensation in a dilute atomic vapor.* *Science*, 269 :198–201, 1995.
- [Bahns2000] J. T. BAHNS, P. L. GOULD, AND W. C. STWALLEY. *Formation of cold ($T < 1K$) molecules.* *Adv. At. Mol. Phys*, 42 :71, 2000.
- [Beliaev1958] S. T. BELIAEV. ? *Sov. Phys. JETP*, 7 :299, 1958. reprinted in *The Many-Body Problem*, edited by D. Pines (W. A. Benjamin, New York, 1961).
- [Bethlem2000] H. L. BETHLEM, G. BERDEN, F. M. H. CROMPVOETS, R. T. JONGMA, A. J. A. VAN ROIJ, AND G. MEIJER. *Electrostatic trapping of ammonia molecules.* *Nature*, 406 :491, 2000.
- [Blume2001] D. BLUME AND C. H. GREENE. *Quantum corrections to the ground-state of a trapped Bose-Einstein condensate : a diffusion Monte-Carlo calculation.* *Phys. Rev. A*, 63 :063601, 2001.
- [Bogoliubov1947] N. N. BOGOLIUBOV. *J. Phys. (USSR)*, 11(23), 1947. reprinted in *The many-body problem*, edited by D. Pines (W. A. Benjamin, New York, 1961).
- [Bogoliubov1959] N. N. BOGOLIUBOV. *Usp. fiz. nauk* 67 549 (1959). *Sov. Phys. Usp.*, 2 :236, 1959.
- [Bohn1997] J. L. BOHN AND P. S. JULIENNE. *Prospects for influencing scattering lengths with far-off-resonant light.* *Phys. Rev. A*, 56 :1486, 1997.
- [Bohn1999] J. L. BOHN AND P. S. JULIENNE. *Semianalytic theory of laser-assisted resonant cold collisions.* *Phys. Rev. A*, 60 :414, 1999.
- [Braaten1997] E. BRAATEN AND A. NIETO. *Quantum corrections to the ground state of a trapped Bose-Einstein condensate.* *Phys. Rev. B*, 56(22) :14745, 1997.
- [Braaten2003] ERIC BRAATEN, H.-W. HAMMER, AND M. KUSONOKI. *Comment on "ramsey fringes in a Bose-Einstein condensate between atoms and molecules"*. 2003.
- [Brueckner1957] K. A. BRUECKNER AND K. SAWADA. *Bose-Einstein gas with repulsive interactions ; general theory.* *Phys. Rev.*, 106 :1117, 1957.
- [Bulgac1980] AUREL BULGAC. *Hartree-Fock-Bogoliubov approximation for finite systems.* 1980.
- [Burke1997] JAMES P. BURKE, JR., JOHN L. BOHN, B. D. ESRY, AND CHRIS H. GREENE. *Prospects for mixed-isotope Bose-Einstein condensates in rubidium.* *Phys. Rev. Lett.*, 80 :2097, 1997.

- [Castin1998] Y. CASTIN AND R. DUM. *Low-temperature Bose-Einstein condensates in time-dependent traps : Beyond the $U(1)$ symmetry-breaking approach.* *Phys. Rev. A*, 57 :3008–3021, 1998.
- [Cherny1998] A. YU. CHERNY. *Pair wave functions in a Bose liquid.* 1998.
- [Cherny2000] A. YU. CHERNY AND A. A. SHANENKO. *Short-range particle correlations in dilute Bose gas.* *Phys. Rev. E*, 62 :1646–1659, 2000.
- [Cherny2001] A. YU. CHERNY AND A. A. SHANENKO. *Dilute Bose gas : short-range particle correlation and ultraviolet divergence.* *Eur. Phys. J. B*, 19 :555–564, 2001.
- [Cherny2004] A. YU. CHERNY AND J. BRAND. *Self-consistent calculation of the coupling constant in the Gross-Pitaevskii equation.* june 2004.
- [Claussen2003] N. R. CLAUSSEN, S. J. J. M. F. KOKKELMANS, S. T. THOMPSON, E. A. DONLEY, E. HODBY, AND C. E. WIEMAN. *Very-high-precision bound-state spectroscopy near a ^{85}Rb Feshbach resonance.* *Phys. Rev. A*, 67 :070601, 2003.
- [Comparat1999] Daniel Comparat. *Molécules froides : formation de molécules froides par photoassociation d'atomes froids de césium. Mise en évidence de forces à longue portée entre atomes froids excités de césium.* PhD thesis, 1999. Université Paris XI.
- [Cornish2000] S. L. CORNISH, N. R. CLAUSSEN, J. L. ROBERTS, E. A. CORNELL, AND C. E. WIEMAN. *Stable ^{85}Rb Bose-Einstein condensates with widely tunable interactions.* 85(9) :1795–1798, 2000.
- [Courteille1998] PH. COURTEILLE, R. S. FREELAND, D. J. HEINZEN, F. A. VAN ABELEN, AND B. J. VERHAAR. *Observation of a Feshbach resonance in cold atom scattering.* *Phys. Rev. Lett.*, 81 :69, 1998.
- [Cubizolles2003] J. CUBIZOLLES, T. BOURDEL, S. J. J. M. F. KOKKELMANS, G. V. SHLYAPNIKOV, AND C. SALOMON. *Production of long-lived ultracold Li_2 molecules from a Fermi gas.* *Phys. Rev. Lett.*, 91 :240401, 2003.
- [Cusack2001] BENEDICT. J. CUSACK, TRISTAM J. ALEXANDER, ELENA A. OSTROVSKAYA, AND YURI S. KIVSHAR. *Existence and stability of coupled atomic-molecular Bose-Einstein condensates.* *Phys. Rev. A*, 65 :013609, december 2001.
- [Dalfovo1999] F. DALFOVO, S. GIORGINI, L. P. PITAEVSKIĪ, AND S. STRINGARI. *Theory of Bose-Einstein condensation in trapped gases.* *Rev. Mod. Phys.*, 71(3) :463–512, 1999.
- [Davis1995] K. B. DAVIS, M. O. MEWES, M. R. ANDREWS, N. J. VAN DRUTEN, D. S. DURFEE, D. M. KURN, AND W. KETTERLE. *Bose-Einstein condensation in a gas of sodium atoms.* *Phys. Rev. Lett.*, 75 :3969, 1995.
- [DeMille2002] D. DEMILLE. *Quantum computation with trapped polar molecules.* *Phys. Rev. Lett.*, 88 :067901, 2002.
- [Denschlag2000] J. DENSLAG, J. E. SIMSARIAN, D. L. FEDER, CHARLES W. CLARK, L. A. COLLINS, J. CUBIZOLLES, L. DENG, E. W. HAGLEY, K. HELMERSON, W. P. REINHARDT, S. L. ROLSTON, B. I. SCHNEIDER, AND W. D. PHILLIPS. *Generating solitons by phase engineering of a Bose-Einstein condensate.* *Science*, 287 :97, 2000.
- [Donley2001] E.A. DONLEY, N.R. CLAUSSEN, S.L. CORNISH, J.L. ROBERTS, E.A. CORNELL, AND C.E. WIEMAN. *Nature*, 412 :295, 2001.

- [Donley2002] E. A. DONLEY, N. R. CLAUSSEN, S. T. THOMPSON, AND C. E. WIEMAN. *Atom-molecule coherence in a Bose-Einstein condensate*. *Nature*, 417 :529, 2002.
- [Doyle1999] J. M. DOYLE AND B. FRIEDRICH. *Molecules are cool*. *Nature*, 401 :749, 1999.
- [Drummond1998] P.D. DRUMMOND AND K.V. KHERUNTSYAN. *Coherent molecular solitons in Bose-Einstein condensates*. *Phys. Rev. Lett.*, 81 :3055, 1998.
- [Drummond2002] P.D. DRUMMOND, K.V. KHERUNTSYAN, D.J. HEINZEN, AND R.H. WYNAR. *Stimulated Raman adiabatic passage from an atomic to a molecular Bose-Einstein condensate*. *Phys. Rev. A*, 65 :063619, 2002.
- [Duine2003] R. A. DUINE AND H. T. C. STOOF. *Many-body aspects of coherent atom-molecule oscillations*. *Phys. Rev. Lett.*, 91 :150405, 2003.
- [Dürr2004] S. DÜRR, T. VOLZ, A. MARTE, AND G. REMPE. *Observation of molecules produced from a Bose-Einstein condensate*. *Phys. Rev. Lett.*, 92 :020406, 2004.
- [E.A.Hinds1997] E.A.HINDS. *Testing time reversal symmetry using molecules*. *Physica Scripta*, T70 :34, 1997.
- [Einstein1925] ALBERT EINSTEIN. *Quantentheorie des einatomigen idealen gases, zweite abhandlung*. *Sitzungsberichte der Preussischen Akademie der Wissenschaft, Physikalisch-mathematische Klasse*, 1925(1) :3-14, 1925.
- [Fatemi2000] F.K. FATEMI, K.M. JONES, AND P.D. LETT. *Observation of optically induced Feshbach resonances in collisions of cold atoms*. *Phys. Rev. Lett.*, 85 :4462, 2000.
- [Fatemi2002] F. K. FATEMI, K. M. JONES, P. D. LETT, AND E. TIESINGA. *Ultracold ground-state molecule production in sodium*. *Phys. Rev. A*, 66 :053401, 2002.
- [Fedichev1996] P. O. FEDICHEV, YU. KAGAN, G. V. SHLYAPNIKOV, AND J. T. M. WALRAVEN. *Influence of nearly resonant light on the scattering length in low-temperature atomic gases*. *Phys. Rev. Lett.*, 77 :2913, 1996.
- [Fermi1934] E. FERMI. *Nuovo Cim.*, 11 :157-166, 1934.
- [Feshbach1958] H. FESHBACH. *Ann. Phys.*, 5 :537, 1958.
- [Fetter1971] A. L. FETTER AND J. D. WALECKA. *Quantum Theory of Many-particle Systems*. McGraw-Hill, New York, 1971.
- [Fioretti1998] A. FIORETTI, D. COMPARAT, A. CRUBELLIER, O. DULIEU, F. MASNOU-SEEUWS, AND P. PILLET. *Formation of Cs₂ cold molecules through photoassociation*. *Phys. Rev. Lett.*, 80 :4402, 1998.
- [Fioretti2001] A. FIORETTI, C. AMIOT, C. M. DION, O. DULIEU, M. MAZZONI, G. SMIRNE, AND C. GABBANINI. *Cold rubidium molecules formation through photoassociation : a spectroscopic study of the 0_g⁻ long-range state of ⁸⁷Rb₂*. *Eur. Phys. J. D*, 15 :189, 2001.
- [Foucrault1992] M. FOUCAULT, PH. MILLIE, AND J.P. DAUDAY. *Nonperturbative method for core-valence correlation in pseudopotential*. *J. Chem. Phys.*, 96(2) :1257, 1992.
- [Fricke1996] JENS FRICKE. *Transport equations including many-particle correlations for an arbitrary quantum system. general formalism*. *Ann. Phys.*, 252 :479, 1996.
- [Friedrich1991] H. Friedrich. *Theoretical atomic physics*. Springer, Heidelberg, 1991.

- [Gabbanini2000] C. GABBANINI, A. FIORETTI, A. LUCCHESINI, S. GOZZINI, AND M. MAZZONI. *Cold rubidium molecules formed in a magneto-optical trap. Phys. Rev. Lett.*, 84 :2814, 2000.
- [Gardiner1997] C. W. GARDINER. *Particle-number-conserving Bogoliubov method which demonstrates the validity of the time-dependent Gross-Pitaevskii equation for a highly condensed bose gas. Phys. Rev. A*, 56 :1414, 1997.
- [Gasenzer2004] T. GASENZER. *High light intensity photoassociation in a Bose-Einstein condensate. Phys. Rev. A*, 70 :021603(R), 2004.
- [Gerton2001] JORDAN M. GERTON, BRIAN J. FREW, AND RANDALL G. HULET. *Photoassociative frequency shift in a quantum degenerate gas. Phys. Rev. A*, 64 :053410, 2001.
- [Góral2001a] K. GÓRAL, M. GAJDA, AND K. RZAŻEWSKI. *Multimode dynamics of a coupled ultracold atomic-molecular system. Optics Express*, 8 :92, 2001.
- [Góral2001b] K. GÓRAL, M. GAJDA, AND K. RZAŻEWSKI. *Multimode dynamics of a coupled ultracold atomic/molecular condensate. Phys. Rev. Lett.*, 86 :1397, 2001.
- [Góral2004a] K. GÓRAL, T. KÖHLER, S. A. GARDINER, E. TIESINGA, AND P. S. JULIENNE. *Adiabatic association of ultracold molecules via magnetic field tunable interactions. J. Phys. B*, 37 :3457, 2004.
- [Góral2004b] K. GÓRAL, T. KÖHLER, T. GASENZER, AND K. BURNETT. *Dynamics of correlations in atomic Bose-Einstein condensates. J. Mod. Opt.*, 51 :1731, 2004.
- [Griffin1996] A. GRIFFIN. *Conserving and gapless approximations for an inhomogeneous Bose gas at finite temperatures. Phys. Rev. B*, 53(14) :9341, 1996.
- [Hau1998] L. HAU, B. D. BUSCH, C. LIU, Z. DUTTON, M. M. BURNS, AND J. A. GOLOVCHENKO. *Near-resonant spatial images of confined bose-einstein condensates in a 4-dee magnetic bottle. Phys. Rev. A*, 58 :R54, 1998.
- [Herbig2003] J. HERBIG, T. KRAEMER, M. MARK, T. WEBER, C. CHIN, H.-C. NÄGERL, AND R. GRIMM. *Preparation of a pure molecular quantum gas. Science*, 301 :1510, 2003.
- [Holland2001a] M. HOLLAND, S.J.J.M.F. KOKKELMANS, M.L. CHIOFALO, AND R. WALSER. *Resonance superfluidity in a quantum degenerate Fermi gas. Phys. Rev. Lett.*, 87 :120406, 2001.
- [Holland2001b] M. HOLLAND, J. PARK, AND R. WALSER. *Formation of pairing fields in resonantly coupled atomic andmolecular Bose-Einstein condensates. Phys. Rev. Lett.*, 86 :1915, 2001.
- [Hope2001a] J. J. HOPE AND M. K. OLSEN. *Quantum superchemistry : dynamical quantum effects in coupled atomic and molecular Bose-Einstein condensates. Phys. Rev. Lett.*, 86 :3220, 2001.
- [Hope2001b] J. J. HOPE, M. K. OLSEN, AND L. I. PLIMAK. *Multimode model of the formation of molecular Bose-Einstein condensates by bose-stimulated raman adiabatic passage. Phys. Rev. A*, 63 :043603, 2001.
- [Huang1957] KERSON HUANG AND C. N. YANG. *Quantum-mechanical many-body problem with hard-sphere interaction. Phys. Rev.*, 105 :767, 1957.
- [Huang1987] Kerson Huang. *Statistical Mechanics*. Wiley, New-York, 1987.

- [Hudson2002] J. J. HUDSON, B. E. SAUER, M. R. TARBUTT, AND E. A. HINDS. *Measurement of the electron electric dipole moment using YbF molecules. Phys. Rev. Lett.*, 89 :023003, 2002.
- [Hugenholtz1959] N. M. HUGENHOLTZ AND D. PINES. *Ground-state energy and excitation spectrum of a system of interacting bosons. Phys. Rev.*, 116 :489, 1959.
- [Inouye1998] S. INOUE, M.R. ANDREWS, J. STENGER, H.-J. MIESNER, D.M. STAMPER-KURN, AND W. KETTERLE. *Nature*, 392 :151–154, 1998.
- [Jastrow1955] ROBERT JASTROW. *Many-body problem with strong forces. Phys. Rev.*, 98 :1479, june 1955.
- [Javanainen1998] J. JAVANAINEN AND M. MACKIE. *Probability of photoassociation from a quasicontinuum approach. Phys. Rev. A*, 58 :R789, 1998.
- [Javanainen1999] J. JAVANAINEN AND M. MACKIE. *Coherent photoassociation of a Bose-Einstein condensate. Phys. Rev. A*, 59 :R3186, 1999.
- [Javanainen2002] JUHA JAVANAINEN AND MATT MACKIE. *Rate limit for photoassociation of a Bose-Einstein condensate. Phys. Rev. Lett.*, 88 :090403, 2002.
- [Joachain1975] C. J. JOACHAIN. *Quantum Collision Theory*. North-Holland Physics Publishing/Elsevier, 1975. ISBN 0-444-86773-2 (Elsevier).
- [Jochim2003a] S. JOCHIM, M. BARTENSTEIN, A. ALTMAYER, G. HENDL, C. CHIN, J. HECKER DENSCHLAG, AND R. GRIMM. *Pure gas of optically trapped molecules created from fermionic atoms. Phys. Rev. Lett.*, 91 :240402, 2003.
- [Jochim2003b] S. JOCHIM, M. BARTENSTEIN, A. ALTMAYER, G. HENDL, S. RIEDL, C. CHIN, J. HECKER DENSCHLAG, AND R. GRIMM. *Bose-Einstein condensation of molecules. Science*, 302 :2101, 2003.
- [J.Weiner1999] J. WEINER, V. S. BAGNATO, S. C. ZILIO, AND P. S. JULIENNE. *Experiments and theory in cold and ultracold collisions. Rev. Mod. Phys.*, 71 :1, 1999.
- [Koch2004] CHRISTIANE P. KOCH, JOSÉ P. PALAO, RONNIE KOSLOFF, AND FRANÇOISE MASNOU-SEEUWS. *Stabilization of ultracold molecules using optimal control theory. Phys. Rev. A*, 70 :013402, 2004.
- [Köhler2002] THORSTEN KÖHLER AND KEITH BURNETT. *Microscopic quantum dynamics approach to the dilute condensed bose gas. Phys. Rev. A*, 65 :033601, 2002.
- [Köhler2003a] T. KÖHLER, T. GASENZER, AND K. BURNETT. *Microscopic theory of atom-molecule oscillations in a Bose-Einstein condensate. Phys. Rev. A*, 67 :013601, 2003.
- [Köhler2003b] T. KÖHLER, T. GASENZER, P. S. JULIENNE, AND K. BURNETT. *The nature of Feshbach molecules in Bose-Einstein condensates*. february 2003.
- [Köhler2004] T. KÖHLER, K. GÓRAL, AND T. GASENZER. *Heating and atom loss during upward ramps of Feshbach resonance levels in Bose-Einstein condensates. Phys. Rev. A*, 70 :023613, 2004.
- [Kokkelmans2002a] S. J. J. M. F. KOKKELMANS AND M. J. HOLLAND. *Ramsey fringes in a Bose-Einstein condensate between atoms and molecules. Phys. Rev. Lett.*, 89 :180401, 2002.
- [Kokkelmans2002b] S.J.J.M.F. KOKKELMANS, J.N. MILSTEIN, M.L. CHIOFALO, R. WALSER, AND M.J. HOLLAND. *Resonance superfluidity : Renormalization of resonance scattering theory. Phys. Rev. A*, 65 :053617, 2002.

- [Kokoouline1999] V. KOKOULINE, O. DULIEU, R. KOSLOFF, AND F. MASNOU-SEEUWS. *Mapped Fourier methods for long-range molecules : application to perturbations in the $Rb_2(0_u^+)$ photoassociation spectrum.* *J. Chem. Phys.*, 110 :9865, 1999.
- [Kokoouline2001] V. KOKOULINE, J. VALA, AND R. KOSLOFF. *Tuning the scattering length of the ground triplet state of Cs_2 .* *J. Chem. Phys.*, 114 :3046, 2001.
- [Kosloff1994] R. KOSLOFF. *Propagation methods for quantum molecular dynamics.* *Annu. Rev. Phys. Chem.*, 45 :145–178, 1994.
- [Kostrun2000] M. KOSTRUN, M. MACKIE, R. CÔTÉ, AND J. JAVANAINEN. *Theory of coherent photoassociation of a Bose-Einstein condensate.* *Phys. Rev. A*, 62 :063616, 2000.
- [Landau1967] L. Landau and E. Lifchitz. *Mécanique Quantique - théorie non-relativiste.* Éditions Mir, 1967.
- [LB2004] H. Lefebvre-Brion and R. W. Field. *The Spectra and Dynamics of Molecules.* Elsevier, 2004. ISBN 0-12-441456-7.
- [Lee1957a] T. D. LEE, KERSON HUANG, AND C. N. YANG. *Eigenvalues and eigenfunctions of a bose system of hard spheres and its low-temperature properties.* *Phys. Rev.*, 106 :1135–1145, 1957.
- [Lee1957b] T. D. LEE AND C. N. YANG. *Many-body problem in quantum mechanics and quantum statistical mechanics.* *Phys. Rev.*, 105 :1119–1120, 1957.
- [Lee1959] T. D. LEE AND C. N. YANG. *Many-body problem in quantum statistical mechanics. i. general formulation.* *Phys. Rev.*, 113(5) :1165, 1959.
- [Leggett2001] ANTHONY J. LEGGETT. *Bose-Einstein condensation in the alkali gases : Some fundamental concepts.* *Rev. Mod. Phys.*, 73 :307–356, april 2001.
- [Leggett2003] ANTHONY J. LEGGETT. *The relation between the Gross-Pitaevskii and Bogoliubov descriptions of a dilute Bose gas.* *New Journal of Physics*, 5 :103.1–103.15, 2003.
- [Lett1993] P. D. LETT, K. HELMERSON, W. D. PHILIPS, L. P. RATLIFF, S. L. ROLSTON, AND M. E. WAGSHUL. *Spectroscopy of Na_2 by photoassociation of laser-cooled Na .* *Phys. Rev. Lett.*, 71 :2200, 1993.
- [LK2004a] E. LUC-KOENIG, R. KOSLOFF, F. MASNOU-SEEUWS, AND M. VATASESCU. *Photoassociation of cold atoms with chirped laser pulses : time-dependent calculations and analysis of the adiabatic transfer within a two-state model.* *Phys. Rev. A*, 70 :033414, 2004.
- [LK2004b] E. LUC-KOENIG, M. VATASESCU, AND F. MASNOU-SEEUWS. *Optimizing the photoassociation of cold atoms by use of chirped laser pulses.* december 2004. EPJD in press (physics/0407112).
- [Mackie2000a] M. MACKIE AND J. JAVANAINEN. *Role of Bose enhancement in photoassociation.* *J. Mod. Optics*, 47 :2645, 2000.
- [Mackie2000b] M. MACKIE, R. KOWALSKI, AND J. JAVANAINEN. *Bose-stimulated Raman adiabatic passage in photoassociation.* *Phys. Rev. Lett.*, 84 :3803, 2000.
- [Mackie2000c] M. MACKIE, E. TIMMERMANS, R. CÔTÉ, AND J. JAVANAINEN. *Driving superfluidity with photoassociation.* *Optics Express*, 8 :118, 2000.
- [Mackie2002] MATT MACKIE, KALLE-ANTTI SUOMINEN, AND JUHA JAVANAINEN. *Mean-field theory of Feshbach-resonant interactions in ^{85}Rb condensates.* *Phys. Rev. Lett.*, 89 :180403, 2002.

- [Madison2000] K. W. MADISON, F. CHEVY, W. WOHLLEBEN, AND J. DALIBARD. *Vortex formation in a stirred Bose-Einstein condensate*. *Phys. Rev. Lett.*, 84 :806, 2000.
- [Marte2002] A. MARTE, T. VOLZ, J. SCHUSTER, S. DÜRR, G. REMPE, E.G.M. VAN KEMPEN, AND B.J. VERHAAR. *Feshbach resonances in rubidium 87 : precision measurement and analysis*. *Phys. Rev. Lett.*, 89 :283202, 2002.
- [McAlexander1995] W. I. MC ALEXANDER, E. R. I. ABRAHAM, AND R. G. HULET. *Precise atomic radiative lifetime via photoassociative spectroscopy of lithium*. *Phys. Rev. A*, 51 :R871, 1995.
- [McKenzie2002] C. MCKENZIE, J. H. DENSCHLAG, H. HÄFFNER, A. BROWAEYS, L. E. DE ARAUJO, F. FATEMI, K. M. JONES, J. SIMSARAN, D. CHO, A. SIMONI, E. TIESINGA, P. JULIENNE, K. HELMERSON, P. LETT, S. L. ROLSTON, AND W. PHILLIPS. *Photoassociation of sodium in a Bose-Einstein condensate*. *Phys. Rev. Lett.*, 88 :12403, 2002.
- [M.Greiner2003] M.GREINER, C. A. REGAL, AND D. S. JIN. *Emergence of a molecular Bose-Einstein condensate from a Fermi gas*. *Nature*, 426 :537, 2003.
- [Mies2000] F. H. MIES, E. TIESINGA, AND P. S. JULIENNE. *Manipulation of Feshbach resonances in ultracold atomic collisions using time-dependent magnetic fields*. *Phys. Rev. A*, 61 :022721, 2000.
- [Miller1993] J. D. MILLER, R. A. CLINE, AND D. J. HEINZEN. *Photoassociation spectrum of ultracold Rb atoms*. *Phys. Rev. Lett.*, 71 :2204, 1993.
- [Milstein2003] J. N. MILSTEIN, C. MENOTI, AND M. J. HOLLAND. *Feshbach resonances and collapsing Bose-Einstein condensates*. *New Journal of Physics*, 5 :52.1–52.11, march 2003.
- [MS2001] F. MASNOU-SEEUWS AND P. PILLET. *Formation of ultracold Cs₂ molecules via photoassociation in a gas of laser-cooled atoms*. *Adv. At. Mol. Opt. Phys.*, 47 :53, 2001.
- [Naidon2003] PASCAL NAIDON AND FRANÇOISE MASNOU-SEEUWS. *Pair dynamics in the formation of molecules in a Bose-Einstein condensate*. *Phys. Rev. A*, 68 :033612, september 2003.
- [Nikitin1996] E.E. Nikitin. *Adiabatic and diabatic collision process at low energy*. 1996. chapter 47.
- [Nikolov1999] A. N. NIKOLOV, E. E. EYLER, X. T. WANG, J. LI, H.WANG, W. C. STWALLEY, AND P. L. GOULD. *Observation of ultracold ground state potassium molecules*. *Phys. Rev. Lett.*, 82 :703, 1999.
- [Nikolov2000] A. N. NIKOLOV, J. R. ENSCHER, E. E. EYLER, H.WANG, W. C. STWALLEY, AND P. L. GOULD. *Efficient production of ground state potassium molecules at sub-mK temperatures by two-step photoassociation*. *Phys. Rev. Lett.*, 84 :246, 2000.
- [Peters2003] A. Peters. *A cryogenic magnetic trap for ultracold atoms and molecules*. 2003. in *Quantum Gases International Workshop* p.19.
- [Pethick2002] C. J. PETHICK AND H. SMITH. *Bose-Einstein Condensation in dilute gases*. Cambridge, 2002.
- [Petrov2004] D.S. PETROV, C. SALOMON, AND G.V. SHLYAPNIKOV. *Weakly bound dimers of fermionic atoms*. *Phys. Rev. Lett.*, 93 :090404, 2004.
- [Pitaevskii2003] Lev Pitaevskii and Sandro Stringari. *Bose-Einstein Condensation*. Oxford University Press, 2003.

- [Press1996] W. H. Press, S. A. Teukolsky, W. T. Vetterling, and B. P. Flannery. *Numerical recipes (2nd edition)*. Cambridge University Press, 1996. www.nr.com.
- [Prodan2003] I. D. PRODAN, M. PICHLER, M. JUNKER, R. G. HULET, AND J. L. BOHN. *Intensity dependence of photoassociation in a quantum degenerate atomic gas*. *Phys. Rev. Lett.*, 91 :080402, 2003.
- [Regal2003] C. A. REGAL, C. TICKNOR, J. L. BOHN, AND D. S. JIN. *Creation of ultracold molecules from a Fermi gas of atoms*. *Nature*, 424 :47, 2003.
- [Regal2004a] C. A. REGAL, M. GREINER, AND D. S. JIN. *Lifetime of molecule-atom mixtures near a Feshbach resonance in K*. *Phys. Rev. Lett.*, 92 :083201, 2004.
- [Regal2004b] C. A. REGAL, M. GREINER, AND D. S. JIN. *Observation of resonance condensation of fermionic atom pairs*. *Phys. Rev. Lett.*, 92 :040403, 2004.
- [Roberts1998] J. L. ROBERTS, N. R. CLAUSSEN, J. P. BURKE, C. H. GREENE, E. A. CORNELL, AND C. E. WIEMAN. *Resonant magnetic field control of elastic scattering in cold⁸⁵Rb*. *Phys. Rev. Lett.*, 81 :5109, 1998.
- [Rom2004] TIM ROM, THORSTEN BEST, OLAF MANDEL, ARTUR WIDERA, MARKUS GREINER, THEODOR W. HÄNSCH, AND IMMANUEL BLOCH. *State selective production of molecules in optical lattices*. *Phys. Rev. Lett.*, 91 :073002, 2004.
- [Samuelis2000] C. SAMUELIS, E. TIESINGA, T. LAUE, M. ELBS, H. KNÖCKEL, AND E. TIEMANN. *Cold atomic collisions studied by molecular spectroscopy*. *Phys. Rev. A*, 63 :012710, 2000.
- [Shanenkov2004] ARKADY A. SHANENKO. *Dilute Fermi gas : kinetic and interaction energies*. 2004.
- [Stenger1998] J. STENGER, S. INOUE, M.R. ANDREWS, H.-J. MIESNER, D.M. STAMPER-KURN, AND W. KETTERLE. *Strongly-enhanced inelastic collisions in a Bose-Einstein condensate near Feshbach resonance*. *Phys. Rev. Lett.*, 82 :2422, 1998.
- [Strecker2003] KEVIN E. STRECKER, GUTHRIE B. PARTRIDGE, AND RANDALL G. HULET. *Conversion of an atomic Fermi gas to a long-lived molecular Bose gas*. *Phys. Rev. Lett.*, 91 :080406, 2003.
- [Stwalley1976] W. C. STWALLEY. *Stability of spin-aligned hydrogen at low temperatures and high magnetic fields : new field-dependent scattering resonances and predissociations*. *Phys. Rev. Lett.*, 37 :1628, 1976.
- [Takekoshi1998] T. TAKEKOSHI, B. M. PATTERSON, AND R. J. KNIZE. *Observation of optically trapped cold cesium molecules*. *Phys. Rev. Lett.*, 81 :5105, 1998.
- [Tarbutt2004] M. R. TARBUTT, H. L. BETHLEM, J. J. HUDSON, V. L. RYABOV, V. A. RYZHOV, B. E. SAUER, G. MEIJER, AND E. A. HINDS. *Slowing heavy, ground-state molecules using an alternating gradient decelerator*. *Phys. Rev. Lett.*, 92 :173002, 2004.
- [Thalhammer2004] G. THALHAMMER, M. THEIS, K. WINKLER, R. GRIMM, AND J.H. DENSCHLAG. *Inducing on optical Feshbach resonance via stimulated Raman coupling*. 2004.
- [Theis2004] M. THEIS, G. THALHAMMER, K. WINKLER, M. HELLWIG, G. RUFF, R. GRIMM, AND J. HECKER DENSCHLAG. *Tuning the scattering length with an optically induced Feshbach resonance*. *Phys. Rev. Lett.*, 93 :123001, 2004.
- [Thorsheim1987] H. R. THORSHEIM, J. WEINER, AND P. S. JULIENNE. *Laser-induced photoassociation of ultracold sodium atoms*. *Phys. Rev. Lett.*, 58 :2420, 1987.

- [Tiemann1996] E. TIEMANN, H. KNÖCKEL, AND H. RICHLING. *Long-range interaction at the asymptote $3s + 3p$ of Na_2* . *Z. Phys.D*, 37 :323, 1996.
- [Timmermans1997] EDDY TIMMERMANS, PAOLO TOMMASINI EDDY TIMMERMANS, PAOLO TOMMASINI E. TIMMERMANS, P. TOMMASINI, AND K. HUANG. *Variational Thomas-Fermi theory of a nonuniform Bose condensate at zero temperature*. *Phys. Rev. A*, 55 :3645, 1997.
- [Timmermans1999] E. TIMMERMANS, P. TOMMASINI, M. HUSSEIN, AND A. KERMAN. *Feshbach resonances in atomic Bose-Einstein condensates*. *Phys. Rep.*, 315(199), 1999.
- [vA1999] F. A. VAN ABELEN AND B. J. VERHAAR. *Time-dependent Feshbach resonance scattering and anomalous decay of a Na Bose-Einstein condensate*. *Phys. Rev. Lett.*, 83 :1550, august 1999.
- [Vala2001] J. VALA, O. DULIEU, F. MASNOU-SEEUWS, AND R. KOSLOFF. *Coherent control of cold molecule formation through photoassociation using a chirped pulsed laser field*. *Phys. Rev. A*, 63 :013412, 2001.
- [Vatasescu2001] M. VATASESCU, O. DULIEU, R. KOSLOFF, AND F. MASNOU-SEEUWS. *Toward optimal control of photoassociation : characteristic times for wavepacket propagation*. *Phys. Rev. A*, 63 :033407, 2001.
- [Vatasescu2002] MIHAELA VATASESCU AND FRANÇOISE MASNOU-SEEUWS. *Time-dependent analysis of tunneling effect in the formation of ultracold molecules via photoassociation of laser-cooled atoms*. *Eur. Phys. J. D*, 21 :191–204, 2002.
- [Vuletić1999] V. VULETIĆ, A. J. KERMAN, C. CHIN, AND S. CHU. *Phys. Rev. Lett.*, 82 :1406, 1999.
- [Weber2002] WEBER, T., HERBIG, J., MARK, M., NÄGERL, H.-C., GRIMM, AND R. *Bose-Einstein condensation of cesium*. *Science*, 299(5604) :232–235, 2002.
- [Weinberg1995] S. Weinberg. *The theory of Quantum Fields*. Cambridge University Press, 1995.
- [Wick1950] G. C. WICK. *The evaluation of the collision matrix*. *Phys. Rev.*, 80 :268–272, 1950.
- [Wright2004] M. J. WRIGHT, S. D. GENSEMER, AND P. L. GOULD. *Ultracold collisions induced by frequency-chirped light*. 2004. (en préparation).
- [Wynar2000] R. WYNAR, R. S. FREELAND, D. J. HAN, C. RYU, AND D. J. HEINZEN. *Molecules in a Bose-Einstein condensate*. *Science*, 287 :1016, 2000.
- [Xu2003] K. XU, T. MUKAIYAMA, J. R. ABO-SHAER, J. K. CHIN, D. E. MILLER, AND W. KETTERLE. *Formation of quantum-degenerate sodium molecules*. *Phys. Rev. Lett.*, 91 :210402, 2003.
- [Zwierlein2003] M. W. ZWIERLEIN, C. A. STAN, C. H. SCHUNCK, S. M. F. RAUPACH, S. GUPTA, Z. HADZIBABIC, AND W. KETTERLE. *Observation of Bose-Einstein condensation of molecules*. *Phys. Rev. Lett.*, 91 :250401, 2003.

