

Propriétés radiatives des atomes de Rydberg dans une cavité résonnante

Jean-Michel Raimond

► To cite this version:

Jean-Michel Raimond. Propriétés radiatives des atomes de Rydberg dans une cavité résonnante. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 1984. Français. NNT: . tel-00011851

HAL Id: tel-00011851 https://theses.hal.science/tel-00011851

Submitted on 9 Mar 2006

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers. L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés. UNIVERSITÉ DE PARIS

LABORATOIRE DE PHYSIQUE DE L'ÉCOLE NORMALE SUPÉRIEURE



Thèse de Doctorat d'Etat

présentée à

l'Université Pierre et Marie Curie (Paris VI)

par

Jean-Michel RAIMOND

pour obtenir

le grade de Docteur ès Sciences

1

Sujet : "Propriétés radiatives des atomes de Rydberg dans une cavité résonnante"

Date de Soutenance : 25 AVRIL 1984

Jury :	MM. J.	BROSSEL,	Président
	A. C. VP. VS.	ABRAGAM, COHEN-TANNOUDJI, GOY, HAROCHE, LIBERMAN,	Examinateurs
	₽ ^D .	KLEPPNER,	Invité

:

Ce travail a été effectué au Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'Ecole Normale Supérieure pendant les années 1980-1984. Je tiens à remercier les Professeurs A. KASTLER et J. BROSSEL de m'y avoir accueilli. J'ai pu ainsi bénéficier d'un environnement humain et matériel remarquable.

Serge HAROCHE a guidé mes premiers pas dans la recherche et a assumé la direction de ce travail. Tout au long de ces années, j'ai pu apprécier sa gentillesse. L'achèvement de ce mémoire doit beaucoup à son enthousiasme communicatif et à sa grande compréhension de la physique. Je ne peux ici le remercier que bien trop brièvement pour tous les heureux moments que j'ai passés avec lui.

Je veux exprimer également ma reconnaissance aux autres membres de l'équipe : Claude FABRE, Philippe GOY et Michel GROSS qui m'ont toujours apporté un amical soutien et qui ont activement participé à toutes les expériences décrites ici, ainsi que Yves KALUZNY, Luigi MOI, Guy VITRANT et Myron ZIMMERMAN dont l'aide fut extrêmement précieuse.

La réalisation de ce travail n'aurait pas été possible sans la compétence des techniciens et ingénieurs du Laboratoire qui n'ont ménagé ni leur temps, ni leur peine, pour que nos idées, parfois un peu irréalistes, puissent voir le jour. Qu'ils soient tous remerciés.

Je remercie également tous ceux, trop nombreux pour être cités ici, qui nous ont prêté du matériel, apporté un conseil ou suggéré une idée.

J'ai beaucoup appris au cours de bien des discussions amicales avec les membres du Laboratoire et je veux leur exprimer ma gratitude.

Je veux remercier Messieurs A. ABRAGAM, C. COHEN-TANNOUDJI, D. KLEPPNER et S. LIBERMAN qui ont manifesté de l'intérêt pour ce travail et accepté la charge de participer au Jury de soutenance.

: .

Comment pourrais-je remercier Irène BRODSCHI pour avoir dactylographié en un temps record un manuscrit peu lisible ? Merci aussi à Mmes C. EMO et P. BOUNIOL qui l'ont assistée dans ce difficile travail.

Je remercie également ceux qui ont assuré la réalisation matérielle de ce mémoire : Mme MOISSENET, qui a dessiné la plupart des figures, Mme AUDOIN,qui en a assuré le tirage,et M. MANCEAU,la reliure. Ce sont les sévères artistes Que l'aube attire à ses blancheurs, Les savants, les inventeurs tristes, Les puiseurs d'ombre, les chercheurs, Qui ramassent dans les ténèbres Les faits, les chiffres, les algèbres ...

11

V. HUGO "Les Mages"

ι.

A Fabienne, Marie et Yves

PROPRIETES RADIATIVES DES ATOMES DE RYDBERG

DANS UNE CAVITE RESONNANTE

Table des Matières

1

PROPRIETES RADIATIVES DES ETATS DE RYDBERG DANS UNE CAVITE RESONNANTE

INTRODUCTION 1	
I. PROPRIETES RADIATIVES DES ETATS DE RYDBERG DANS	
L'ESPACE LIBRE 6	5
A) Transitions dipolaires électriques entre états de Rydberg des alcalins : quelques ordres de grandeur é	5
B) Observation des processus d'émission spontanée entre états de Rydberg 11	l
C) Interaction des atomes de Rydberg avec le rayonne- ment du corps noir 12	2
D) Propriétés radiatives collectives des atomes de Rydberg dans l'espace libre	5
E) Spectroscopie des niveaux de Rydberg 17	7
II. BREF APERCU SUR LES TECHNIQUES EXPERIMENTALES	Э
A) Préparation des états de Rydberg 19	9
B) Cavité micro-onde 20)
C) Réalisation d'un système à deux niveaux 21	I
D) Détection de l'évolution du système atomique 22	2
E) Génération d'un champ micro-onde agissant sur les atomes 25	5
III. UN ATOME DE RYDBERG DANS UNE CAVITE RESONNANTE 27	7
A) Un atome de Rydberg dans une cavité résonnante : le modèle théorique 29	9
1) Description du mode de la cavité302) La relaxation du mode du champ323) Equation d'évolution du système atome + champ36) 2 6
B) Emission spontanée d'un atome unique dans une cavité résonnante à température nulle 38	8
 1) Les deux régimes d'évolution a. Régime oscillant b. Régime surcritique monotone 2) L'émission spontanée dans le formalisme de 	B) 0
l'atome habillé 4: 3) Observation de l'accélération de l'émission spontanée dans une cavité résonnante 40	3 6

	C)	Atome de Rydberg unique en interaction avec le rayonnement thermique dans une cavité résonnante : nutation de Rabi dans un champ incohérent	49
	D)	Atome unique soumis à un champ cohérent dans une cavité	53
		1) Nutation de Rabi dans un champ cohérent contenu dans une cavité sans relaxation	54
		couplée à une source	57
IV. COMPOR RYDBERG	TEN G D	MENTS COLLECTIFS D'UN ENSEMBLE DE N ATOMES DE ANS UNE CAVITE RESONNANTE	62
	A)	Emission collective dans la cavité décrite dans le point de vue de Schrödinger	64
		 Régime d'oscillations collectives dans une cavité très faiblement amortie Régime d'émission sellective superitieus dans une 	68
		2) Regime d'emission collective surcritique dans une cavité de finesse modérée	72
	B)	Etude de l'émission collective de N atomes dans le point de vue de Heisenberg	75
		 Régime linéaire au début de l'émission Régime non linéaire au voisinage du maximum 	77 95
	C)	Observation de l'émission collective d'atomes de Rydberg dans une cavité résonnante : un test	00
	נס	quantitatif de la théorie Absorption collective par des atomes de Rydberg	90
	2,	dans une cavité résonnante	96
		1) Absorption d'un champ cohérent dans la cavité 2) Absorption collective du champ thermique dans	96
		la cavité	99
V. INTERAC ET PAROI	TIC MI	INS A COURTE PORTEE ENTRE ATOME DE RYDBERG ETALLIQUE OU ENTRE ATOMES DE RYDBERG	107
	A)	Interaction des états de Rydberg avec une paroi métallique : une expérience simple pour mesurer la "taille" des atomes de Rydberg	107
	B)	Effets des interactions de Van der Waals entre atomes de Rydberg	115
		1) Quelques ordres de grandeur sur les inter- actions à courte portée	116
		a. Interactions de Van der Waals non résonnantes entre atomes dans le même état de Rydberg	118
		D. Transferts entre niveaux par interaction de Van der Waals exactement résonnante c. Effet de l'interaction dipôle-dipôle sur	120
		l'évolution des cohérences millimétriques entre niveaux de Rydberg	124

.

· .

•

	2) Compétition entre la superradiance et les inter- actions dipôle-dipôle dans un échantillon	
	d'atomes de Rydberg a. Cas de la superradiance dans l'espace libre b. Observation de la compétition entre superra- diance et interactions de Van der Waals dans	127 128
	 l'espace libre c. Cas de la superradiance en cavité 3) Observation des élargissements de raies spec- trales dues aux interactions de Van der Waals entre atomes de Rydberg 1) Innigation callection d'un par d'atoma de Pudhang 	1 31 1 33 1 35
	<i>à très haute densité</i>	141
CONCLUSION	ET PERSPECTIVES	148
Appendice 1	: QUELQUES DETAILS SUR LES PROCEDURES EXPERIMENTALES	151
	1) Acquisition des signaux. Interfaçage au calculateur 2) Quelques aspects du dispositif micro-onde	152 163
Appendice 2	: QUELQUES DETAILS SUR L'EXPERIENCE D'OBSERVATI DE L'ACCELERATION DE L'EMISSION SPONTANEE POU UN ATOME UNIQUE DANS UNE CAVITE RESONNANTE	ON R 171
Appendice 3	: EMISSICN SPONTANEE D'UN ATOME DE RYDBERG DANS UNE CAVITE AMORTIE A TEMPERATURE NON NULLE	179
Appendice 4	: UTILISATION POSSIBLE DES ETATS DE RYDBERG EN CAVITE COMME DETECTEURS MILLIMETRIQUES	188
	 Détectivité, pour un champ cohérent, d'un échan- tillon d'états de Rydberg dans une expérience d'absorption 	189
	 Détection d'un champ cohérent au moyen de masers à états de Rydberg 	194
REFERENCES		198

. . .i.

: .

INTRODUCTION

INTRODUCTION

Les atomes de Rydberg sont des systèmes atomiques dans lesquels un électron a été porté dans un état très excité de nombre quantique principal, n, élevé (n > 20). Ces états ont été détectés dans le spectre solaire dès l'aube de la spectroscopie (1 - 3) et ont été depuis -et surtout dans les dix dernières années- l'objet d'études intensives, théoriques autant qu'expérimentales.

Un des intérêts principaux de ces systèmes atomiques s'est révélé trés rapidement résider dans leurs propriétés radiatives tout à fait inhabituelles. La taille caractéristique de la fonction d'onde atomique étant en effet de l'ordre de a_0n^2 , où a_0 est le rayon de Bohr, les éléments de matrice dipolaires électriques entre niveaux voisins sont, eux aussi, proportionnels à n^2 . Ils sont donc pour n ~ 30 trois ordres de grandeur plus élevés que ceux correspondant à des transitions optiques entre niveaux atomiques "profonds". Le trés fort couplage entre ces niveaux et le rayonnement est d'autant plus inhabituel que les longueurs d'onde de ces transitions appartiennent au domaine millimétrique- de quelques dizaines à quelques centaines de gigahertz. Cette propriété exceptionnelle peut permettre l'observation d'effets purement quantiques concernant, à la limite, l'interaction d'un atome avec le champ d'un seul photon. C'est là un champ d'études certainement trés nouveau, surtout dans un domaine de fréquence où les principaux phénomènes s'interprètent généralement trés bien en termes d'interaction avec un champ classique.

Ces investigations sont considérablement facilitées par le fait que les atomes de Rydberg, bien qu'ils soient trés fortement couplés au spectre microonde, ont des durées de vie radiatives assez longues. Ils se comportent donc comme des espèces métastables, et sont en particulier parfaitement bien adaptés à la réalisation d'expériences spectroscopiques de trés haute résolution.

Parmi toutes les expériences possibles sur les propriétés radiatives des états de Rydberg, celles réalisées dans une cavité résonnante possèdent un intérêt particulier. On peut en effet faire en sorte que la

cause principale d'évolution du système atomique soit l'interaction avec <u>un</u> <u>seul mode du champ</u>, défini par une cavité d'assez grandes dimensions (de l'ordre du centimètre) dans un ordre peu élevé. Les atomes passent alors dans la cavité un temps suffisant pour que les effets du couplage cohérent avec le champ soient clairement observables. Des techniques de détection extrêmement sensibles, fondées en particulier sur le principe de l'ionisation par effet de champ, permettent d'étudier de façon précise l'évolution temporelle du système atomique.

Cette situation expérimentale trés simple est en fait une réalisation presque parfaite d'un des modèles les plus anciens et les plus étudiés de l'optique quantique : un ensemble d'atomes à deux niveaux en interaction avec un seul mode du rayonnement (4^{-10}) . Une littérature théorique extrêmement abondante a été, et continue d'être, consacrée à ce problème depuis une trentaine d'années. Il serait bien entendu impossible de citer ici toutes les contributions marquantes dans ce domaine. De nombreux effets furent prédits qui ne purent être observés sur des atomes peu excités. Il est en effet extrêmement difficile de réaliser avec des niveaux atomiques "ordinaires" une situation expérimentale s'approchant d'assez près du modèle théorique : les effets intéressants- en particulier ceux liés à l'émission spontanée- sont souvent masqués par toutes sortes de phénomènes parasites.

L'un des effets attendus est la modification des propriétés de l'émisssion spontanée, par rapport à celles dans l'espace libre, pour un atome unique dans une cavité résonnante. Dans certains cas -cavité de finesse "modérée"- le taux d'émission spontanée est considérablement augmenté par la présence des miroirs (¹¹) (¹²). Dans d'autres cas -cavités de très grande finesse- l'évolution irréversible, caractéristique de l'émission spontanée dans l'espace libre, est remplacée par un régime d'échange d'énergie réversible entre l'atome et le champ. Enfin, si la cavité n'est pas résonnante avec la transition atomique, l'émission spontanée peut être complètement supprimée (¹³). Tous ces effets peuvent être compris comme la conséquence de la modification de la structure du "champ du vide" dûe aux conditions aux limites imposées par les miroirs de la cavité. Enfin, si le champ de la cavité est initialement excité par une source cohérente, ou même une source thermique, on peut prévoir toutes sortes de phénomènes d'oscillation de Rabi (¹⁴ -¹⁹).

Une autre classe d'effets concerne les propriétés radiatives d'un ensemble de N atomes de Rydberg simultanément préparés dans la cavité. Une des caractéristiques essentielles de ce système est que les atomes se comportent en fait comme un seul objet quantique, analogue à un spin J = N/2. L'émission spontanée de cet ensemble d'atomes, à partir de l'état d'énergie atomique maximale, est trés étroitement reliée au phénomène de superradiance qui a été, lui aussi, l'objet de nombreuses études $\binom{20-23}{2}$. Ce système est en fait formellement analogue à un pendule mécanique, quittant sa position d'équilibre instable sous l'influence d'un couple aléatoire qui représente les fluctuations liées à l'émission spontanée ou à l'interaction avec un champ thermique. Il s'agit là en fait d'un prototype idéal de tous les systèmes amplifica teurs instables, déclenchés par un bruit (²⁴). Une des caractéristiques particulièrement importantes du comportement d'un tel objet est de présenter, pendant toute l'évolution, des fluctuations extrêmement importantes, qui révèlent la nature aléatoire du déclenchement. L'étude expérimentale des systèmes d'atomes de Rydberg dans une cavité, et en particulier des fluctuations de l'émission, nous permet donc de tester de façon complète et précise les prédictions du modèle (25-29). L'absorption collective du rayonnement thermique par l'ensemble de N atomes initialement préparés dans le niveau du bas de la transition résonnante avec la cavité est, elle aussi, trés intéressante. Le système est là encore analogue à un pendule, soumis à un mouvement brownien autour de sa position d'équilibre stable. Les atomes de Rydberg permettent d'analyser expérimentalement ce nouveau type de mouvement brownien (30).

Dans ce mémoire, nous présenterons nos expériences sur les propriétés radiatives des atomes de Rydberg dans une cavité résonnante ainsi qu'un cadre théorique simple qui permet de calculer exactement la plupart des effets attendus. Nous avons choisi d'illustrer, chaque fois que possible, les prévisions du modèle théorique par les résultats de nos expériences. Nous avons donc mêlé intimement les parties théorique et expérimentale de ce travail. Pour ne pas alourdir l'exposé, nous avons reporté dans une série d'appendices un certain nombre de détails expérimentaux ou théoriques.

Dans le chapitre I, nous commencerons par donner rapidement quelques ordres de grandeur sur les principales propriétés radiatives des atomes de Rydberg dans l'espace libre, et nous décrirons pour mémoire

quelques expériences où ces propriétés ont été étudiées. Dans le deuxième chapitre, nous décrirons les aspects essentiels des techniques expérimentales que nous avons développées (une description beaucoup plus détaillée de ces techniques est donnée dans les appendices 1 et 2). Le chapitre III sera consacré à l'étude du comportement d'un atomé unique dans la cavité résonna^{nte}: modification de l'émission spontanée, oscillations de Rabi dans un champ thermique ou cohérent. Enfin, les propriétés radiatives collectives d'un ensemble d'atomes de Rydberg, en émission et en absorption, seront analysées au chapitre IV.

Les effets radiatifs étudiés dans les chapitre III et IV sont liés à l'échange de photons entre atomes de Rydberg et mode du champ. Ces interactions correspondent donc au terme en 1/r dans l'espression e du champ … d'un atome. Les termes d'ordre supérieur, représentant des échanges de photons virtuels entre atomes, et en particulier le terme en 1/r³ décrivant l'interaction électrostatique instantanée entre dipôles, jouent certainement un rôle important pour des milieux de haute densité (³¹) ou pour des atomes trés proches d'une paroi conductrice (interaction avec l'image électrique). Une bonne compréhension de ces interactions est donc nécessaire pour nous assurer que, dans les conditions des expériences décrites aux chapitres III et IV, ces interactions dipôles-dipôles (de Van der Waals) sont négligeables et que nous observons donc de purs effets radiatifs. Nous avons donc consacré une part importante de notre travail à leur étude, dont nous donnerons les résultats essentiels dans le chapitre V .

Dans la première partie du chapitre V , nous décrirons une expérience simple sur l'interaction des atomes de Rydberg avec une paroi métallique (³²). Nous étudions en effet la transmission de ces atomes à travers des fentes métalliques trés fines d'une largeur de l'ordre du micromètre, c'est-à-dire de l'ordre de l'extension spatiale caractéristique de la fonction d'onde (a₀ n²) pour n \sim 50. Cette expérience fournit en fait une mesure directe de la "taille" des états de Rydberg. Nous présentons un modèle théorique trés simple, en termes d'images électriques, rendant bien

compte qualitativement des résultats expérimentaux.

Dans le paragraphe V -B, nous analyserons les interactions dipôle-dipôle entre atomes de Rydberg dans un milieu dense, et en particulier leur influence sur l'émission collective (superradiance). La complexité de ce problème est telle que nous devrons souvent nous contenter d'analyses d'ordre de grandeur. Nous présenterons quelques manifestations expérimentales de ces interactions : compétition avec la superradiance dans l'espace libre pour un milieu de haute densité (33), élargissement des raies optiques d'excitation à partir des niveaux profonds (34) . Nous décrirons également un phénomène d'ionisation en avalanche dans un gaz très dense d'états de Rydberg (35). En conclusion, nous montrerons que les interactions de Van Der Waals jouent effectivement un rôle négligeable dans les expériences décrites dans les chapitres III et IV.

CHAPITRE I

PROPRIETES RADIATIVES DES ETATS DE RYDBERG DANS L'ESPACE LIBRE

÷ .

r

.

• •

CHAPITRE 1

PROPRIETES RADIATIVES DES ETATS DE RYDBERG DANS L'ESPACE LIBRE

Nous nous proposons, dans cette partie, d'évoquer brièvement les propriétés radiatives des atomes de Rydberg dans l'espace libre. Nous analyserons en particulier les conséquences de leur très fort couplage à la partie radiofréquence et microonde du spectre électromagnétique qui en fait des outils bien adaptés à l'étude d'effets fondamentaux du couplage matièrerayonnement- à une échelle quelque peu inhabituelle.

Nous ne saurions bien entendu présenter ici une revue complète des propriétés des états de Rydberg, qu'on pourra trouver dans les références (³⁶) et (³⁷); nous nous limiterons à celles qui seront utiles dans la suite de ce mémoire.

Dans le premier paragraphe (§ I-A), nous rappellerons donc quelques ordres de grandeur relatifs aux états de Rydberg et à leur couplage avec le vide de rayonnement dans l'espace libre (c'est-à-dire en l'absence de cavité microonde). Nous décrirons très brièvement, dans le paragraphe IB, quelques expériences où l'émission spontanée des atomes de Rydberg a pu être mise en évidence. Les effets, trés importants à température ambiante, du rayonnement thermique sur les atomes de Rydberg seront décrits dans le paragraphe I-C. Nous analyserons, dans le § I D, les propriétés radiatives collectives d'un ensemble de N atomes de Rydberg (amplification transitoire du rayonnement thermique et des fluctuations d'émission spontanée, ou superradiance). Enfin, dans le paragraphe I **E**, nous nous tournerons vers des expériences de spectroscopie dans lesquelles les atomes de Rydberg interagissent avec un champ cohérent.

A) Transitions dipolaires électriques entre les états de Rydberg des alcalins : quelques ordres de grandeur.

Les états de Rydberg couramment étudiés au laboratoire ont des nombres quantiques principaux n de l'ordre de 10 à 100. Ceux qui ont pu être détectés dans l'espace interstellaire par radioastronomie millimétrique ou centimétrique (³⁸) (³⁹) correspondent à des valeurs encore plus élevées

de n (de l'ordre de quelques centaines). Dans une image classique, l'électron excité dans de tels niveaux se trouve la plupart du temps loin du "coeur" constitué du noyau et des électrons restants (distance moyenne de l'ordre de n²a, - a, est le rayon de Bohr). En première approximation, on peut donc considérer que le coeur se comporte comme une charge positive ponctuelle, c'est-à-dire que le spectre des niveaux de Rydberg est identique à celui de l'hydrogène (l'énergie du niveau n est $-R|n^2$ où R est la constante de Rydberg tenant compte de la masse réduite du système coeur-électron). En fait, des effets liés à la taille finie du coeur modifient quelque peu ce résultat : pour des états de faible moment angulaire l (lv1), représentés dans une image classique par des orbites elliptiques trés excentriques, l'électron passe périodiquement à l'intérieur du coeur où il est soumis à un potentiel trés différent de celui d'une charge ponctuelle. Cet effet de pénétration du coeur est en revanche négligeable pour des états de fort moment angulaire (l n), représentés en termes classiques par des orbites quasicirculaires. Ces niveaux sont donc peu déplacés par rapport au spectre hydrogénoide, la seule perturbation agissant sur eux étant liée à la polarisabilité électrique du coeur.

On peut rendre compte trés simplement de ces effets au moyen de paramètres appelés défauts quantiques (⁴⁰):l'énergie E_{nl} du niveau de moment angulaire l peut s'écrire

$$E_{n \ell} = -R / (n - \varepsilon_{\ell})^{2} \qquad (I-1)$$

 ε_{ℓ} est un nombre, au plus de l'ordre de l'unité, qui ne dépend pratiquement que du moment angulaire ℓ (et bien sûr de l'espèce atomique considérée).Les effets de pénétration étant beaucoup plus importants que les effets de polarisation, ε_{ℓ} est une fonction rapidement décroissante de ℓ et s'annule pratiquement pour $\ell > 4$. On peut aussi décrire ε_{ℓ} comme le déphasage de la fonction d'onde de l'électron de Rydberg continuellement diffusée par le coeur. En fait, malgré la modification du spectre décrite par l'équation I-1 et la modification des fonctions d'onde due à la taille finie du coeur, les propriétés radiatives de tous les alcalins sont trés voisines de celles de l'hydrogène et les ordres de grandeur des paramètres de transition peuvent être estimés à l'aide du modèle hydrogénoïde.

L'énergie de liaison typique d'un état $|n, l \rangle$ est donc $-R/n^2$, c'est-à-dire de l'ordre de -10THz (en unités de fréquence) pour $n \sim 30$. Les transitions entre niveaux voisins correspondent à des différences d'énergie de l'ordre de $-R/n^3$, c'est-à-dire à des fréquences de l'ordre de 100 GHz pour $n \sim 30$. Les éléments de matrice dipolaires sur de telles transitions microondes sont proportionnels à l'extension de la fonction d'onde de ces états ($a_0 n^2$), c'est-à-dire de l'ordre de q $a_0 n^2$ (q charge de l'électron). Pour $n \sim 30$, ils sont donc environ trois ordres de grandeur plus grands que les éléments de matrice dipolaire entre états "ordinaires", de faibles nombres quantiques principaux.

Il existe bien sur des expressions analytiques exactes des éléments de matrice dipolaires pour l'Hydrogène (⁴¹). Pour les alcalins, on doit tenir compte du déphasage des fonctions d'onde décrit par le défaut quantique. L'élément de matrice dipolaire réduit entre les niveaux n, l et n', l' peut en fait s'écrire :

$$d_{n\ell,n'\ell'} = \langle n\ell | [qr'] | n'\ell' \rangle = \frac{3}{2} q a_0 n^2 g (n' - n'')$$
 (I-2)

si n ∿ n' >> 1.

 $g(n^{*} - n^{*})$ est une fonction, sans dimension, universelle (elle ne dépend pas de l'espèce atomique) de $n^{*} - n^{*}(n^{*} = n - \epsilon_{l}, n^{*} = n^{*} - \epsilon_{l}$, sont souvent appelés "nombres quantiques effectifs" des niveaux n l et $n^{*}l^{*}$). Cette fonction a été calculée et tabulée (⁴²) et une expression analytique, simple mais approchée, a été obtenue récemment (⁴³). $g(n^{*} - n^{*})$ vaut 1 pour $n^{*} = n^{*}$, et subit ensuite, en fonction de $n^{*} - n^{*}$ des oscillations d'amplitude rapidement décroissante autour de 0. En raison d'interférences totalement destructives entre les fonctions d'onde déphasées des niveaux nl et $n^{*}l^{*}$, g s'annule de façon quasi-périodique (première annulation pour $n^{*} - n^{*} \sim 1.25$). L'expression I-2 n'est valide que pour n - n' << n. Elle permet donc de décrire le couplage résonnant des atomes de Rydberg à la partie millimétrique du spectre de rayonnement qui sera plus particulièrement étudié dans ce mémoire.

Il est aussi possible d'obtenir des expressions des éléments de matrice dipolaires couplant un niveau nl soit à un niveau beaucoup plus excité (n' >> n) ou même à un niveau du continuum, soit à un niveau

beaucoup plus profond $(n' \ 1 << n)(^{37})$. En particulier, les éléments de matrice dipolaires vers les niveaux profonds, qui sont, comme nous le verrons, essentiels pour estimer la durée de vie radiative totale d'un niveau de Rydberg, sont de l'ordre de $n^{-3/2}a_0$. Ce résultat a une interprétation physique trés simple : la fonction d'onde du niveau n'l' est confinée, si n' $\ 1$, à une région de l'espace trés petite devant l'extension de la fonction d'onde d'un état de Rydberg. L'élément de matrice dipolaire entre ces deux états est donc essentiellement proportionnel à la fonction d'onde du niveau nl au voisinage de l'origine qui varie comme $n^{-3/2}$. Par exemple, pour $n \ 30$, ces éléments de matrice sont de l'ordre de 10^{-2} unités atomiques. Cette relativement faible valeur explique que les atomes de Rydberg ne peuvent être excités efficacement à partir de niveaux profonds qu'au prix d'une irradiation lumineuse intense.

Les éléments de matrice dipolaires sont simplement reliés aux taux partiels d'émission spontanée sur les transitions correspondantes par :

$$\Gamma_{n\ell \rightarrow n'\ell'} = \frac{\max(\ell,\ell')}{(2\ell+1)} - \frac{\frac{d^2_{n\ell n'\ell'}}{\omega_{n\ell n'\ell'}} - \frac{d^2_{n\ell n'\ell'}}{3\pi\epsilon_0 \not l c^3}$$
(I-3)

où $\underset{n \mid n \mid l}{\overset{w \mid}{n \mid n \mid l}}$ est la pulsation de la transition du niveau n l au niveau n'l'. Pour une transition entre niveaux de Rydberg voisins $(n \lor n')$, si la fonction g est de l'ordre de l'unité, d² $\underset{n \mid n \mid l}{\overset{n \mid}{n \mid l}}$ varie comme n⁴ . $\underset{n \mid n \mid n \mid l}{\overset{w \mid}{n \mid n \mid l}}$ varie lui comme n⁻⁹ . $\underset{n \mid l \mapsto n \mid l}{\overset{n \mid}{n \mid l}}$ est donc sensiblement proportionnel à n⁻⁵ . Pour n ∿ 30, $\underset{n \mid l \lor n \mid l}{\overset{n \mid}{n \mid l}}$ est en général de l'ordre de 100 s⁻¹ . La valeur absolue de ce taux d'émission spontanée est relativement faible (durée de vie équivalente de l'ordre de 10 ms). Elle est toutefois <u>beaucoup plus élevée</u> que pour des transitions microondes de fréquence voisine (\lor 100 GHz) entre niveaux atomiques ou moléculaires profonds . Γ est en effet dans ce cas de l'ordre de 10⁻³ à 10⁻⁴ s⁻¹ .

Pour une transition entre un niveau de Rydberg nl et un niveau profond (n' ~ 1), $d_{nl,n'l'}^2$ varie comme n⁻³, alors que $\omega_{nl n'l'}$ est pratiquement constant (les différences d'énergie entre niveaux de Rydberg sont tout à fait négligeables devant les énergies de transitions optiques). $\Gamma_{nl n'l'}$ est donc proportionnel à n⁻³ et vaut de l'ordre de 10⁵ s⁻¹ pour n ~ 30 .

Le taux d'émission spontanée total à partir d'un niveau de Rydberg ng s'obtient en sommant les taux de transitions partiels sur toutes les transitions autorisées vers des niveaux plus profonds.

$$\Gamma = \sum_{n'\ell'} \Gamma_{n'\ell'} (I-4)$$

Pour un état de faible moment angulaire (ℓ << n), un grand nombre de transitions vers des niveaux profonds sont autorisées. Les termes dominants dans (I-4) correspondent à des transitions optiques : $\Gamma \frac{n\ell}{T}$ est proportionnel à n⁻³:

$$\Gamma_{T}^{n,\ell << n} = C n^{-3}$$
 (I-5)

La constante C est de l'ordre de 10^9 s^{-1} . Les niveaux de Rydberg (pour n ~ 30 ; $\ell = 0,1,2$) ont donc une durée de vie totale de l'ordre de 10 à 100 µs, bien adaptée à des expériences de spectroscopie de haute résolution. Ces durées de vie relativement longues permettent de laisser des atomes de Rydberg, préparés dans un jet atomique, se déplacer sur des distances de quelques centimètres. Cela, comme nous le verrons dans le chapitre II, est un avantage certain pour nos expériences.

Pour des états de fort moment angulaire ($l \sim n$), en revanche, les seules voies de désexcitation possibles correspondent à des transitions de basse fréquence entre niveaux de Rydberg voisins. La durée de vie totale de ces états est donc beaucoup plus longue que celle des états de faible moment angulaire. En particulier, si l = n - 1, une seule voie de désexcitation est possible vers le niveau n' = n - 1, l' = l - 1 et le taux d'émission spontanée total est :

$$\Gamma_{T}^{n,\ell = n - 1} = A n^{-5}$$
 (I-6)

correspondant, pour n ∿ 30, à une durée de vie de l'ordre de 10ms

Les formules (I-5) et (I-6) ont une interprétation trés simple en termes d'orbites classiques (⁴⁴). La puissance émise par un électron de Rydberg sur sa trajectoire elliptique est en effet proportionnelle au carré

de son accélération. Pour des états de faible moment angulaire, correspondant à des orbites trés excentriques, l'accélération est maximale au périhélie (péricarde serait sans doute un mot plus adapté). De plus, la forme de l'orbite au voisinage du coeur dépend principalement du moment angulaire et très peu de l'énergie (ceci expliquant d'ailleurs que les défauts quantiques, dominés par les effets de pénétration, ne dépendent en première approximation que de l). Ces états émettent donc essentiellement des photons de haute énergie, à un taux simplement proportionnel au taux de passage au périhélie 1/T (T est la période de l'orbite). D'après la troisième loi de Kepler, T varie comme $(a_n n^2)^{-3/2}$: nous retrouvons donc $\Gamma \propto n^{-3}$, en accord avec la formule I-5. D'autre part, pour les états de grand moment angulaire (orbites quasi-circulaires), l'accélération est pratiquement constante et proportionnelle à n^{-4} (inverse du carré de la taille de l'orbite). La puissance émise varie donc comme n^{-8} . L'énergie totale à émettre pour passer d'un niveau au niveau immédiatement inférieur variant comme n⁻³, la durée de ce processus varie comme n⁵, et le taux d'émission spontanée comme n^{-5} (I-6).

Toutes ces propriétés quelque peu inhabituelles des états de Rydberg sont en fait liées à la grande extension spatiale des fonctions d'onde ($\sim 0.1\mu$ pour n = 30). Dans le chapitre V, nous décrivons une expérience trèssimple mettant clairement en évidence le caractère macroscopique de ces fonctions d'onde et permettant, en quelque sorte, de les "mesurer" avec un objet manufacturé.

B) Observation des processus d'émission spontanée entre états de Rydberg.

Les processus d'émission spontanée dans les niveaux de Rydberg ont été fréquemment observés, tant au laboratoire qu'en radioastronomie. Dans certains milieux interstellaires (régions HII par exemple), la recombinaison radiative électron-ion suivie d'une cascade d'émission spontanée avec émission de photons radiofréquence est un processus courant qui a été détecté dans un grand nombre d'observations (38) (39). Les transitions détectées correspondent principalement à des transitions avec n - n' = Δ n = 1 ou 2, pour des valeurs de n comprises entre 70 et 350 environ, c'est-à-dire à des

fréquences de l'ordre de 1 à 100 GHz.

Ces signaux sont d'un grand intérêt en astrophysique. Ils fournissent en effet un moyen de diagnostic fin des conditions physiques dans le milieu interstellaire (température des électrons,....).

Au laboratoire, les taux d'émission spontanée à partir d'états de Rydberg préparés par excitation laser d'un jet atomique ou d'une vapeur alcaline ont également été mesurés. La détection de la décroissance de la population du niveau initialement peuplé peut s'effectuer à partir de la lumière de fluorescence émise lors de la desexcitation. On peut aussi, en ionisant les atomes avec un champ électrique pulsé et en détectant les ions ou les électrons produits, compter, en fonction du temps, le nombre d'atomes restant dans le niveau initial. Cette méthode d'ionisation par champ, beaucoup plus sensible et mieux adaptée aux états de Rydberg que la première, sera décrite plus en détail dans le paragraphe II-D . Dans de telles expériences, on obtient le taux de décroissance total de la population du niveau initialement préparé. On n'obtient la durée de vie radiative que si les processus de transfert autres que l'émission spontanée peuvent être rendus négligeables (transferts collisionnels ou induits par le rayonnement thermique....). En fait , les taux d'émission spontanée furent souvent obtenus en extrapolant -à pression ou à température nulles par exemple- les résultats d'expériences destinées à mesurer ces autres processus de transfert (45) (Le rôle des transferts thermiques sera étudié plus en détail dans le prochain paragraphe). Les valeurs obtenues pour les taux d'émission spontanée dans ces diverses expériences sont, en général, en très bon accord avec les prédictions théoriques. $(^{46}-^{48})$

C) <u>Interaction des atomes de Rydberg avec le rayonnement du</u> corps noir.

Les valeurs exceptionnellement élevées des éléments de matrice dipolaires entre niveaux de Rydberg voisins font que ces atomes sont extraordinairement sensibles aux radiations millimétriques ou infra-rouge lointain.

La densité spectrale du rayonnement thermique présente à la tem-

pérature ambiante un maximum pour une longueur d'onde de l'ordre de 10 μ m et reste trés importante jusque dans la partie millimétrique du spectre électromagnétique. Le champ du corps noir est donc susceptible d'induire des taux de transfert élevés entre niveaux de Rydberg. Ces transferts ont été l'objet d'investigations expérimentales poussées depuis quelques années (⁴⁵) (^{49 - 52}).

On peut estimer les taux de transfert induits par le champ thermique au moyen de la règle d'or de Fermi. Il est facile de montrer que le taux de transfert entre les niveaux n^l et n'l' est simplement égal au taux d'émission spontanée sur la transition considérée, multiplié par \overline{n} , nombre moyen de photons thermiques par mode du champ à la fréquence de la transition $\omega_{nl n'l'}$:

$$\frac{\text{thermique}}{\Gamma} = \frac{1}{n} \Gamma \frac{\text{spontané}}{n\ell n'\ell'}$$
(I-7)
$$\frac{1}{n\ell} n'\ell'$$

avec :

$$\bar{\mathbf{n}} = \left[\mathbf{e}^{\not h} \boldsymbol{\omega} / \mathbf{k}_{\mathbf{B}}^{\mathrm{T}} - \mathbf{1} \right]^{-1}$$
(I-8)

(k_B constante de Boltzmann, T : température du champ). Dans le cas d'un processus d'émission (si l'énergie du niveau n'l' est inférieure à celle du niveau nl), les taux de transfert spontané et induit par rayonnement thermique s'ajoutent simplement, et le taux de transfert total est :

thermique + spontané spontané
$$(I-9)$$

 Γ = $(n + 1)$ Γ
 $n l, n'l'$ $n l - n'l'$

Pour une transition entreniveaux voisins, aux alentours de n=30, $\omega_n ln'l'$ est de l'ordre de 10^{11} Hz et , à température ambiante (T = 300K), n de l'ordre de 100. Les taux de transition induits par le rayonnement thermique sont donc de l'ordre de 10^4 s^{-1} (Γ ^{spontané} \sim 100 s^{-1})

Les transferts induits dominent donc largement les transferts spontanés. Ils contribuent même dans une proportion non négligeable (de l'ordre de 10 à 20 %) à la durée de vie totale d'un niveau de Rydberg. L'influence du rayonnement thermique est donc un des processus les plus importants gouvernant l'évolution des états de Rydberg, à température ambiante tout au moins.

L'analyse détaillée de l'influence des transferts thermiques doit, en fait, faire intervenir tous les niveaux de Rydberg qui sont, plus ou moins directement, couplés au niveau initialement préparé. Il est possible d'écrire une équation de "bilan détaillé" pour les populations de tous ces niveaux décrivant tous les processus de cascade ou d'absorption, spontanée ou induite. L'observation de ces cascades nécessite bien entendu de pouvoir mesurer, en fonction du temps, la population de chaque état de Rydberg. Nous verrons, dans le paragraphe II-D, que la méthode de l'ionisation par effet de champ permet effectivement d'étudier la dynamique de ces phénomènes. Différentes expériences sur les transferts induits par le rayonnement thermique, utilisant cette technique, ont déjà été réalisées (⁴⁵) (⁴⁹-⁵²). Les taux de transfert mesurés, principalement sur des transitions correspondant à Δn = 1 ou 2 aux alentours de n=30 et à T $^{\circ}$ 300K, sont en excellent accord avec les prédictions théoriques (équation I-7). Des transferts thermiques ont pu être observés jusqu'à des températures de l'ordre de 50K (⁴⁵). Ainsi que nous l'avons mentionné dans le paragraphe précédent, les taux de transfert par émission spontanée sont en fait obtenus par extrapolation de ces résultats à température nulle (⁴⁸).

Les transferts que nous venons de décrire sont induits par les composantes de fréquence du champ thermique <u>resonnantes</u> avec une transition atomique. Les composantes <u>non résonnantes</u> du champ thermique induisent des déplacements d'énergie des niveaux de Rydberg (effet Stark en champ alternatif) (⁵³). Le maximum de densité spectrale du rayonnement thermique (à la température ambiante) étant dans l'infrarouge, la plus forte contribution à ces déplacements lumineux est induite par des composantes de fréquence trés supérieure aux fréquences caractéristiques de rotation de l'électron autour du coeur qui sont de l'ordre des fréquences de transition entre niveaux voisins. Le déplacement d'énergie ΔE est donc sensiblement indépendant de n (pour n >20 tout au moins) et égal à l'énergie de vibration moyenne d'un électron libre dans le champ thermique. Après une sommation élémentaire sur les modes du rayonnement thermique, on trouve (³⁷) :

$$\Delta E = \frac{\pi}{6} \alpha^3 \frac{(kT)^2}{R} \qquad (I-10)$$

Ce déplacement est de l'ordre de 2.4 KHz à température ambiante. Comme tous les niveaux sont déplacés de la même manière, cet effet n'est pas détectable dans des expériences de spectroscopie microonde entre niveaux voisins (voir § I E). En revanche, la position des niveaux profonds $(n \ 1)$ est trés peu modifiée par le rayonnement thermique (le déplacement n'est que de 0.03 Hz à température ambiante $({}^{54})({}^{55})$). Les transitions optiques entre niveaux profonds et niveaux de Rydberg ont donc une fréquence dépendant de la température !. Cet effet a été trés récemment mis en évidence dans une expérience de spectroscopie par franges de Ramsey sur un jet alcalin utilisant des lasers à colorants extrêmement stables (largeur de raie atomique de l'ordre de 40 KHz) (56). Une dépendance de la fréquence de transition avec la température du rayonnement a été observée, en bon accord avec la formule I-10.

D) <u>Propriétés radiatives collectives des atomes de Rydberg</u> dans l'espace libre.

Nous avons jusqu'ici discuté seulement, en fait, des situations où un atome de Rydberg <u>isolé</u> interagit avec le champ du vide ou avec le rayonnement du corps noir. Si, en revanche, un nombre assez grand d'atomes est préparé initialement dans un niveau de Rydberg, le champ rayonné par les atomes réagit sur leur évolution et des effet <u>collectifs</u> apparaissent dans les propriétés radiatives du système. Ce phénomène n'est, bien sûr, pas restreint aux atomes de Rydberg : c'est une propriété générale de tout système atomique suffisamment dense (émission spontanée collective ou superradiance) (²⁰-²³). Cependant, le trés fort couplage des atomes de Rydberg au champ électromagnétique fait que le seuil d'apparition des effets collectifs est exceptionnellement bas.

Pour observer ces effets, il suffit de préparer un échantillon d'atomes dans un état n^l et de détecter les transferts de population vers des niveaux moins excités (n-1, l' en général). Le taux de ces transferts augmente brutalement quand le nombre N d'atomes excités dépasse un certain seuil N , typiquement de l'ordre de 10⁵ (⁵⁷). Le temps caractéristique d'émission superradiante entre les niveaux nl et n'l', T_{SR}, est inversement

proportionnel au nombre total d'atomes N et au taux d'émission spontanée sur la transition considérée (23):

$$T_{SR}^{-1} = N \mu \Gamma_{n\ell} - n'\ell' \qquad (I-11)$$

μ est un facteur numérique dépendant de la géométrie du milieu, en première approximation proportionnel à l'angle solide d'émission et dépendant donc du rapport de la taille de l'échantillon à la longueur d'onde émise λ . Si la taille du milieu est de l'ordre de λ , μ est de l'ordre de 0.1. Pour n ∿ 30, T⁻¹_{SR} est de l'ordre de $10^6~{\rm s}^{-1}$ avec N ${\sim}10^5.$ Dans ces conditions le taux d'émission collectif domine très largement les autres processus de transfert (émission spontanée - $\Gamma_{\rm m}$ - ou induite par le rayonnement thermique - ^r thermique nl n'l'). En d'autres termes, le seuil de l'émission superradiante correspond à un nombre d'atomes N_{seuil} de l'ordre de 10⁵. Mentionnons toutefois que, si la taille du milieu est trés réduite, les processus d'interactions à courte portée entre dipôles atomiques (forces de Van Der Waals) peuvent dominer toujours l'émission superradiante. Cet effet a été mis en évidence dans des expériences effectuées au laboratoire (³³) qui sont décrites dans le chapitre V .

Les caractéristiques détaillées de l'émission superradiante dépendent fortement des premiers instants de l'évolution, pendant lesquels peu de photons sont émis, mais durant lesquels de fortes corrélations entre dipôles atomiques se bâtissent. Les processus dominants pendant cette phase de l'évolution sont- à température ambiante- les transferts induits par le rayonnement thermique. La superradiance entre niveaux de Rydberg peut en fait être interprétée comme une <u>amplification transitoire</u> du rayonnement thermique. L'analyse théorique détaillée de la superradiance dans l'espace libre est en fait complexe. Les atomes étant couplés à tous les modes résonnants du champ, on doit tenir compte des effets de propagation et de diffraction du rayonnement à l'intérieur de l'échantillon (⁵⁸). Nous décrivons en fait dans le chapitre IV un effet similaire d'émission spontanée collective observé à l'intérieur d'une cavité résonnante. Nous verrons que dans ce cas l'étude expérimentale et l'analyse théorique sont beaucoup plus simples.



Figure 1 : Spectroscopie micro-onde de la raie $28S_{\frac{1}{2}} \rightarrow 28P_{\frac{1}{2}}$ du Césium. Le niveau excité par laser est le $28S_{\frac{1}{2}}$. Le signal représente, en fonction de la fréquence de la micro-onde appliquée, la population du niveau $28P_{\frac{1}{2}}$ détectée par ionisation par champ. Les structures hyperfines du niveau $28S_{\frac{1}{2}}$ (4 MHz) et du niveau $28P_{\frac{1}{2}}$ (1 MHz) sont bien résolues. L'encart précise l'assignation des raies.

E) Spectroscopie des niveaux de Rydberg

Nous avons jusqu'ici considéré le couplage des atomes de Rydberg avec un champ incohérent ou avec le champ qu'ils ont eux-même rayonné. Nous conclurons ce chapitre par une description -très brève- d'expériences de spectroscopie où les atomes interagissent avec un champ cohérent monochromatique imposé. Une des premières motivations de ces expériences était de mesurer précisément la position des niveaux pour tester les modèles de défauts quantiques.

Une première catégorie d'études spectroscopiques utilise des lasers optiques, associés éventuellement à une méthode de suppression de l'effet Doppler, pour déterminer la position des niveaux de Rydberg par rapport aux niveaux profonds (⁵⁶)(⁵⁹-⁶⁶).

Un autre type d'expériences consiste à utiliser un système de double résonance : un niveau de Rydberg donné est excité par un laser dont la largeur n'a qu'une importance trés secondaire. Une source millimétrique accordable induit alors des transferts vers les niveaux voisins qui sont détectés par la méthode de l'ionisation par champ (${}^{67}-{}^{70}$). La figure 1 présente par exemple le spectre de la transition $28S_{1/2} \xrightarrow{+} 28P_{1/2}$ du Césium (le dispositif expérimental et les sources microondes sont décrits dans le chapitre II et l'appendice 1) où la structure hyperfine de ces deux niveaux apparaît clairement (70).

Ces expériences ont permis de déterminer de façon trés précise les défauts quantiques des niveaux de faible moment angulaire (l < 4) et de mettre en évidence une très lente variation de ces paramètres avec l'énergie de liaison (le défaut quantique ε_{nl} peut en fait se développer en puissances de l'énergie - formule de Ritz:

$$\varepsilon_{nl} = \varepsilon_{l} (\infty) + \frac{a_{l}}{n^{*2}}$$
 (I-12)

avec $n^* = n - \varepsilon_{\ell}^{(\infty)}$. a est typiquement trois à quatre ordres de grandeur plus petit que $\varepsilon_{\ell}^{(\infty)}$.

Une des caractéristiques trés frappante de ces transitions entre niveaux de Rydberg est la très faible puissance microonde qui est

suffisante pour les saturer. La saturation est en fait obtenue dès que la fréquence de Rabi d \ddot{c}/\hbar ($\ddot{\xi}$ amplitude du champ) devient de l'ordre de la largeur de raie (déterminée par la largeur, naturelle ou en présence de rayonnement thermique, des niveaux, l'effet Doppler, l'effet Stark produit par des champs électriques parasites....). A cause des très fortes valeurs de d, la puissance nécessaire pour saturer, par exemple, une transition $nS \rightarrow n+1p$ dans les alcalins n'est que de 10^{-10} à 10^{-12} W/cm² ! (n 30). Les transitions à deux photons , nS \rightarrow n+1 S par exemple, sont aussi très facilement observables (le niveau nP se trouvant à peu près exactement au milieu de l'intervalle considéré). Dans ce cas aussi, les puissances de saturation sont trés faibles, de l'ordre de 10^{-6} W/cm² pour n ~ 30 (⁷⁰). Un des intérêts principaux de ces expériences est que, à partir de la mesure d'un petit nombre de paramètres (ϵ_{g} (∞) et a_{g}), on peut déduire avec une bonne précision- en utilisant la formule de Ritz et la formule des défauts quantiques (I-1)- la fréquence de n'importe quelle transition entre états trés excités. On obtient ainsi en quelque sorte une grille de fréquences de référence , du millimétrique à l'infrarouge lointain, qui pourrait avoir d'intéressantes applications métrologiques.

CHAPITRE II

.

BREF APERCU SUR LES TECHNIQUES EXPERIMENTALES



Chapitre II BREF APERCU SUR LES TECHNIQUES EXPERIMENTALES

Les expériences décrites dans ce mémoire portent principalement sur l'interaction d'un petit échantillon d'atomes de Rydberg avec un mode unique du champ électromagnétique, défini comme mode propre d'une cavité micro-onde résonnante. Ainsi que nous l'avons souligné dans l'introduction, leur but essentiel est de tester quelques effets simples d'optique quantique qui, s'ils furent prédits théoriquement par divers auteurs depuis longtemps déjà, n'ont pu être observés depuis en raison de difficultés expérimentales rendant impossible l'utilisation d'atomes "ordinaires" (états peu excités). L'avènement de techniques permettant de préparer un petit échantillon d'atomes de Rydberg dans une cavité micro-onde et d'étudier son évolution a ouvert la voie à l'étude expérimentale de ces effets et a permis, pour la première fois, de tester en détail les prédictions théoriques. Une comparaison quantitative précise entre théorie et résultats expérimentaux n'est possible que si on peut réaliser une situation expérimentale "propre". Nous verrons en fait qu'il est nécessaire de préparer un échantillon de N atomes à deux niveaux, à une position et à un instant bien définis, à l'intérieur d'une cavité de grande finesse. De plus, nous devrons pouvoir étudier l'évolution de ce système avec une bonne résolution temporelle. Nous décrirons brièvement dans ce chapitre les méthodes que nous avons développées pour remplir ces conditions. Afin de ne pas alourdir l'exposé, nous avons reporté dans l'appendice 1 les détails qui ne sont pas absolument nécessaires à la compréhension du principe des expériences (détails des sources micro-ondes, procédures d'acquisition de données, problèmes de calibration, etc..). Un schéma du montage est présenté sur la figure 2. Nous allons en analyser les principaux éléments

A) Préparation des états de Rydberg

Nous avons utilisé exclusivement les états de Rydberg du sodium qui présentent quelques avantages sur ceux des autres alcalins (faible structure hyperfine, facilité d'excitation ...) et, plus précisément, les états

de la série $nS_{1/2}$. Ils sont préparés par excitation d'un jet atomique thermique de sodium au moyen de lasers à colorant pulsés. L'excitation est en fait un processus en échelons utilisant un laser pour induire la transition $3S_{1/2} \rightarrow 3P_{1/2}$ (5896 Å) et simultanément un autre accordé sur la transition $3P_{1/2} \rightarrow nS_{1/2}$ (aux alentours de 4100 Å). La durée de l'impulsion laser est de l'ordre de 5 ns, beaucoup plus courte que les temps caractéristiques d'évolution du système (de l'ordre de 100 ns à 1 µs). La préparation du système atomique peut donc être considérée comme purement percussionnelle. On peut faire varier sur une large gamme les intensités des faisceaux laser et la densité du jet atomique. Le nombre moyen d'atomes excités à chaque impulsion peut donc varier entre 1 et 10^6 (*).

B) Cavité micro-onde

Les atomes de Rydberg sont produits à l'intérieur d'une cavité micro-onde qui, dans toutes nos expériences, est du type Fabry-Perot confocal ou semi-confocal. Ce type de cavité présente quelques avantages par rapport aux cavités closes utilisées dans un ordre peu élevé : il laisse un large passage pour le jet atomique et les faisceaux laser, il est accordable sur une large gamme en variant simplement la distance L entre miroirs. Nous avons utilisé plusieurs cavités qui seront décrites plus en détail lors de la description de chaque expérience et nous donnerons donc ici seulement l'ordre de grandeur des paramètres importants. La distance entre miroirs est de l'ordre de 1 cm, le rayon de courbure des miroirs de l'ordre de 2 cm. Le mode choisi est un mode gaussien dont le rayon minimum ("waist") est

^(*) L'excitation par un petit nombre de photons optiques ne nous permet bien sûr de ne préparer que des états de faible moment angulaire (etats S ou D ici). La possibilité de préparer des atomes de Rydberg dans des états de fort moment angulaire (|m| = l = n-1 en fait) a récemment été démontrée au M.I.T. (⁷¹). La méthode, sélective et efficace, consiste en une excitation optique suivie par une série de passages adiabatiques rapides -induits par un champ micro-onde- entre sous-niveaux Stark dans un champ électrique lentement variable. Ces états "circulaires" (l'image classique de l'orbite est un cercle) ont des propriétés radiatives intéressantes (voir chapitre I) et seront certainement au coeur de nombreuses études expérimentales dans le proche avenir.
de l'ordre de 2 mm (pour une longueur d'onde de l'ordre de 1 mm). Le volume effectif de ce mode \mathcal{V} (défini précisément dans le paragraphe III.A.4) est environ 0.1 cm³. Les facteurs de qualité obtenus Q sont de l'ordre de 10⁴ à 10^b, correspondant à des finesses de 10² à 10⁴. Les atomes préparés dans le jet atomique se déplacent à une vitesse moyenne V_{th} de l'ordre de 10³ m/s. Ils n'interagissent donc avec le mode de la cavité que pendant un temps de transit $\Delta t \sim 2 w / V_{th} \sim 3 \mu s$.

C) Réalisation d'un système à deux niveaux

Dans nos expériences, nous préparons les atomes de Rydberg dans un niveau $nS_{1/2}$ et étudions le transfert vers un niveau $n'P_{1/2}$ sous l'influence de la cavité accordée sur cette transition (n' = n pour une expérience en absorption, n' = n-1 pour une expérience en émission). Chacun de ces deux niveaux possède une dégénérescence ^(*) : il existe deux sousniveaux magnétiques m_J = +1/2 et m_J = -1/2, également peuplés par l'excitation laser et donc deux transitions de même fréquence.

Chacun des modes de polarisation du champ dans la cavité (polarisations circulaires σ^+ et σ^- par rapport à l'axe de la cavité) est résonnant sur une de ces transitions. On a donc en fait dans ce cas deux systèmes d'atomes à deux niveaux interagissant avec deux modes indépendants du champ. Cette dégénérescence peut être levée en appliquant un petit champ magnétique \vec{B}_{o} parallèle à l'axe de la cavité. L'effet Zeeman lève alors la dégénérescence des niveaux et il est possible de faire en sorte de n'accorder la cavité que sur l'une des composantes de polarisation de la transition. Les atomes préparés dans l'autre sous-niveau magnétique n'interagissent alors pratiquement pas avec la cavité. Le champ \vec{B}_{o} , de l'ordre de 50 Gauss, est produit au moyen de petites bobines de Helmholtz, d'axes parallèles à l'axe de la cavité. Dans la suite de cet exposé, nous appellerons |e > et |g > les sous-niveaux Zeeman supérieur et inférieur de la seule transition résonnante avec la cavité.

^(*) Nous négligeons ici la structure hyperfine de ces niveaux qui est, pour les états de Rydberg du sodium, beaucoup trop faible (\sim 100 KHz) pour que les spins électronique et nucléaire aient le temps de se coupler pendant le temps Δt d'interaction avec le mode de la cavité.



Figure 3 : Déroulement temporel de l'expérience

Bien entendu, nous n'isolerions ici un "vrai" système à deux niveaux que si les processus de transfert vers d'autres niveaux de Rydberg pouvaient être négligés (transferts par émission spontanée ou induits par le rayonnement thermique). En fait, le modèle à deux niveaux n'est ici qu'une approximation valable pour des temps courts devant les temps caractéristiques de ces transferts (qui sont de l'ordre de la dizaine de microsecondes dans nos expériences).

D) Détection de l'évolution du système atomique

Les effets du couplage cohérent des atomes de Rydberg avec le mode de la cavité résonnant sur la transition |e > + |g > se manifestent par l'évolution, en fonction du temps, de la probabilité de trouver les atomes dans l'un de ces niveaux. La meilleure technique pour détecter cette évolution est, sans aucun doute, la méthode de l'ionisation par champ sélective (^{72 - 74}). Cette technique consiste à appliquer aux atomes, après qu'ils aient quitté la cavité et quand ils sont entrés dans le condensateur représenté sur la figure 2, une rampe de champ électrique homogène dans l'espace F₁(t). On utilise alors le fait que des niveaux différents sont ionisés dans des champs légèrement différents (le champ minimum vu par l'électron de Rydberg au cours de son orbite varie comme n⁻⁴ et n'est que de l'ordre de l kV/cm pour n = 30) : la rampe de champ électrique atteint à des instants différents les seuils d'ionisation des niveaux |e > et |g >.

La séquence d'évènements de l'excitation à la détection des atomes est présentée sur la figure 3 : les atomes, préparés à t = 0 dans la cavité, interagissent avec le mode pendant un temps moyen Δt , entrent dans le condensateur un peu avant l'instant t_1 où la rampe de champ $F_1(t)$ est appliquée. Les niveaux $|e \rangle$ et $|g \rangle$ s'ionisent aux instants t_e et t_g . Les électrons produits, accélérés par le champ ionisant, sont collectés par un multiplicateur d'électrons (M.E. sur la figure 2). On obtient alors des courants d'ionisation résolus en temps autour des temps t_e et t_g , dont l'aire est directement proportionnelle au nombre d'atomes dans les niveaux $|e \rangle$ et $|g \rangle$ à l'instant de la détection. Le gain du multiplicateur d'électrons et de la chaîne de détection est calibré par une méthode décrite dans l'appendice 1. On peut donc connaître la population <u>absolue</u> des niveaux $|e \rangle$ et $|g \rangle$ à cet instant.

Entre l'instant où ils guittent la cavité et celui où ils sont détectés, les atomes subissent des transferts (spontanés ou induits par le rayonnement thermique). Les taux de ces transferts sont bien connus (ou sont mesurables) et il est donc possible d'effectuer, sur les signaux détectés, les corrections nécessaires pour obtenir les populations absolues des niveaux $|e \rangle$ et $|g \rangle$ à l'instant Δt de la fin de l'interaction avec la cavité. Ces corrections sont décrites plus en détail dans l'appendice 1. Jusqu'ici, cette technique ne nous permet de tester l'état du système qu'à la fin de l'interaction avec la cavité et ne nous donne aucune information sur l'évolution temporelle des populations atomiques entre t = 0 et t = Δt . On pourrait bien sûr penser à placer le condensateur de détection par ionisation par champ autour de la cavité et à appliquer la rampe de champ ionisant à un instant t < Δt après l'excitation laser. Bien qu'elle soit en principe très simple, cette méthode est difficilement réalisable. On se heurte en effet à deux exigences contradictoires : d'une part ,les plaques du condensateur de détection doivent être assez rapprochées pour que le champ F1 (t) soit bien homogène spatialement au niveau des atomes (une inhomogénéité de quelques % suffit à brouiller complètement la résolution temporelle des signaux d'ionisation); d'autre part, elles doivent être assez éloignées pour ne pas affecter la structure de mode et le facteur de qualité de la cavité. Les seules possibilités d'utiliser cette technique seraient, soit de réaliser une cavité confocale avec L >> w_ et d'utiliser alors un condensateur plan de grandes dimensions, soit de conserver la cavité et de réaliser un condensateur dont la forme optimise l'homogénéité du champ au niveau de l'échantillon atomique (la réalisation pratique d'un tel condensateur étant certainement très difficile).

Il existe toutefois une autre solution pour échantillonner l'évolution du système atomique en conservant un condensateur de détection placé en dehors de la cavité, comme sur la figure 2. Cette technique consiste à appliquer, à un instant t $\leq \Delta t$, un champ électrique très inhomogène F_2 (t) à l'intérieur de la cavité au moyen d'une petite électrode placée suffisamment loin du mode pour ne pas affecter son facteur de qualité (figures 2 et 3). Le champ F_2 , de l'ordre de quelques dizaines de volts par centimètre (tension sur l'électrode de l'ordre d'une centaine de volts), est très inférieur au seuil d'ionisation des niveaux |e > et |g >. En revanche, il déplace ces ni-

veaux par effet Stark (la différence de polarisabilité statique des niveaux S et P est de l'ordre de 10 MHz/(V/cm)) (⁷⁵). La transition atomique cesse donc, dès que le champ F_2 est appliqué, d'être résonnante avec la cavité : l'évolution due au couplage cohérent avec le mode est "trempée" à l'instant t et, jusqu'au moment où ils sont détectés, les atomes n'évoluent plus que par émission spontanée ou transferts induits par le rayonnement thermique, processus bien connus dont il est facile de tenir compte (les taux de ces transferts, résultant du couplage des atomes avec le continuum des modes transverses du champ, ne sont pas modifiés par l'application du champ F_2 , la largeur de ce continuum étant très supérieure au déplacement de la fréquence atomique). La détection par ionisation par champ sonde donc en fait le système tel qu'il était à l'instant t. L'évolution temporelle entre 0 et Δ t peut être reconstruite en variant l'instant t.

Cette technique, dite de "l'électrode de trempe" ou, en termes plus imagés, de "l'électrode tueuse" (de cohérence), permet d'obtenir une excellente résolution temporelle : la tension appliquée sur l'électrode, de quelques dizaines de volts seulement, peut être commutée très rapidement (quelques nanosecondes); le couplage des atomes avec le mode du champ est donc interrompu en un temps de l'ordre de la nanoseconde (Bien sûr, ce système ne permet pas d'obtenir <u>toute</u> l'évolution temporelle en une seule réalisation de l'expérience.).

L'ensemble de l'expérience est sous le contrôle d'un mini-ordinateur LSI 11-03. Celui-ci reçoit les signaux d'ionisation par champ digitalisés (voir appendice 1), agit sur les paramètres de l'expérience et en particulier sur l'instant d'application du champ F_2 (t). Il calcule l'aire des signaux d'ionisation autour des instants t_e et t_g, les normalise en fonction du gain de la chaîne de détection, effectue les corrections nécessaires pour remonter aux populations à l'instant de la trempe. Différents programmes permettent alors d'enregistrer l'évolution moyenne, de faire des statistiques sur cette évolution, de stocker les données.

Ce système permet, en variant le gain du multiplicateur d'électrons par l'intermédiaire de sa tension d'alimentation, d'étudier l'évolution de très petits (N \sim 1) ou d'assez grands (N \sim 10⁶) échantillons, avec une excellente résolution temporelle.

E) Génération d'un champ micro-onde agissant sur les atomes

Dans ce paragraphe, nous décrirons brièvement les sources micro-ondes utilisées pour appliquer aux atomes un champ cohérent ou incohérent.

Les photons les moins chers sont certainement ceux du rayonnement du corps noir, toujours présents dans le mode de la cavité. Ce rayonnement provient d'une part des miroirs de la cavité et d'autre part du "monde extérieur", faiblement couplé au mode de la cavité par diffraction sur le bord des miroirs. Le processus dominant est celui qui limite la finesse de la cavité, en général les pertes dans les miroirs à haute fréquence et la diffraction à basse fréquence où celle-ci est beaucoup plus importante.

Il est possible d'agir sur la température du rayonnement dans le mode de la cavité. Elle peut être réduite en refroidissant la cavité et son environnement à des températures cryogéniques (quelques degrés K : voir le paragraphe III.B.3). On peut aussi l'augmenter, soit en utilisant un petit filament de tungstène électriquement chauffé et faiblement couplé au mode (³⁰) (w sur la figure 2), soit en couplant la cavité, par un trou percé dans l'un des miroirs, à une source de bruit millimétrique (nous disposons d'une source à plasma équivalente, dans le domaine millimétrique, à un corps noir à 3000 K). Toutes ces techniques nous permettent de varier continuement la température du mode de quelques degrés à quelques centaines de degrés.

Quand il est nécessaire d'appliquer un champ cohérent sur les atomes, nous utilisons en général les harmoniques d'un klystron centimétrique (bande X autour de 11 GHz) produits dans une diode Schottky haute fréquence ($^{76} - ^{78}$) (parmi tous les harmoniques produits dans la diode, un seul est résonnant avec la transition atomique : les autres n'ont pratiquement pas d'effet). Cette technique, utilisant un matériel assez bon marché, permet de produire une centaine de microwatts à 100 GHz, plus que largement suffisante pour saturer les transitions entre niveaux de Rydberg voisins. De plus, en choisissant le rang harmonique et la fréquence du klystron,

cette source est continuement accordable à partir de quelques dizaines de GHz. Enfin, elle présente une très bonne qualité spectrale, liée à la haute stabilité du klystron asservi utilisé.

Si des puissances micro-ondes importantes sont nécessaires (expériences de précession de Rabi sur une transition à deux photons par exemple, § III.D.2), nous utilisons des tubes carcinotrons qui, dans la gamme de 50 à 500 GHz, sont chacun accordables sur une dizaine de gigahertz et capables de fournir des puissances comprises entre 1 mW et quelques watts. Ces sources, naturellement assez instables, sont asservies en fréquence ou en phase par mélange harmonique avec un klystron multiplié (⁷⁶). Ces techniques micro-ondes, très importantes dans nos expériences, sont décrites plus en détail dans l'appendice 1.

CHAPITRE III

•

.

UN ATOME DE RYDBERG DANS UNE CAVITE RESONNANTE

Chapitre III UN ATOME DE RYDBERG DANS UNE CAVITE RESONNANTE

Nous nous intéresserons dans ce chapitre à la situation la plus simple possible : un <u>seul</u> atome à deux niveaux couplé au mode de la cavité. Nous avons vu que l'appareillage décrit dans le chapitre précédent permet en effet, en réduisant l'intensité de l'excitation, de réaliser une telle situation. Sur ce système très simple nous verrons quelques exemples importants de couplage <u>cohérent</u> entre l'atome et le champ, même en l'absence de toute source extérieure de radiation cohérente.

Dans le premier chapitre, nous avons analysé les transferts entre niveaux de Rydberg sous l'influence de l'émission spontanée ou du rayonnement thermique en termes de <u>transitions irréversibles</u> résultant du couplage des niveaux atomiques avec un large continuum de modes du champ. Ce point de vue n'est bien entendu plus valable si la cause essentielle d'évolution du système atomique est le couplage à un <u>seul mode</u> du champ défini par la caⁿité résonnante. Dans ce cas, des phénomènes <u>réversibles</u> peuvent apparaître (émission spontanée oscillante, ou nutation de Rabi de l'atome dans le champ du photon qu'il a lui-même émis). Quelles sont les conditions pour lesquelles le couplage au seul mode de la cavité est effectivement le processus dominant ?

La constante de couplage entre l'atome et le champ, Ω , s'exprime, en unités de fréquence angulaire, par :

$$\Omega = \frac{d}{\varkappa} \sqrt{\frac{\varkappa \omega_{o}}{2 \varepsilon_{o} \mathcal{V}}}$$
(III.1)

où \mathcal{U} est le volume effectif du mode, défini plus précisément dans le prochain paragraphe, d l'élément de matrice dipolaire sur la transition considérée de fréquence angulaire ω_{α} .

 Ω est en fait la pulsation de la précession de Rabi de l'atome dans un champ électrique $\sqrt{\frac{\varkappa_{o}}{2 \varepsilon_{o} \mathcal{V}}}$ correspondant à <u>un seul</u> photon stocké

dans la cavité. Pour que le couplage à la cavité soit dominant, Ω doit être beaucoup plus grand que le taux de relaxation par émission spontanée.

Dans le cas d'atomes "ordinaires" (peu excités) et de transitions optiques, la cavité est nécessairement une cavité ouverte, de type Fabry-Perot, travaillant dans un ordre d'interférence élevé. L'influence des modes transverses du rayonnement, ne se propageant pas le long de l'axe de la cavité, est alors importante : Ω est une quantité petite devant le taux d'émission spontanée Γ sur la transition considérée. En effet, Γ est en général de l'ordre de $10^7 - 10^8 \text{ s}^{-1}$, alors que Ω est de l'ordre de 10^4 à 10^5 s^{-1} seulement (avec d $\sim 10^{-29}$, $M\omega \sim 10^{-19}$, $\mathcal{V} \sim 10^{-7}$ unités SI). Pour de tels atomes, le couplage cohérent avec le mode de la cavité est donc un processus complètement négligeable, à moins bien sûr qu'un très grand nombre moyen de photons, n_o, me se trouve stocké dans le mode de la cavité. Dans ce dernier cas, en effet, la fréquence caractéristique du couplage avec le champ devient $\Omega \sqrt{n_o} + 1$ qui peut être plus grandeque Γ dès que n_o $\gtrsim 10^6 - 10^8$ (une condition très largement réalisée dans les lasers optiques).

Dans le cas des atomes de Rydberg couplés à une cavité microonde résonnante sur une transition entre niveaux voisins, la situation est radicalement différente. En effet, bien que la fréquence de transition soit relativement faible, Ω est encore de l'ordre de 10⁴ à 10⁵ s⁻¹, à cause de la forte valeur des éléments de matrice dipolaires. Ω doit encore être comparé au taux d'émission spontanée total ($\sim 10^5 s^{-1}$) qui n'est pratiquement pas modifié à l'intérieur de la cavité. Nous avons vu en effet dans le chapitre I que, pour des états de faible moment angulaire, l'émission spontanée se produit essentiellement sur les transitions optiques vers les niveaux profonds. Les cavités micro-ondes ayant une très mauvaise finesse dans le domaine optique et travaillant dans un ordre très élevé n'affectent pratiquement pas ces processus. La condition $\Omega \sqrt{n_0 + 1} >> \Gamma_T$ peut donc être remplie aisément et les effets du couplage de l'atome avec le mode de la cavité pourront être observés pour de très faibles nombres moyens de photons ($n_0 = 0$ à la limite).

En d'autres termes, dès que la cavité est accordée sur une transition entre deux niveaux de Rydberg, on réalise presque idéalement le système d'un seul atome couplé à un seul mode du champ.

Un grand nombre d'effets intéressants -prédits théoriquement dès les débuts de l'électrodynamique quantique mais jamais observés depuisdeviennent accessibles à l'expérience. Parmi ces effets, les plus importants sont sans doute la modification de l'émission spontanée à l'intérieur d'une cavité de finesse modérée (¹¹), la nutation de Rabi dans le champ rayonné par l'atome lui-même dans une cavité de grande finesse, la nutation de Rabi dans le champ thermique incohérent (^{14 - 16}) et enfin de curieux effets de disparition et réapparition des oscillations de Rabi dans un champ cohérent très faible (^{17 - 19}).

Nous donnerons dans ce chapitre un modèle théorique très simple permettant de calculer exactement ces effets. Nous présenterons également les premières expériences qui ont permis de mettre en évidence certains d'entre eux. Nous commencerons par introduire les équations décrivant la relaxation du champ dans une cavité de surtension finie (§ III.A); nous envisagerons ensuite les deux régimes d'émission spontanée d'un atome dans une cavité à température nulle (§ III.B), puis à température finie (§ III.C) et nous en viendrons enfin au comportement de l'atome en présence d'un champ cohérent appliqué (§ III.D).

A) <u>Un atome de Rydberg dans une cavité résonnante : le modèle</u> théorique

Nous avons vu dans le chapitre II qu'il est possible de préparer un système où un atome unique est couplé à un seul mode du champ. Nous allons, dans ce paragraphe, donner le cadre théorique nécessaire à la description de ce système ($^{79} - ^{80}$). Nous commencerons par introduire (§ 1) les quantités permettant de décrire le mode du champ. Dans le paragraphe 2, nous analyserons la relaxation de ce mode couplé à un réservoir en équilibre thermodynamique par les pertes dans les miroirs de la cavité. Nous introduirons enfin, dans le paragraphe 3, les équations couplées décrivant l'évolution du système atome + champ.

1) Description du mode de la cavité

Nous associerons au mode du champ dans la cavité les opérateurs a⁺ et a de création et d'annihilation d'un photon respectivement. Ces opérateurs obéissent à la relation de commutation bien connue :

$$\begin{bmatrix} a, a^{\dagger} \end{bmatrix} = 1$$
 (III.2)

L'action des opérateurs a et a⁺ sur l'état |n > du champ (mode contenant n photons) est donnée par :

$$a | n \rangle = \sqrt{n} | n-1 \rangle$$
 (III.3)

$$\mathbf{a}^{\mathsf{T}} \mid \mathbf{n} \rangle = \sqrt{\mathbf{n}+1} \mid \mathbf{n}+1 \rangle \tag{III.4}$$

L'opérateur champ électrique au point \vec{r} dans la cavité est défini par :

$$\vec{E}(\vec{r}) = \sqrt{\frac{\hbar\omega}{2\epsilon_0 l^9}} | \vec{a} \cdot \vec{E} \cdot \vec{f}(\vec{r}) + \vec{a} \cdot \vec{E} \cdot \vec{f}(\vec{r}) | \quad (III.5)$$

Dans cette expression, $\vec{\epsilon}$ est un vecteur unitaire complexe représentant la polarisation du champ : $\vec{\epsilon} = \frac{\vec{\epsilon}_x + i\vec{e}_y}{\sqrt{2}}$ pour la polarisation σ^+ , $\vec{\epsilon} = \frac{\vec{\epsilon}_x - i\vec{e}_y}{\sqrt{2}}$ pour la polarisation σ^- , $\vec{\epsilon}_x$ et \vec{e}_y étant deux vecteurs unitaires réels perpendiculaires entre eux et perpendiculaires à l'axe de la cavité. $f(\vec{r})$ est une fonction réelle de la position qui représente l'amplitude relative du champ au point \vec{r} dans la structure d'onde stationnaire du mode. $f(\vec{r})$ est normalisée de telle façon que $f(\vec{r}) = 1$ aux points où l'amplitude du champ est maximum. On reconnaît dans l'expression de \vec{E} le facteur $\sqrt{\frac{\mu\omega}{2\epsilon_0}}$, égal au champ électrique d'un photon stocké dans la

cavité (voir plus haut). ω est la fréquence du mode de la cavité, supposée ici peu différente de la fréquence de transition atomique ω_{o} . \mathcal{U} est le volume effectif du mode. Contrairement au cas de la plupart des calculs d'électrodynamique quantique où le champ est quantifié dans une cavité fictive de forme arbitraire et de dimensions grandes devant le système considéré (qu'on fait d'ailleurs tendre, à la fin du calcul, vers l'infini), \mathcal{V} est ici un paramètre physique bien défini, lié aux caractéristiques géométriques de la cavité.

On peut calculer simplement \mathcal{V} en égalant deux expressions équivalentes de l'énergie moyenne dans l'état |n > :

$$< n | H_{F} | n > = (n + \frac{1}{2}) \varkappa = \int < n | E^{2}(\vec{r}) | n > d^{3}\vec{r}$$
 (III.6),

où $H_F = M\omega \left(a^+a + \frac{1}{2}\right)$ (III.7) est le hamiltonien du champ libre.

Après quelques calculs élémentaires, on trouve :

$$\mathcal{V} = \int |\mathbf{f}(\vec{\mathbf{r}})|^2 d^3 \vec{\mathbf{r}} \qquad (III.8)$$

Nous utilisons dans nos expériences des cavités Fabry-Perot confocales ou semi-confocales. On a, dans ces deux cas (⁸¹) :

$$f(x,y,z) = e^{-(x^{2}+y^{2})/(w^{2}(z))} \left(\sin \frac{qz}{L} \right) \frac{w_{0}}{w(z)}$$
(III.9)

(structure de mode gaussien stationnaire).

z est l'abscisse le long de l'axe de la cavité, mesurée à partir de l'étranglement du faisceau gaussien, x et y les coordonnées transverses selon les directions \vec{e}_x et \vec{e}_y . w(z) (rayon du mode à l'abscisse z) est défini par :

$$w^{2}(z) = w_{O}^{2} \left[1 + \frac{\lambda^{2} z^{2}}{\pi^{2} w_{O}^{4}} \right]$$
 (III.10)

w étant le rayon minimum du mode ("waist"). q, enfin, est l'ordre d'interférence, relié à la distance entre miroirs L par :

$$L = \left(q + \frac{1}{4}\right) \frac{\lambda}{2} \qquad (III.11) \\ \left(\lambda = -\frac{2\pi C}{\omega}\right)$$

Le volume effectif \mathcal{Y} est donc donné par :

$$\mathcal{V} = \frac{\pi w_0^2 L}{4} = (q + \frac{1}{4})^2 \frac{\lambda^3}{16}$$
 (III.12)

Le volume effectif du mode est donc de l'ordre de $5\lambda^3$ pour une cavité dans le dixième ordre (ce qui est à peu près le cas des cavités que nous utilisons). Le fait que \mathcal{U} ne soit pas très grand devant λ^3 (comme c'est le cas pour une cavité optique) indique bien que le champ d'un seul photon dans le mode est assez important, ainsi donc que le couplage atome champ.

2) La relaxation du mode du champ

Les pertes dans les miroirs font que le temps d'amortissement de l'énergie électromagnétique stockée dans la cavité ($T_{cav} = Q/\omega$, où Q est le facteur de qualité de la cavité) varie en pratique dans nos expériences entre 10 ns et 1 µs. Il est donc au plus de l'ordre du temps d'interaction Δt des atomes avec le mode ainsi que des temps caractéristiques d'évolution des variables atomiques. Une description réaliste de l'évolution du système doit donc impérativement tenir compte des processus de relaxation du champ.

Nous ne pourrons pas, bien sûr, donner, dans le cadre de ce mémoire, une description exhaustive de la théorie de la relaxation appliquée à un mode du champ, qui ne serait d'ailleurs en aucun cas originale. Nous nous contenterons donc seulement de rappeler brièvement les résultats obtenus dans de nombreuses autres publications (⁸²)(⁸³).

On peut adopter, pour décrire la relaxation du mode, le point . de vue de Schrödinger où la matrice densité du champ est une fonction du temps, ou bien le point de vue de Heisenberg dans lequel l'état du système est constant et où les opérateurs dépendent du temps. Nous utiliserons, dans la suite de ce mémoire, ces deux points de vue. Le point de vue de Schrödinger est en effet bien adapté à la description des petits systèmes (N \sim 1), alors que le point de vue de Heisenberg permet d'établir, pour les grands systèmes (N >> 1), des correspondances fructueuses entre opérateurs quantiques et quantités classiques. Nous décrirons donc la relaxation du champ dans ces deux points de vue.

Il est a priori nécessaire, pour décrire cette relaxation, d'avoir un modèle du réservoir auquel le mode est couplé (on utilise souvent un modèle comprenant un grand nombre d'oscillateurs harmoniques dont les fréquences s'étalent sur une large gamme. On peut utiliser aussi un modèle de miroirs pavés d'atomes à deux niveaux en équilibre thermodynamique). Heureusement, la forme des équations de relaxation ne dépend pas de ce modèle détaillé : ceci est une conséquence du fait que, dans tous les cas, le couplage du champ au réservoir est toujours une combinaison linéaire des opérateurs a et a⁺. La valeur précise de l'amplitude de ce couplage, c'està-dire le facteur de qualité, dépend bien sûr de la structure microscopique des miroirs. Cependant, cette valeur peut être mesurée dans des expériences indépendantes (mesure de la transmission de la cavité en fonction de la frequence d'un champ incident par exemple - voir appendice 1) et nous n'avons donc pas à l'obtenir en partant des premiers principes, une tâche formidable, voire même impossible.

Dans le point de vue de Schrödinger, l'équation pilote décrivant l'évolution de la matrice densité du champ $\rho_{\rm F}$ peut s'écrire ($^{7\,9})$:

$$\frac{d\rho_{\rm F}}{dt} = \frac{1}{i\not h} \left[H_{\rm F}, \rho_{\rm F} \right] + \Lambda_{\rm F} \rho_{\rm F} \qquad (III.13)$$

 H_F est le hamiltonien du champ libre défini précédemment (III.7). $\Lambda_F^{}$ est un opérateur liouvillien de relaxation dont l'action sur $\rho_F^{}$ est donnée par :

$$\Lambda_{F} \rho_{F} = -\frac{\omega}{2Q(T)} \left[a^{+}a, \rho_{F} \right]_{+}^{+} + \frac{\omega}{Q(T)} a \rho_{F} a^{+}$$
$$-\frac{\omega}{2Q(T)} \frac{\overline{n}}{\overline{n}+1} \left[aa^{+}, \rho_{F} \right]_{+}^{+} + \frac{\omega}{Q(T)} \frac{\overline{n}}{\overline{n}+1} a^{+} \rho a$$
(III.14)

Dans cette équation, \overline{n} est le nombre moyen de photons thermiques dans le mode en équilibre thermodynamique donné par l'équation (I.8) et Q(T) est le facteur de qualité de la cavité qui est en général une fonction de la température des miroirs.

Les deux premiers termes de l'équation (III.14) décrivent une perte d'énergie pour le champ et un gain d'énergie pour le réservoir. Les deux derniers termes décrivent l'absorption de l'énergie thermique du réservoir par le champ.

En développant l'équation pilote (III.13) sur la base des états d'occupation $|n \rangle$, on peut montrer très simplement que la matrice densité du champ à l'équilibre est :

$$< n | \rho_F | n' > = \delta_{nn'} (1-\beta) \beta^n$$
, avec $\beta = e^{-\beta \omega / k_B T} = \frac{-n}{n+1}$ (III.15)

On peut montrer aussi que :

$$\frac{d \langle a \rangle}{dt} = -\frac{\omega}{2Q(T)} \langle a \rangle \qquad (III.16)$$

équation exprimant que le champ électrique relaxe vers son état d'équilibre (< a > = 0) avec une constante de temps $\left\{ \begin{array}{c} \omega \\ -\omega \\ 2Q(T) \end{array} \right\}^{-1}$.

Dans le point de vue de Heisenberg, il est commode de décrire l'action du réservoir sur les opérateurs a et a⁺ par une force aléatoire F_a : la force de Langevin (^{84 - 86}). L'équation d'évolution de a est alors donnée par :

$$\frac{da}{dt} = \frac{1}{iN} \left[a, H_F\right] - \frac{\omega}{2Q(T)} a + F_a \qquad (III.17)$$

Le deuxième terme du membre de droite de cette équation décrit la relaxation du champ vers son état d'équilibre avec une constante de temps $\left\{ \frac{\omega}{2Q(T)} \right\}^{-1}$ et le troisième décrit les fluctuations du champ en contact avec le réservoir. On notera l'analogie formelle entre cette équation et celle de l'évolution de la vitesse d'une particule brownienne plongée dans un gaz (^{87 - 88}). Nous verrons, tout au long de ce mémoire, des conséquences de cette analogie profonde entre ce problème de relaxation et le mouvement brownien.

 F_a résulte en fait de la superposition d'un grand nombre de processus aléatoires, chacun d'eux correspondant à un des modes du réservoir. Le temps de corrélation de F_a , T_c , est donc de l'ordre de l'inverse de la largeur en fréquence du réservoir, c'est-à-dire de l'ordre de l'inverse de ω . Il s'agit donc d'un temps extrêmement court à l'échelle de l'évolution atomique. De plus, F_a possède les propriétés d'une variable aléatoire gaussienne (théorème de la limite centrale). En d'autres termes, tous les moments d'ordre impair de F_a sont nuls, et les moments d'ordre pair s'expriment tous simplement en fonction du moment d'ordre 2.

On a donc :

où $\delta_{\tau_{c}}$ est une fonction de largeur τ_{c} et d'intégrale sur le temps 1, qui peut être assimilée à une distribution de Dirac à l'échelle des temps d'évolution atomique. $\theta_{\tau_{c}}$ (T) est définie par :

$$\theta_{\tau_{c}}(\tau) = 0 \quad \text{pour } \tau > 0$$

$$\theta_{\tau_{c}}(0) = 1/2 \qquad (III.19)$$

$$\theta_{\tau_{c}}(\tau) = e^{\omega \tau/2Q} \quad \text{pour } \tau < 0$$

ce qui exprime simplement que le champ n'est corrélé qu'aux forces de Langevin dans le passé, avec un temps de mémoire de l'ordre de Q/ω .

La valeur des coefficients de diffusion D_{a^+a} et D_{aa^+} peut être obtenue en explicitant a(t) en fonction de $F_a(t - \tau)$ et en utilisant les fonctions de corrélation du champ à l'équilibre thermodynamique

$$\langle a^{\dagger}a \rangle = \overline{n}$$
 (III.20)
 $\langle aa^{\dagger} \rangle = \overline{n} + 1$

On trouve :

$$D_{a^{+}a} = \frac{\omega}{Q} \quad \overline{n}$$
(III.21)
$$D_{aa^{+}} = \frac{\omega}{Q} \quad (\overline{n} + 1)$$

3) Equation d'évolution du système atome + champ

Nous allons donner dans ce paragraphe les équations d'évolution complètes du système constitué par un atome à deux niveaux et le mode du champ. Commençons par préciser quelques notations relatives au système à deux niveaux. Il est fructueux d'utiliser l'analogie de ce système avec un spin 1/2. Nous introduirons donc les opérateurs D^+ , D^- et D^3 définis par :

$$D^{+}|g \rangle = |e \rangle \qquad D^{+}|e \rangle = 0$$

$$D^{-}|e \rangle = |g \rangle \qquad D^{-}|g \rangle = 0 \qquad (III.22)$$

$$D^{3} = \frac{1}{2} \left[|e \rangle \langle e| - |g \rangle \langle g| \right]$$

Ces opérateurs vérifient les relations de commutation standard d'un moment angulaire :

 $\begin{bmatrix} D^+, D^- \end{bmatrix} = 2D^3$ (III.23)

$$\begin{bmatrix} D^3, D^{\pm} \end{bmatrix} = \pm D^{\pm}$$
(III.24)

Le hamiltonien du système atomique s'écrit alors simplement :

$$H_{A} = \not M \omega_{O} D^{3}$$
 (III.25)

Le moment dipolaire de l'atome s'écrit :

$$\vec{\mathfrak{D}} = (D^+ + D^-) d\vec{\varepsilon}_a$$
 (III.26)

où $\dot{\epsilon_a}$ est la polarisation de la transition atomique.

Nous écrirons l'interaction de l'atome avec le champ dans le cadre de l'approximation dipolaire électrique, très largement vérifiée ici $(\lambda >> n^2 a_0)$. Nous ferons de plus l'approximation de l'onde tournante (⁹) consistant à négliger, dans le produit scalaire $\vec{\mathcal{D}}, \vec{E}$, les termes non résonnants aD et a^+D^+ (cette approximation est valide tant que la fréquence de la cavité est proche de la fréquence atomique). Nous supposerons de plus, uniquement pour simplifier l'algèbre, que la polarisation du mode est égale à la polarisation atomique $(\vec{E}, \vec{E}_a = 1)$, que l'atome est initialement situé dans un ventre de champ électrique $(f(\vec{r}) = 1$ dans l'équation (III.5)). Nous négligerons enfin le mouvement de l'atome à travers le mode de la cavité (cet effet pourrait être inclus, mais il complique l'algèbre sans introduire d'idée physique nouvelle).

Après ces quelques hypothèses simplificatrices, le hamiltonien de couplage atome - champ $H_{_{\rm AF}}$ s'écrit :

$$H_{AF} = -M\Omega \left[aD^{+} + a^{+}D^{-} \right]$$
 (III.27)

Pour obtenir une équation d'évolution simple pour le système, nous supposerons que la relaxation atomique est négligeable. Les taux de relaxation atomique sont en effet, dans nos expériences, de l'ordre de 10^5 s^{-1} , alors que le temps d'interaction cohérente avec le champ n'est que de l'ordre de 3 µs. En tout état de cause, ces effets pourraient être inclus, mais ils compliquent un peu l'analyse mathématique du problème, l'approximation du système à deux niveaux n'étant plus valable a priori. Nous supposerons enfin que la relaxation du champ n'est pas sensiblement modifiée par le couplage avec l'atome, ce qui est légitime puisque $\Omega << \tau_{-1}^{-1}$.

L'équation pilote de la matrice densité du système $\rho_{\rm A+F}$ s'écrit alors, dans le point de vue de Schrödinger :

$$\frac{d\rho_{A+F}}{dt} = \frac{1}{i\hbar} \left[H_A + H_F + H_{AF}, \rho_{A+F} \right] + \Lambda_F \rho_{A+F}$$
(III.28)

où Λ est le liouvillien n'agissant que sur les variables du champ donné par l'équation (III.14).

Dans le point de vue de Heisenberg, maintenant, on obtient, après le calcul -élémentaire- des commutateurs $\begin{bmatrix} a, H_F + H_{AF} \end{bmatrix}$ et $\begin{bmatrix} D^{\pm}, H_A + H_{AF} \end{bmatrix}$, les équations couplées :

$$\frac{da}{dt} = -i\omega a - \frac{\omega}{2Q} a + i \Omega D + F_{a}$$
(III.29)
$$\frac{dD}{dt} = i\omega_{O} D - 2i \Omega aD^{3}$$

Nous allons maintenant résoudre ces équations d'évolution dans quelques cas simples :

B) Emission spontanée d'un atome unique dans une cavité résonnante à température nulle

Nous décrirons dans ce paragraphe l'évolution d'un atome initialement préparé dans le niveau supérieur $|e\rangle$ de la transition résonnante avec le mode de la cavité ($\omega = \omega_0$), initialement vide de photons (T = 0 K). En utilisant le point de vue de Schrödinger, nous décrirons les deux régimes d'évolution possibles en fonction des valeurs relatives de Ω et ω/Q (§ 1). Nous montrorons que, pour l'un de ces régimes ($\Omega >> \omega/Q$), l'utilisation du formalisme de l'atome habillé conduit à une interprétation physique très simple (§ 2). Nous décrirons enfin une expérience où le régime correspondant à $\Omega << \omega/Q$ a pu être observé (§ 3). Ce régime peut être décrit comme une accélération de l'émission spontanée due à la modification de la structure de modes du champ induite par la cavité.

1) Le: deux régimes d'évolution

L'équation pilote de la matrice densité du système est l'équation (III.28) avec n = 0 (T = 0 K). La conservation de l'énergie restreint alors

l'évolution du système à trois états seulement : l'état initialement préparé $|1 \rangle = |e, 0 \rangle$ correspondant à un atome excité dans une cavité vide et les états $|2 \rangle = |g, 1 \rangle$ et $|3 \rangle = |g, 0 \rangle$ correspondant à un atome dans le niveau du bas de la transition avec 1 ou 0 photon dans le mode.

Dans le cas limite $\omega/Q \rightarrow 0$ (cavité idéale), l'état $|3\rangle$ ne peut pas être atteint et l'évolution est simplement une oscillation de Rabi entre les états $|1\rangle$ et $|2\rangle$, à la pulsation Ω . Si la relaxation est présente, l'état $|3\rangle$ devient l'état final du système.

L'équation pilote développée sur la base des états $\left|1\right>,\ \left|2\right>$ et $\left|3\right>$ donne :

$$\frac{d}{dt} \rho_{11} = i\Omega \ (\rho_{12} - \rho_{21})$$

$$\frac{d}{dt} \rho_{22} = -\frac{\omega}{Q} \rho_{22} - i\Omega \ (\rho_{12} - \rho_{21})$$
(III.30)
$$\frac{d}{dt} \ (\rho_{12} - \rho_{21}) = 2i\Omega \ (\rho_{11} - \rho_{22}) - \frac{\omega}{2Q} \ (\rho_{12} - \rho_{21})$$

$$\frac{d}{dt} \rho_{33} = \frac{\omega}{Q} \rho_{22}$$

Ces quatre équations ne sont pas indépendantes (conservation de la matrice densité).

Nous poserons donc $\rho_1 = \rho_{11}$; $\rho_2 = \rho_{22}$; $\rho_{12}-\rho_{21} = \alpha$. On a alors :

$$\frac{d}{dt} \begin{bmatrix} \rho_1 \\ \rho_2 \\ \alpha \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & i\Omega \\ 0 & -\omega/Q & -i\Omega \\ 2i\Omega & -2i\Omega & -\frac{\omega}{2Q} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \rho_1 \\ \rho_2 \\ \alpha \end{bmatrix}$$
(III.31)

Ce système différentiel admet les fréquences propres :

$$\mathbf{x}_{o} = -\omega/2Q$$
$$\mathbf{x}^{\pm} = -\omega/2Q \pm \omega/2Q \left[1 - \frac{16\Omega^{2} Q^{2}}{\omega^{2}}\right]^{1/2}$$
(III.32)





a. régime oscillatoire : w/Q = 0.2 Ω

b. régime surcritique : ω/Q = 5 Ω

L'unité de temps est égale à $2/\Omega$

On a donc à distinguer deux régimes, suivant le signe de 1 - $16\Omega^2 Q^2 / \omega^2$.

a. Régime oscillant

Si la condition

 $\frac{\omega}{Q} < 4\Omega \tag{III.33}$

est remplie, x^{\pm} contiennent des parties imaginaires de l'ordre de 2 Ω . Les populations des états $|1\rangle$, $|2\rangle$ et $|3\rangle$ contiennent donc des termes oscillants à ces fréquences, ces oscillations étant amorties avec une constante de temps 2Q/ ω . La probabilité de trouver l'atome dans le niveau excité $P_e(t) = \rho_1$ est représentée, en fonction du temps, sur la figure 4-a dans le cas $\omega/Q = 0.2 \Omega$. On observe en fait les oscillations quantiques entre les deux états couplés $|e|0\rangle$ et $|g|1\rangle$. L'interprétation physique de ces oscillations est très simple : la condition (III.33) signifie en fait que le photon émis par l'atome est stocké dans la cavité assez longtemps pour pouvoir être réabsorbé, puis réémis. Bien sûr, l'excitation de la cavité, et donc la probabilité de réabsorber le photon émis, décroît avec une constante de temps 2Q/ ω . Ce régime est donc une auto-nutation de Rabi dans le champ d'un seul photon émis par l'atome lui-même.

b. Régime surcritique monotone

Si, au contraire, l'amortissement de la cavité est fort, c'està-dire si :

 $\frac{\omega}{Q} > 4\Omega \tag{III.34}$

 x_o et x^{\pm} sont réelles. La population de l'état $|1\rangle$ diminue alors de façon monotone. La constante de temps de cette décroissance est essentiellement déterminée par la valeur propre de plus petit module x^{\pm} : si $|x^{\pm}| << |x_o|$, $|x^{\pm}|$, c'est-à-dire si $\frac{\omega}{Q} >> 4\Omega$, la décroissance est exponentielle. On peut alors définir un taux d'émission spontanée dans la cavité :

$$\Gamma^{cav} = x^{+} \cong 4\Omega^{2} \frac{Q}{\omega} = \frac{2d^{2}}{\varepsilon_{o}} \frac{Q}{\mathcal{V}} \qquad (III.35)$$

La décroissance exponentielle de la probabilité $P_e(t)$ est représentée sur la figure 4-b dans le cas $\omega/Q = 5\Omega$.

Comparons Γ^{cav} au taux d'émission spontanée dans l'espace libre sur la même transition :

$$\Gamma_{o} = \frac{d^{2} \omega^{3}}{3\pi \varepsilon_{o} \varkappa c^{3}}$$
(III.36)

On peut écrire :

$$\Gamma^{cav} = \eta_{cav} \Gamma_{o}$$
 (III.37)

avec

$$\eta_{cav} = \frac{3}{4\pi^2} \frac{Q\lambda^3}{V}$$
(III.38)

Le taux d'émission spontanée dans la cavité est donc plus grand que celui dans l'espace libre d'un facteur η_{cav} dont l'ordre de grandeur est, si $\mathcal{V}_{-}^{*} \sim \lambda^{3}$, le facteur de qualité de la cavité.

Cet effet d'accélération de l'émission spontanée dans un résonateur avait été prévu théoriquement par Purcell, dès 1946 (¹¹), à propos de la résonance magnétique nucléaire. C'était toutefois à l'époque une pure curiosité théorique, impossible à mettre en évidence expérimentalement. Nous décrirons dans le paragraphe 3 une expérience où les états de Rydberg ont permis d'observer cet effet.

L'argument développé par Purcell (¹¹) était quelque peu différent de celui que nous venons de présenter; nous allons donc le rappeler brièvement. Nous avons en fait décrit ici l'émission spontanée comme un processus de relaxation indirect : l'atome n'est pas couplé <u>directement</u> à un continuum de modes, comme dans le cas de l'émission spontanée dans l'espace libre. Il est en fait couplé <u>indirectement</u> au réservoir du champ par l'intermédiaire de son couplage avec le mode discret de la cavité. Nous aurions aussi bien pu décrire le mode de la cavité comme une superposition de modes couvrant une bande de fréquence de largeur ω/Q . Dans ce point de vue, l'atome apparaît comme directement couplé à un continuum de largeur ω/Q . La condition (III.34) indique que la largeur de ce continuum est grande devant l'inverse des temps caractéristiques d'évolution atomique (Ω). On se trouve donc dans le cadre de l'approximation de Wigner-Weisskopf et le taux d'amortissement de l'énergie atomique est donné par la règle d'or de Fermi.

La densité spectrale d'une distribution lorentzienne de largeur ω/Q étant $\frac{2}{\pi} \frac{Q}{\omega}$, le taux de transfert de |e > vers |g > est:

$$\Gamma^{cav} = \frac{2\pi}{M} \quad \Omega^2 \quad \frac{2}{\pi} \quad \frac{Q}{\omega} \qquad (III.39)$$

Cette valeur coincide effectivement avec celle donnée par l'équation (III.35). L'accélération de l'émission spontanée apparaît donc comme la conséquence de l'augmentation de la densité spectrale volumique de modes du champ qui vaut, dans la cavité accordée, $\frac{2}{\pi} \frac{Q}{\omega} \frac{1}{\mathcal{V}}$, alors qu'elle n'est que de $\frac{\omega^2}{3\pi^2}$ dans l'espace libre.

Si au contraire $\omega/Q \ll \Omega$, la règle d'or de Fermi ne s'applique plus et on retrouve en fait dans ce modèle un régime d'oscillations de Rabi. La transition entre ces deux régimes a été discutée en détail dans (⁸⁹).

On peut donner aussi une interprétation physique très simple de cette accélération de l'émission spontanée en termes d'images électriques. On peut modéliser l'influence des miroirs de la cavité sur l'évolution atomique en les remplaçant par les Q images du dipôle atomique dans ceux-ci (si \mathcal{V} est de l'ordre de λ^3). Si la cavité est résonnante à la fréquence atomique, tous ces dipôles sont en phase avec le dipôle atomique. On est alors en présence d'un système de Q antennes alignées en phase. Le champ électrique au niveau d'une de ces antennes est Q fois plus grand que si elle était isolée. L'atome rayonne donc son énergie Q fois plus vite que dans l'espace libre. On retrouve bien l'ordre de grandeur du facteur d'accélération n_{cav} , dans le cas $\mathcal{V} \sim \lambda^3$. Si le volume de la cavité est beaucoup plus grand que λ^3 , il intervient un autre facteur, d'origine géométrique, proportionnel à l'angle solide d 'émission de ce système de Q antennes



Figure 5Niveaux d'énergie de l'atome habillé (états
propres du hamiltonien total $H_A + H_F + H_{AF}$)
à résonance ($\omega = \omega_0$).

alignées. Ceci explique que le facteur η_{cav} soit, dans ce cas, plus petit que Q dans un facteur de l'ordre de λ^3/\mathcal{V} , proportionnel donc à $\frac{\lambda^2}{w_0^2}$.

2) L'émission spontanée dans le formalisme de l'atome habillé

Plutôt que d'analyser l'évolution du système dans la base "découplée" des états $|e, n \rangle$ et $|g, n \rangle$, nous pouvons utiliser la base des états propres du hamiltonien total $H_A + H_F + H_{AF}$. Cette démarche consiste à adopter le point de vue bien connu de l'atome habillé qui a déjà montré son efficacité dans de nombreux problèmes sur le couplage matière rayonnement (⁹⁰)(⁹¹)(⁹²)(⁹³). Nous verrons dans ce paragraphe que ce formalisme nous permettra de retrouver très simplement les résultats du paragraphe précédent dans le cas de l'émission spontanée oscillante. Nous aurons aussi à l'utiliser dans les paragraphes III.C. et III.D.

Le diagramme d'énergie du hamiltonien total $H_A + H_F + H_{AF}$, représenté sur la figure 5, consiste en un état fondamental $|g|0\rangle$ et une série de groupes de deux niveaux, ces groupes étant séparés par l'énergie du photon $M\omega$. Les deux états de l'atome habillé de la n^{ième} multiplicité sont des combinaisons linéaires de $|e, n \rangle$ et de $|g, n-1 \rangle$ (qui ont la même énergie, à résonance, en l'absence de couplage) :

$$\frac{|+n\rangle}{|-n\rangle} = \cos \phi_n |e, n\rangle + \sin \phi_n |g, n+1\rangle$$

$$\frac{|-n\rangle}{|-n\rangle} = -\sin \phi_n |e, n\rangle + \cos \phi_n |g, n+1\rangle$$

$$(III.40)$$

÷.

l'angle ϕ_n étant défini par :

$$tg 2\phi_n = \frac{2\Omega \sqrt{n+1}}{\omega_0 - \omega}$$
(III.41)

et valant $\pi/4$ à résonance.

L'écart d'énergie entre les niveaux $|+n\rangle$ et $|-n\rangle$ vaut, en unités de pulsation :

$$\overline{\omega_{o}}(n) = \left[4\Omega^{2} (n+1) + (\omega_{o} - \omega)^{2} \right]^{1/2}$$
 (III.42)

ce qui se réduit, à résonance, à :

$$\overline{\omega}(n) = 2\Omega \sqrt{n+1}$$
 (III.43)

 $(\overline{\omega_{O}}(n))$ est donc proportionnel à la fréquence de Rabi du système atomique dans le champ de n photons).

Bien entendu, ces états ne sont d'utilisation commode que si Ω et le désaccord ω_{O} - ω sont petits devant la fréquence de transition, ce qui est bien le cas dans les expériences que nous décrivons ici.

A l'instant initial t = 0, le système est préparé dans l'état |e, 0 > qui est une combinaison linéaire des états <math>|+0 > et |-0 >. Cette superposition contient des termes oscillants à la fréquence de Bohr entre les deux états de l'atome habillé, 2Ω . La population atomique doit alors être modulée elle aussi à cette fréquence.

L'émission spontanée oscillante apparaît alors comme un phénomène de <u>battements quantiques</u> entre niveaux de l'atome habillé (⁹⁴)(⁹⁵).

Pour obtenir une description plus quantitative de l'évolution, nous développerons l'équation pilote (III.28) sur la base des états $|\frac{1}{2} 0 >$ et |g 0 >. On obtient alors un système d'équations différentielles linéaires qui s'écrit, à résonance ($\omega = \omega_0$) :

$$\frac{d\rho_{\pm,0,\pm,0}}{dt} = -\frac{\omega}{2Q} \rho_{\pm,0,\pm,0} - \frac{\omega}{4Q} \left[\rho_{\pm,0,\pm,0} + \rho_{\pm,0,\pm,0} \right]$$

$$\frac{d\rho_{\pm,0,\pm,0}}{dt} = -\frac{\omega}{2Q} \rho_{\pm,0,\pm,0} - \frac{\omega}{4Q} \left[\rho_{\pm,0,\pm,0} + \rho_{\pm,0,\pm,0} \right] \quad (III.44)$$

$$\frac{d\rho_{\pm,0,\pm,0}}{dt} = -2i\Omega \rho_{\pm,0,\pm,0} - \frac{\omega}{2Q} \rho_{\pm,0,\pm,0} - \frac{\omega}{4Q} \left[\rho_{\pm,0,\pm,0} + \rho_{\pm,0,\pm,0} + \rho_{\pm,0,\pm,0} \right]$$

 $\rho_{g0 g0}$ étant évidemment donné par $\rho_{g0, g0} = 1 - \rho_{+0, +0} - \rho_{-0, -0}$

On pourrait bien entendu résoudre ce système différentiel comme nous le fimes pour le système (III.30) et retrouver les résultats du paragraphe précédent. Il est en fait beaucoup plus intéressant de remarquer que, si la condition (III.33) d'apparition du régime d'émission spontanée oscillante est remplie, on peut approcher ce système par une équation beaucoup plus simple.

En effet, les fréquences d'évolution typiques des populations sont nulles alors que celle de la cohérence ρ_{+0} , $\frac{1}{-0}$ est de l'ordre de Ω . Si $\frac{\omega}{Q} << \Omega$, ces quantités évoluent donc avec des constantes de temps très différentes. On peut alors faire une <u>approximation séculaire</u> en négligeant le couplage entre populations et cohérences. Le système (III.44) se simplifie alors considérablement et se réduit à :

$$\frac{d}{dt} \rho_{\overline{\epsilon}0}, \overline{\epsilon_0} = -\frac{\omega}{2Q} \rho_{\overline{\epsilon} 0, \overline{\epsilon} 0}$$

$$(III.45)$$

$$\frac{d}{dt} \rho_{+0}, -0 = -(2i\Omega + \frac{\omega}{Q}) \rho_{+0}, -0$$

$$(\epsilon = +ou -)$$

ce qui conduit immédiatement à la solution :

$$\rho_{\overline{\varepsilon} 0, \overline{\varepsilon} 0}(t) = e^{-(\omega/2Q)t} \rho_{\overline{\varepsilon} 0, \overline{\varepsilon} 0}(0)$$

$$\rho_{\overline{\varepsilon} 0, \overline{\varepsilon} 0}(t) = e^{-2i\Omega t} e^{-(\omega/2Q)t} \rho_{\overline{\varepsilon} 0, \overline{\varepsilon} 0}(0)$$
(III.46)

L'état initial |e, 0 > correspond aux conditions initiales :

$$\rho_{+0}$$
, $\frac{1}{+0}(0) = \rho_{-0}$, $\frac{1}{-0}(0) = \frac{1}{2}$, ρ_{+0} , $\frac{1}{-0}(0) = -1/2$ (III.47)

On peut donc calculer toutes les quantités physiques et, en particulier, la probabilité P_a(t) de trouver l'atome excité à l'instant t :

$$P_{e}(t) = |\langle e0|+0 \rangle|^{2} \rho_{+0}, +0 + |\langle e0|-0 \rangle|^{2} \rho_{-0}, -0 + 2 \mathcal{R}_{e} \left[\langle \overline{e0}|+0 \rangle \rho_{+0}, -0 \langle \overline{-0}|\overline{e0} \rangle \right]$$
(III.48)

qui peut s'écrire :

$$P_{e}(t) = \frac{1}{2} e^{-(\omega/2Q)t} \left[1 + \cos 2\Omega t\right]$$
(III.49)

On retrouve donc facilement les oscillations amorties de l'excitation atomique décrites dans le paragraphe précédent.

Ce petit calcul illustre bien l'intérêt du formalisme de l'atome habillé pour notre problème quand on peut faire l'approximation séculaire qui consiste à découpler les équations d'évolution des populations et des cohérences (⁹³). Cet intérêt apparaîtra encore plus clairement dans le paragraphe III.C, quand nous examinerons le comportement d'un atome dans un champ thermique.

3) Observation de l'accélération de l'émission spontanée dans une cavité résonnante

Nous avons pu observer, pour la première fois, le régime monotone de l'émission spontanée dans une cavité résonnante (dans laquelle la condition $\omega/Q \gg \Omega$ est remplie). Le principe de cette expérience (¹²) consiste simplement à préparer environ un atome à chaque impulsion laser dans le niveau $|e \rangle = 23S_{1/2}$ dans un ventre de champ à l'intérieur de la structure d'onde stationnaire du mode de la cavité. On observe alors le transfert de population vers le niveau $|g \rangle = 22P_{1/2}$ pendant le temps d'interaction Δt avec le mode de la cavité. La fréquence de la transition $|e \rangle \neq |g \rangle$ est de 340 GHz (nous verrons plus loin l'intérêt de travailler à une fréquence aussi élevée). La proportion d'atomes transférés vers le niveau $|g \rangle$ par émission spontanée dans la cavité pendant le temps Δt est, d'après les résultats du paragraphe III.B.1.b :

 $\alpha_{e \to g} = \begin{pmatrix} -\Gamma^{cav} \Delta t \\ 1 - e \end{pmatrix} \cong \Gamma^{cav} \Delta t \quad \text{si } \alpha_{eg} << 1 \quad (\text{III.50})$

Si la cavité n'est pas résonnante, l'émission spontanée sur la transition $|e \rangle \rightarrow |g \rangle$ ne peut se produire que dans les modes transverses et



Figure 6 :Signaux d'ionisation par champ moyennés sur 200 impulsions
laser (traits pleins : cavité à résonance sur la transition $23S_{\frac{1}{2}} \rightarrow 22P_{\frac{1}{2}}$; pointillés : cavité hors résonance). Le
nombre moyen d'atomes excités est de 3.5, 2 et 1.3 pour
les courbes a) b) et c) respectivement.

reste tout à fait négligeable pendant le temps Δt (Γ_{o} $\Delta t << 1$). On peut donc mettre en évidence le transfert dû à la résonance de la cavité en comparant les formes dessignaux d'ionisation pour une cavité résonnante et non résonnante. La condition de résonance de la cavité est en fait modifiée après chaque impulsion laser au moyen de la technique de l'électrode de trempe (le champ F₂(t) étant appliqué pendant une dizaine de µs immédiatement après une impulsion laser sur deux).

Le taux d'émission spontanée dans l'espace libre étant, sur la transition $|e \rangle \rightarrow |g \rangle$, $\Gamma_{0} \cong 150 \text{ s}^{-1}$, le transfert par émission spontanée pendant le temps $\Delta t = 3 \ \mu s$ n'est observable que si le facteur d'accélération de l'émission spontanée η_{cav} est de l'ordre de 500 ce qui correspond à un facteur de qualité de l'ordre de 10⁶. Afin d'obtenir une valeur aussi élevée de Q, il a été nécessaire d'employer des miroirs supraconducteurs (Niobium à 6 K) ayant fait l'objet d'un traitement de surface très soigné. Une description détaillée de l'appareil expérimental -aspect cryogénique en particulier- et de la préparation des miroirs est présentée dans l'appendice 2. Le refroidissement de l'environnement de la cavité à des températures cryogéniques présente aussi l'avantage important de supprimer pratiquement les transferts induits par le rayonnement du corps noir. Le taux de transfert induit par ce rayonnement est en effet, comme nous le verrons dans le paragraphe suivant, Γ^{cav} n (n nombre moyen de photons thermiques par mode). A T = 6 K et ω = 2 π × 340 GHz, \overline{n} = 5 10⁻² et donc $\Gamma^{cav} \overline{n} \Delta t \ll \Gamma^{cav} \Delta t$. Cet aspect de l'expérience justifie l'utilisation d'une transition de fréquence élevée. Pour obtenir une thermalisation du mode de la cavité à cette température, nous avons entouré la cavité d'écrans thermiques recouverts d'un absorbant micro-onde (voir appendice 2).

La figure 6 présente les signaux d'ionisation par champ moyennés sur 200 impulsions laser avec une cavité résonnante (lignes continues) et avec une cavité hors résonance (lignes pointillées). Le nombre moyen d'atomes excités par chaque impulsion laser est de 3.5, 2 et 1.3 dans les signaux a), b) et c) respectivement.

Le changement de forme du signal d'ionisation quand la cavité est résonnante révèle un transfert vers le niveau $|g \rangle = 22P_{1/2}$ qui, rappe-

lons-le, s'ionise dans la rampe de champ électrique F₁(t) un peu plus tard que le niveau $|e\rangle = 23S_{1/2}$. Une analyse quantitative détaillée des signaux de la figure 6 donne, pour la trace c), un taux de transfert α_{eg} de l'ordre de 15%. Ce taux correspond, d'après (III.50), à un taux d'émission spontanée dans la cavité $\Gamma_{cav} \cong 8 \ 10^4 \ s^{-1}$, c'est-à-dire à $\eta_{cav} \cong 530$. La valeur du facteur de qualité de la cavité que l'on déduit de ces chiffres, $Q \sim 7 \ 10^5$, est compatible avec la valeur maximale attendue théoriquement (⁹⁶) - $Q \sim 10^6 - 10^7$.

Bien sûr, l'excitation d'un jet atomique relativement intense par un faisceau laser très atténué conduit à une statistique de Poisson pour le nombre d'atomes excités par chaque impulsion. Dans le cas du signal c) par exemple où la valeur moyenne de cette distribution est de 1.3, la probabilité d'exciter simultanément 2, 3 ou 4 atomes dans la cavité est de l'ordre de 30%. Cependant, le taux de transfert $\alpha_{e \to q}$ étant faible (15%), la probabilité que plus d'un photon soit émis dans une réalisation de l'expérience est extrêmement faible. Les corrélations entre dipôles atomiques qui naissent du couplage à un champ commun restent donc négligeables pendant la durée de l'expérience tant que le nombre d'atomes est plus petit que 5 ou 6. Les effets collectifs, que nous discuterons dans le chapitre IV, ne peuvent donc se produire. Nous testons donc bien ici les propriétés radiatives d'un atome de Rydberg isolé.

Il est important de remarquer que, malgré la forte valeur du coefficient de qualité obtenue ici, la condition (III.34) d'observation du régime surcritique est encore largement remplie : le temps d'amortissement de l'énergie électromagnétique dans la cavité Q/ω est de 0.35 µs, alors que la période des oscillations de Rabi dans le champ d'un seul photon est $2\pi/\Omega = 123$ µs. Nous sommes donc encore bien loin des conditions d'observation du régime oscillant de l'émission spontanée. Pour observer ce régime, il faudrait en fait atteindre des valeurs de Q de l'ordre de 10^7 à 10^8 . Ceci est a priori possible en refroidissant les miroirs à une température de l'ordre de 2 K, mais il se pose alors des problèmes dramatiques de stabilité mécanique de la cavité (pour Q $\sim 10^7$, un déplacement relatif des miroirs de 20 Å est suffisant pour sortir de la résonance). Des techniques d'asservissement de la longueur de la cavité, par exemple par référence à une cavité optique, pourraient être employés. Il faudra bien sûr faire en sorte aussi

que le temps de transit Δ t des atomes dans la cavité soit de l'ordre de 100 µs. Avec la géométrie actuelle, il nous faudrait donc utiliser des atomes lents (v \sim v_{th}/30). Nous considérons actuellement la possibilité d'appliquer à cette expérience la technique du ralentissement des jets atomiques par laser (⁹⁷).

Les autres laboratoires qui cherchent aussi à observer le régime oscillant de l'émission spontanée (98)(99) ont une approche un peu différente de ces problèmes. Ils utilisent en effet des cavités closes travaillant dans le mode fondamental à relativement basse fréquence (^ 20 à 30 GHz) et des atomes de Rydberg de nombre quantique principal élevé (n ∿ 50). Avec de telles cavités supraconductrices (Niobium), on peut obtenir aisément des facteurs de qualité de l'ordre de 10⁸. La stabilité mécanique de ces cavités est très satisfaisante et le temps de transit des atomes à travers le mode est, à la vitesse thermique, de l'ordre de quelques dizaines de microsecondes. Ces cavités présentent cependant, par rapport aux cavités ouvertes, un inconvénient important : elles sont construites pour une fréquence donnée et ne sont pratiquement pas accordables. Cette fréquence étant assez basse, les effets induits par le rayonnement thermique à l'intérieur de la cavité doivent jouer un rôle important. En effet, à 20 GHz et T = 2 K -qui est à peu près la température limite atteinte avec un appareillage cryogénique simple- le nombre moyen de photons thermiques n est de l'ordre de 1.5. Il est donc important d'analyser l'effet de ce rayonnement sur l'émission spontanée oscillante.

C) Atome de Rydberg unique en interaction avec le rayonnement thermique dans une cavité résonnante : nutation de Rabi dans un champ incohérent

Si un champ thermique est présent dans la cavité, l'évolution du système est décrite, dans le point de vue de Schrödinger, par l'équation pilote (III.28) avec $n \neq 0$. Cette équation, de structure assez compliquée, peut bien sûr être résolue <u>numériquement</u> pour n'importe quelle valeur de Ω , ω/Q et T. Ces calculs ne présentent aucune difficulté de principe. Nous nous attacherons plutôt dans ce paragraphe à décrire des cas limites où un certain nombre d'approximations conduisent à des expressions analytiques et à des interprétations physiques simples pour le comportement du système.

Si la condition (III.34) d'observation du régime surcritique de l'émission spontanée est largement remplie, il est possible d'écrire une équation pilote pour le <u>système atomique seul</u>. Le champ est en effet dans ce cas beaucoup plus fortement couplé au réservoir qu'à l'atome et son équilibre thermique n'est pas sensiblement modifié par l'émission d'un photon, immédiatement absorbé dans les miroirs.

Dans ce régime, les taux de transfert induits par le rayonnement thermique s'ajoutent à ceux dus à l'émission spontanée et les populations ρ_{ee} et ρ_{gg} des niveaux $|e \rangle$ et $|g \rangle$ obéissent, à une très bonne approximation, à l'équation de bilan détaillé :

$$\frac{d\rho_{ee}}{dt} = -\Gamma^{cav} (\overline{n} + 1) \rho_{ee} + \Gamma^{cav} \overline{n} \rho_{gg}$$

$$\frac{d\rho_{gg}}{dt} = -\Gamma^{cav} \overline{n} \rho_{gg} + \Gamma^{cav} (\overline{n}+1) \rho_{ee}$$
(III.51)

dont l'interprétation physique est évidente. Avec la condition initiale $\rho_{ee} = 1$, $\rho_{qg} = 0$, on obtient immédiatement :

$$\rho_{gg} = 1 - \rho_{ee} = \frac{\overline{n+1}}{2\overline{n+1}} \left(1 - e^{-\Gamma^{Cav}(2\overline{n+1})t} \right)$$
(III.52)

Le système relaxe donc avec une constante de temps $(\Gamma^{\text{Cav}}(2n+1))^{-1}$ vers un état d'équilibre défini par $\rho_{ee}/\rho_{gg} = n / (n+1)$ (état d'équilibre d'un système à deux niveaux à la température T). Remarquons pour conclure que les transferts liés au rayonnement thermique sont accélérés dans la cavité de la même manière que l'émission spontanée (facteur η_{cav} par rapport aux taux de transfert dans l'espace libre $\Gamma(n)$.

Si la condition (III.33) d'observation de l'émission spontanée oscillante est remplie, les corrélations entre le champ et l'atome jouent un rôle important et il n'est plus possible d'écrire une équation pilote pour le système atomique seul. Pour dégager des idées physiques simples, nous nous placerons d'abord dans le cas limite d'une cavité sans amortissement ($\omega/Q = 0$), l'atome étant supposé initialement excité. Le formalisme de l'atome habillé (voir § III.B.2) va nous permettre d'obtenir une expression simple pour la probabilité P_e(t) de trouver l'atome excité à l'instant t. En effet, dans une cavité sans relaxation, les populations et les cohérences d'une multiplicité donnée des états de l'atome habillé évoluent indépendamment de celles des autres multiplicités (les multiplicités adjacentes ne sont couplées que par des termes de relaxation ne conservant pas l'énergie du champ).

Nous obtenons donc immédiatement :

$$\rho_{+n, +n}(t) + \rho_{-n, -n}(t) = \rho_{+n, +n}(0) + \rho_{-n, -n}(0) \quad (\text{III.53})$$
(conservation de la population totale de la n^{ième} multiplicité) et :
$$-2i\Omega \sqrt{n+1} t$$

$$\rho_{+n, -n}(t) = \rho_{+n, -n}(0) e^{2100 \sqrt{n+1}t}$$
 (III.54)

La matrice densité initiale est le produit tensoriel de |e> < e| par ρ_{Feq} , matrice densité du champ à l'équilibre thermique :

$$< n \left| \rho_{\text{Feq}} \right| n' > = (1 - \beta) \beta^n \delta_{nn'}$$
 (III.55)

En utilisant l'expression (III.40) des états de l'atome habillé en fonction de ceux de la base découplée, on trouve :

$$\rho_{+n,-n}(0) + \rho_{-n,-n}(0) = (1 - \beta) \beta^n$$
 (III.56)

et

$$\rho_{+n} = -\frac{1}{2} (1 - \beta) \beta^n$$
 (III.57)

La probabilité $P_{c}(t)$ est égale à :

$$P_{e}(t) = \Sigma \qquad \Sigma < e \ n \ \overline{\epsilon n} > \rho_{\overline{\epsilon n}, \overline{\epsilon' n}} < \overline{\epsilon' n} \ | e \ 0 >$$
(III.58)
$$n \ \varepsilon, \varepsilon'$$

 $(\varepsilon, \varepsilon' = \pm).$
Nous obtenons donc finalement :

$$P_{e}(t) = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 + \sum \beta^{n} (1 - \beta) \cos 2\Omega \sqrt{n + 1} t \end{bmatrix}$$
(III.59)
ou encore $\left(\beta = \frac{\overline{n}}{1 + \overline{n}}\right)$:
$$P_{e}(t) = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 + \sum \frac{\overline{n}^{n}}{(1 + \overline{n})^{n+1}} \cos 2\Omega \sqrt{n+1} t \end{bmatrix}$$
(III.60)

(Cette expression a déjà été obtenue dans les références (14 - 16)) .

L'interprétation physique de ce résultat est très simple : P_e(t) est la somme de signaux de nutation de Rabi dans le champ de n photons (cos 2 Ω $\sqrt{n+1}$ t), pondérés par la probabilité d'avoir n photons dans le champ thermique $\frac{\overline{n}^n}{(1+\overline{n})^{n+1}}$. La fonction P_e(t), étudiée en détail dans la réfé-

rence (¹⁶), présente un comportement oscillatoire chaotique, dont la forme ne dépend que de la température.

Si maintenant nous voulons tenir compte de la relaxation de la cavité, la structure de l'équation pilote est beaucoup plus compliquée. Les termes de relaxation couplent en effet les populations et les cohérences de multiplicités adjacentes. Il est cependant possible, au prix de quelques approximations, d'obtenir une expression analytique de $P_e(t)$ (⁷⁹). Ce calcul, instructif mais quelque peu fastidieux, a été reporté dans l'appendice 3 et nous n'en rappellerons que le résultat :

$$P_{e}(t) = \frac{\overline{n}}{1+2\overline{n}} + \frac{1}{2} \frac{1}{1+2\overline{n}} e^{-(\omega/2Q)} \left(\frac{1+2\overline{n}}{1+\overline{n}}\right) t$$

+ $\frac{1}{2} \sum_{n} \frac{\overline{n}^{n}}{(\overline{n+1})^{n+1}} \cos (2\Omega \sqrt{n+1} t) e^{-(\omega/Q)} \left[\left(n+\frac{1}{2}\right) + \frac{\overline{n}}{1+\overline{n}} \left(n+\frac{3}{2}\right) \right] t$
(III.61)

Cette expression, quelque peu compliquée, apparaît encore comme une somme pondérée de signaux de nutation de Rabi amortis avec des constantes de temps proportionnelles à ω/Q . L'expression (III.61) n'est pas, bien



Figure 7 : Emission spontanée dans une cavité faiblement amortie en présence d'un champ thermique $(\omega/Q = 0.4 \ \Omega, \ \overline{n} = 0, \ 0.25, 1, 4).$

sûr, une expression exacte : elle repose sur l'approximation $\omega/Q << \Omega$, ainsi que sur plusieurs autres décrites dans l'appendice 3. Cependant, les valeurs de P_e(t) calculées à partir de (III.61) sont en très bon accord avec les résultats d'intégration numérique directe de l'équation pilote (III.28), au moins tant que le nombre moyen de photons thermiques n'est pas très grand devant 1.

La figure 7 représente la fonction P_e(t) donnée par (III.61) pour différentes valeurs de la température ($\overline{n} = 0$, 0.25, 1 et 4), dans le cas $\Omega = 2.5 \text{ }\omega/\text{Q}$. Pour les faibles valeurs de la température, l'émission spontanée oscillante de l'atome dans la cavité est clairement observable. En revanche, dès que $\overline{n} \sim 1$, les précessions de Rabi correspondant à des nombres différents de photons thermiques interfèrent destructivement : le système évolue de façon monotone vers un état d'équilibre, défini par $P_e(\infty) = \frac{\overline{n}}{2n+1}$ ($P_e(\infty)$ tend vers 1/2 pour $\overline{n} \neq \infty$).

Cet effet de disparition de l'auto-nutation de Rabi met une limite stricte à la température acceptable dans une expérience destinée à observer l'émission spontanée oscillante : on doit réaliser $n \leq 1$.

Cette condition est beaucoup plus facilement remplie sur une transition de haute fréquence.

La discussion de l'interaction avec un champ thermique que nous avons conduite ici dans le cadre du point de vue de Schrödinger peut, bien sûr,être reprise sans difficultés particulières dans le point de vue de Heisenberg (¹⁰⁰).

D) Atome unique soumis à un champ cohérent dans une cavité

La dernière situation physique que nous considérerons dans ce chapitre est le cas d'un atome de Rydberg unique interagissant avec un champ cohérent dans la cavité. Il est bien connu que, dans un tel champ, le nombre de photons obéit à une distribution de Poisson. Comme dans le cas du para-

graphe précédent, la dispersion du nombre de photons autour de sa valeur moyenne doit conduire à une disparition progressive des oscillations de Rabi. Cet effet a déjà été étudié par de nombreux auteurs $({}^{17} - {}^{19})$ et nous ne le discuterons ici que brièvement. Nous évoquerons également un effet curieux de réapparition des oscillations de Rabi aux temps très longs, intimement lié à la <u>structure quantique du champ</u>. Cet effet, prédit théoriquement depuis quelque temps $({}^{18})({}^{19})$, n'a jamais été observé. Les états de Rydberg sont certainement des candidats très prometteurs pour la mise en évidence de ce phénomène. Nous conclurons ce paragraphe par une brève description des expériences que nous avons réalisées sur les oscillations de Rabi, sur des transitions à un et deux photons.

1) Nutation de Rabi dans un champ cohérent contenu dans une cavité sans relaxation

Nous considérons dans ce paragraphe un atome, initialement préparé dans le niveau <u>inférieur</u> $|g\rangle$ de la transition résonnante avec une cavité idéale ($\omega/Q = 0$). Les processus de relaxation du champ seront donc complètement négligés. Nous supposerons de plus que la cavité est initialement remplie d'un champ cohérent. Celui-ci est décrit par un état cohérent de Glauber (¹⁰¹) :

$$|\alpha \rangle = \sum_{n} p(n) |n \rangle$$
 (III.62)

avec

$$p(n) = e^{-n_0/2} \frac{n_0^{n/2}}{\sqrt{n!}}$$
 (III.63)

n est le nombre moyen de photons dans le champ cohérent décrit par $|\alpha >$. Nous ne nous restreindrons pas dans ce paragraphe au cas où le champ est strictement résonnant avec la fréquence atomique.

Comme nous négligeons les processus de relaxation, le calcul de $P_e(t)$ (probabilité de trouver l'atome excité à l'instant t) est très voisin de celui qui est présenté dans le paragraphe précédent. Nous ne le reproduirons donc pas. On trouve :

$$p_{e}(t) = \sum_{n} |p(n)|^{2} \frac{\Omega \sqrt{n+1}}{\omega(n)} - \sum_{n} |p(n)|^{2} \frac{\Omega \sqrt{n+1}}{\omega(n)} \cos \overline{\omega}(n) t \quad (III.64)$$

où $\overline{\omega}$ (n), écart d'énergie entre les deux niveaux de l'atome habillé de la n^{ième} multiplicité, est donné par (III.42).

A résonance ($\omega = \omega_0$), P_e(t) se réduit à

$$P_{e}(t) = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 - \Sigma & |p(n)|^{2} \cos 2\Omega & \sqrt{n+1} t \end{bmatrix}$$
 (III.65)

L'interprétation physique de ce résultat est la même que dans le cas du champ thermique : $P_e(t)$ est la somme de signaux de précession de Rabi correspondant au champ de n photons, pondérés par la probabilité $|p(n)|^2$ d'avoir n photons dans le champ cohérent. La fréquence moyenne d'évolution de $P_e(t)$ est $\Omega \sqrt{n_o}$.

Comme la dispersion relative du nombre de photons dans un état cohérent est de l'ordre de $1/\sqrt{n_o}$, les oscillations de Rabi doivent disparaître par interférence destructive entre les composantes de différentes fréquences en un temps de l'ordre de :

t_{brouillage}
$$\cong \frac{1}{\Omega \sqrt{n_o}} \sqrt{n_o} \cong \frac{1}{\Omega}$$
 (III.66)

On peut préciser quantitativement ce résultat. Développons la fonction $\sqrt{n+1}$ apparaissant dans (III.65) autour de sa valeur moyenne $\sqrt{n-1}$:

$$\sqrt{n+1} = \sqrt{n+1} + \frac{1}{2\sqrt{n+1}} (n - n)$$

$$\begin{split} & P_{e}(t) \text{ s'écrit alors :} \\ & P_{e}(t) = \frac{1}{4} \left[1 - e^{-n_{0}} e^{2i\Omega \sqrt{n_{0}+1}} e^{-i\Omega n_{0}t/\sqrt{n_{0}+1}} \exp\left\{ -n_{0} e^{i\frac{\Omega t}{\sqrt{n_{0}+1}}} \right\} \right] + \text{c.c.} \end{split}$$

Aux temps courts, $\frac{\Omega t}{\sqrt{n} + 1}$ est petit et nous pouvons dévelopi $\Omega t / \sqrt{n} + 1$ en puissances de cette quantité : $1 + \frac{i\Omega t}{\sqrt{n} + 1} - \frac{\Omega^2 t^2}{2(n_0 + 1)}$.



Figure 8 : Signal de précession de Rabi dans un champ cohérent faible $(n_o = 30, 0 < t < 50/\Omega)$. L'atome est initialement dans l'état fondamental.

 $P_{r}(t)$ s'écrit finalement :

$$P_{e}(t) = \frac{1}{2} \left[1 - \cos(2\Omega \sqrt{n_{o}+1}) \exp\left\{ - \frac{\Omega^{2} t^{2} n_{o}}{2(n_{o}+1)} \right\} \right]$$
(III.67)

L'amplitude de l'oscillation de Rabi obéit donc à une loi gaussienne et devient négligeable pour t > t brouillage, avec :

$$t_{\text{brouillage}} = \frac{\sqrt{2}}{\Omega} \sqrt{1 + \frac{1}{n_o}}$$
(III.68)

une valeur très proche de celle que nous avions obtenue plus haut par des arguments qualitatifs. Le nombre total d'oscillations observables avant le brouillage est donc de l'ordre de \sqrt{n} .

Bien entendu, l'expression (III.67) n'est utilisable que pour les temps courts tels que :

t <<
$$\frac{\sqrt{n_0+1}}{\Omega}$$

Un examen plus attentif de l'équation (III.65) (¹⁸) montre en fait que les oscillations de P_e(t) réapparaissent après un temps de l'ordre de :

$$t_{réapp.} \cong \frac{2\pi}{\Omega} \sqrt{n_o}$$
 (III.69)

c'est-à-dire après n_o périodes. Ces oscillations disparaissent à nouveau pour un temps de l'ordre de t_{brouillage} + t_{réapp}... P_e(t) est donc en fait constitué de bouffées quasi-périodiques d'oscillations de Rabi, séparées par un intervalle de temps de l'ordre de t_{brouillage} + t_{réapp}. En fait, pour des temps très longs, d'autant plus longs que n_o est plus grand, les bouffées successives commencent à se recouvrir (¹⁸), l'amplitude des oscillations de Rabi devenant alors chaotique (¹⁹).

La figure 8 présente la fonction $P_e(t)$ calculée dans le cas $n_o = 30$.

Si le brouillage des oscillations de Rabi est dû à la dispersion des valeurs de n, c'est-à-dire à la dispersion de l'amplitude du champ dans un état cohérent, la réapparition de ces oscillations aux temps longs est due au fait que l'expression (III.64) ne fait intervenir qu'une somme sur un ensemble discret de fréquences. Après un temps assez long, tous les termes oscillants dans l'expression de $P_e(t)$ reviennent en phase et l'oscillation de Rabi est à nouveau observable. Ceci est en fait une propriété très générale de tous les systèmes ne faisant intervenir qu'un ensemble discret de fréquences propres, c'est-à-dire qu'un nombre fini de degrés de liberté (récurrences de Poincaré). Ce phénomène est donc une conséquence <u>directe</u> de la quantification du champ électromagnétique et peut être considéré comme un pur effet quantique.

Ce type de récurrences n'est pas propre au seul cas d'un champ cohérent. On observe des phénomènes similaires (¹⁶) dans le cas de l'interaction avec un champ thermique incohérent. Ces réapparitions des oscillations de Rabi n'apparaissent pas dans la figure 7 , uniquement parce que nous avons considéré une cavité où la relaxation joue un rôle important.

Observer ces réapparitions des oscillations de Rabi est certainement très difficile, même sur des niveaux de Rydberg. Il est en fait nécessaire que le temps d'amortissement du champ cohérent dans la cavité soit beaucoup plus long que t_{réapp}. Si toutefois on peut réaliser une cavité où le régime oscillant de l'émission spontanée est observable, cet effet devrait pouvoir être mis en évidence à condition d'utiliser un champ cohérent très faible (n \sim 1). Dans ce cas en effet, t_{brouillage} et t_{réapp}. sont tous les deux de l'ordre de $1/\Omega$, c'est-à-dire plus courts que Q/ω , temps d'amortissement de la cavité. Nous avons vu que, jusqu'à présent, cette condition n'avait pu être réalisée. Il est en revanche facile d'observer les oscillations de Rabi dans une cavité amortie couplée à une source quasi monochromatique de micro-onde.

2) Oscillations de Rabi dans une cavité amortie couplée à une source

Nous considérerons dans ce paragraphe le cas, plus réaliste du point de vue expérimental, d'un atome préparé dans une cavité de surtension

finie couplée, par l'intermédiaire d'un trou percé au centre de l'un des miroirs, à une source micro-onde continue. Un calcul précis du signal de précession de Rabi devrait, dans ce cas, faire intervenir une description de la source et des processus de relaxation affectant celle-ci, ce qui serait certainement une tâche délicate. En fait, au moins pour des temps d'interaction assez courts, l'équation (III.64) donne une bonne approximation de par la relaxation du mode et d'autre part à la source, atteint rapidement un état d'équilibre qui est bien représenté par un état cohérent de Glauber, si on peut considérer la source comme monochromatique. C'est effectivement le cas dans nos expériences où la largeur spectrale de la source (quelques hertz - voir appendice 1) est beaucoup plus petite que l'inverse du temps d'interaction (quelques centaines de kilohertz). Si le nombre moyen de photons, n_o, dans cet état cohérent est très grand devant 1 cet état d'équilibre n'est pratiquement pas perturbé par l'évolution du système atomique. De plus, si nous nous restreignons à des temps d'interaction assez courts (t << $\frac{1}{\Omega}$), la dispersion des fréquences de Rabi autour de la valeur moyenne $\Omega \sqrt{n+1}$ ne joue pratiquement aucun rôle et on peut écrire :

$$P_{e}(t) = \frac{\Omega \sqrt{n_{o}+1}}{\omega_{o}(n_{o})} \left[1 - \cos \overline{\omega}_{o}(n_{o}) t\right]$$
(III.70)

On observe donc une précession de Rabi à la fréquence angulaire :

$$\Omega_{\rm R} = (4\Omega_{\rm C}^{2} + (\omega_{\rm O} - \omega)^{2})^{1/2}$$
(III.71)

avec $\Omega_{c} = \Omega \sqrt{n+1}$, avec une profondeur de modulation :

$$\beta = \frac{1}{\left(1 + \left(\frac{\omega}{2\Omega_{c}}\right)^{2}\right)^{1/2}}$$
(III.72)

Ces expressions coıncident bien sur avec celles que l'on obtient pour un dipôle atomique couplé à un champ classique d'amplitude $\sqrt{\frac{\varkappa}{2\varepsilon_{o} \mathcal{V}}}$ $(n_{o}+1)^{\frac{1}{2}}$. En négligeant la dispersion des fréquences de Rabi nous avons évidemment complètement négligé le caractère quantique du champ.



dant à un nombre moyen de photons n = 15000, 50000,

170000, 650000.

(transition $34S_{1_{A}} \rightarrow 34P_{1_{A}}$)

La figure 9 présente l'enregistrement expérimental de la probabilité $P_e(t)$ (¹⁰²) sur la transition $34S_{1/2} \rightarrow 34P_{1/2}$ du sodium à 91 GHz, obtenu par la technique de l'électrode de trempe (voir § II.D) pour différentes puissances de micro-onde incidentes sur la cavité (P_{imp}) Les courbes a), b), c) et d) correspondent respectivement à $P_{imp} = 5 \ 10^{-12}$, 1.6 10^{-11} , 5.5 10^{-11} , 2 10^{-10} W c'est-à-dire, en tenant compte des pertes de la cavité et du coefficient de couplage à la source, à des nombres moyens de photons dans le mode n = 15000, 50000, 170000, 650000.

La disparition aux temps longs des oscillations de Rabi que l'on observe sur ces figures n'est bien sûr pas due aux effets quantiques mentionnés dans le paragraphe précédent. Elle résulte de deux limitations expérimentales : le temps de transit dans la cavité, interdisant évidemment d'observer des oscillations de Rabi pour des temps très supérieurs à Δ t et la dispersion de position des atomes autour du ventre de champ électrique, due à une focalisation nécessairement imparfaite des faisceaux lasers. Est associée à cette dispersion géométrique une dispersion des fréquences de Rabi qui brouille les oscillations de P (t) après une dizaine de périodes. En fait, ces signaux ne furent pas enregistrés avec un nombre moyen d'atomes dans la cavité de l'ordre de 1 : la population totale est de l'ordre de N = 1000 atomes. Cependant, pour une telle population et la cavité utilisée, le couplage radiatif entre atomes est négligeable et les signaux observés sont essentiellement les mêmes que pour des atomes isolés. Nous verrons, à la fin du chapitre IV (§ D.1), ce qui se produit quand ce couplage n'est plus négligeable.

Bien entendu, la précession de Rabi est un phénomène bien connu depuis l'aube de la résonance magnétique nucléaire (¹⁰³). La principale nouveauté des expériences que nous présentons ici est en fait l'observation de précessions de Rabi de relativement haute fréquence dans des champs cohérents très faibles (quelques milliers de photons seulement, alors que les expériences de R.M.N. nécessitent 10^{15} à 10^{20} photons si tant est que l'on puisse donner un sens à un nombre de photons dans une expérience de ce type). Ceci illustre bien, encore une fois, l'extrême sensibilité des niveaux de Rydberg aux champs micro-onde.



91010

20

(^zHW)

г яе о леи с х Б

م م

désaccord (w - w) / 2m (transition $34S_{1/2} \rightarrow 34P_{1/2}$ Figure 11 : Dépendance de la fréquence des oscillations de Rabi ($\Omega_R^{}/2\pi)$ en fonction du MICROWAVE DETUNING (MHz) 0 0

Il est facile de vérifier que la fréquence des oscillations de Rabi varie comme $\sqrt{n_o}$, c'est-à-dire comme la racine carrée de la puissance incidente. Ceci est illustré par la figure 10 présentant la fréquence de Rabi en fonction de la racine carrée de la puissance incidente (données enregistrées sur la transition $34S_{1/2} \rightarrow 34P_{1/2}$). Les puissances sont calibrées, quand la source utilisée est un carcinotron, directement par un détecteur bolométrique. Quand on utilise comme source un mélangeur harmonique, les puissances sont calibrées par référence avec un carcinotron convenablement atténué. On note l'excellent accord entre les valeurs mesurées et les prédictions de l'équation (III.70) à résonance (ligne continue).

On peut aussi étudier la dépendance de la fréquence des oscillations de Rabi en fonction du désaccord ω_{O} - ω entre la source micro-onde et la transition atomique, à puissance micro-onde constante. Les résultats sont présentés sur la figure 11 (transition $34S_{1/2} \rightarrow 34P_{1/2}$, n_O = 92000). La courbe pointillée présente les prédictions de l'équation (III.71) (la profondeur de modulation diminuant très vite avec le désaccord, la précession de Rabi n'est pas observable pour des désaccords supérieurs à 15 MHz).

Un effet très étroitement relié à la précession de Rabi est l'effet Autler-Townes (¹⁰⁴ - ¹⁰⁵). On peut en effet le voir comme la conséquence, dans l'espace des fréquences, du caractère oscillant, dans l'espace des temps, de P_e(t). Nous avons observé cet effet en saturant une transition entre deux niveaux de Rydberg ($34S_{1/2}$ et $34P_{1/2}$) avec une micro-onde intense et résonnante. La structure du niveau $34P_{1/2}$ habillé par cette première microonde est alors sondée par une micro-onde faible balayée autour de la résonance $34P_{1/2} \rightarrow 35S_{1/2}$ (on détecte dans cette expérience la population du niveau $35S_{1/2}$, alors que le niveau initialement excité est le $34S_{1/2}$).

Le spectre de la seconde transition est alors constitué de deux raies symétriquement réparties autour de la fréquence de la transition en champ faible et séparées par la fréquence de Rabi $\Omega \sqrt{n_0+1}$. La figure 12 présente, en fonction de la racine carrée de la puissance micro-onde injectée sur la transition $34S_{1/2} \rightarrow 35P_{1/2}$, l'écart en fréquence entre les deux composantes du doublet Autler-Townes. On observe bien une dépendance linéaire, en bon accord avec la valeur théorique (ligne continue).







Figure 14 : Dépendance de la fréquence des oscillations de Rabi à deux photons en fonction de la puissance injectée.

Les effets de précession de Rabi ne sont pas en fait limités aux seules transitions dipolaires électriques à un photon (^{106 - 108}). Nous avons vu en particulier dans le chapitre I que les transitions à deux photons entre les niveaux nS et (n+1)S sont très faciles à observer à cause de la quasi-coincidence du niveau nP avec le centre de cette transition. Avec une puissance micro-onde suffisante, des oscillations de Rabi sont observables sur de telles transitions. La figure 13 présente de tels signaux (transition $34S_{1/2} \rightarrow 35S_{1/2}$ à 180,67 GHz), avec des puissances incidentes de 0.9, 1.8, 3.6, 7.1 nW pour les courbes a, b, c et d respectivement) (des signaux similaires ont déjà été obtenus dans l'infrarouge (¹⁰⁹)). On peut montrer (¹⁰⁶) que, à condition que le niveau relais nP ne soit pas peuplé dans la transition, la précession de Rabi à deux photons est formellement identique à celle dans un système à deux niveaux, la fréquence de Rabi étant proportionnelle à $\Omega_1 \quad \Omega_2 \quad n_o$ -, où n est le nombre moyen de photons dans le mode, Ω_1 et Ω_2 $(\Delta \omega)$ les fréquences de Rabi pour un champ d'un seul photon résonnant sur les transitions à un photon nS \rightarrow nP et nP \rightarrow (n+1)S respectivement et $\Delta \omega$ l'écart entre la micro-onde incidente et la transition à un photon de fréquence $nS \rightarrow nP$. La fréquence de Rabi à deux photons dépend donc linéairement de la puissance micro-onde appliquée. Ceci est bien vérifié expérimentalement (la figure 14 présente la fréquence de Rabi à deux photons en fonction de la puissance injectée).

La précession de Rabi entre niveaux de Rydberg peut conduire à des applications intéressantes. Mesurer la fréquence de Rabi revient en fait à mesurer de façon <u>absolue</u> l'amplitude du champ micro-onde, pour des champs faibles, dans un domaine de puissance où les appareils conventionnels donnent des indications peu précises et, le plus souvent, uniquement relatives.

CHAPITRE IV

•

.

COMPORTEMENTS COLLECTIFS D'UN ENSEMBLE DE N ATOMES DE RYDBERG DANS UNE CAVITE RESONNANTE

.

Chapitre IV

COMPORTEMENTS COLLECTIFS D'UN ENSEMBLE DE N ATOMES DE RYDBERG DANS UNE CAVITE RESONNANTE

Dans ce chapitre, nous étudierons l'évolution d'un ensemble de N atomes de Rydberg interagissant, à l'intérieur d'une cavité résonnante, avec un seul mode du champ électromagnétique. Nous présenterons un cadre théorique très simple permettant d'analyser les différents régimes d'évolution (⁷⁹)(⁸⁰). Les prédictions de ce modèle seront comparées aux résultats de diverses expériences que nous avons réalisées sur ce système.

Le fait que N atomes identiques préparés dans un résonateur n'évoluent pas indépendamment les uns des autres mais se comportent de façon <u>collective</u> est bien connu depuis les premiers articles théoriques ayant abordé ce sujet $(^{7})(^{20})(^{21})$. L'origine de ce comportement collectif réside dans le couplage indirect entre les atomes dû à leur interaction commune avec un même mode du champ. Dans la description théorique de ce système, on introduit souvent un temps T_R caractéristique de cette évolution collective $(^{23})$. Ce temps est inversement proportionnel au nombre d'atomes et au taux d'émission spontanée sur la transition considérée $(^{80})$:

 $T_{R} = (N\Gamma^{cav})^{-1}$ (IV.1)

Les comportements collectifs ne sont observables en général que si le temps T_R est beaucoup plus court que les temps caractéristiques du processus de relaxation. Cette condition, exprimée en fonction du nombre d'atomes, donne la condition de seuil pour les effets collectifs : superradiance -ou maser transitoire-, absorption collective. Les atomes de Rydberg étant très fortement couplés au champ micro-onde, le seuil de ces effets est très bas (il n'est que de quelques atomes dans les conditions de l'expérience sur



Figure 15: Diagramme symbolisant le système étudié. L'échelle des états de
Dicke (A) est couplée par le hamiltonien H_{AF} à l'oscillateur har-
monique représentant le mode de la cavité (F) amorti par un ré-
servoir à la température T avec une constante de temps Q/ω .

.

l'accélération de l'émission spontanée décrite dans le chapitre précédent). Ils nous permettent donc de réaliser une situation expérimentale propre où les concurrents des effets collectifs sont négligeables.

Nous nous intéresserons surtout dans ce chapitre à la situation la plus simple où tous les atomes sont préparés dans une région d'amplitude constante du champ électrique, à l'intérieur de la structure d'onde stationnaire du mode, et en particulier au cas où l'échantillon est situé dans un petit volume autour d'un ventre du champ électrique. Les longueurs d'onde des transitions entre niveaux de Rydberg étant de l'ordre du millimètre, cette condition est très facile à réaliser expérimentalement (il suffit que le diamètre des faisceaux lasers au niveau du jet atomique soit de l'ordre d'un dizième de millimètre). Nous montrerons que, dans ce cas, le système atomique est formellement identique à un spin J = N/2 dans un champ magnétique avec N+1 niveaux d'énergie équidistants et non dégénérés. Les différents effets collectifs que nous décrirons seront donc la conséquence du couplage de ce moment angulaire avec l'oscillateur harmonique amorti qui représente, comme nous l'avons vu, le mode de la cavité (voir figure 15). Les résultats obtenus dans ce chapitre généralisent donc au cas J > 1/2 ceux du chapitre précédent, obtenus pour un atome unique, c'est-à-dire J = 1/2. Nous analyserons également les deux régimes d'émission spontanée pour le système collectif : régime oscillatoire et régime surcritique monotone et nous décrirons l'absorption d'un champ -cohérent ou incohérent- par ce système.

Nous verrons que l'évolution du spin J = N/2 est, pour N assez grand, formellement identique à celle d'un pendule rigide classique partant soit de sa position d'équilibre stable (expériences d'absorption), soit de sa position d'équilibre instable (expériences d'émission spontanée). Ce pendule est écarté de ses positions d'équilibre par un <u>mouvement brownien</u>, résultat de l'interaction du système atomique avec les fluctuations du champ d'origine thermique ou spontanée. Une des caractéristiques principales des phénomènes que nous étudierons est donc l'existence de <u>fluctuations</u> importantes (⁷). En particulier, dans les expériences d'émission (superradiance), les fluctuations de l'énergie atomique sont, au moment où l'évolution est la plus rapide, de l'ordre de NMW. Ces fluctuations macroscopiques -beaucoup plus grandes que celles, de l'ordre de $1/\sqrt{N}$ en valeur relative, auxquelles nous

pourrions nous attendre- sont communes à toute une classe de problèmes physiques où un système quitte une position d'équilibre instable sous l'influence d'un bruit (²⁴) (crayon posé sur la pointe et soumis à un mouvement brownien dû à l'agitation thermique du gaz qui l'entoure ou de son support, démarrage d'un oscillateur électrique ou d'un laser continu , ou même explosion nucléaire !)

Nous ouvrirons ce chapitre par une brève description <u>qualitative</u> des deux régimes d'émission spontanée collective en utilisant le point de vue de Schrödinger (§ A). Ceci nous permettra de faire apparaître clairement les analogies avec les résultats du chapitre précédent. On peut donner une analyse quantitative de l'évolution du système dans ce point de vue dans le cas du régime surcritique. Elle a été exposée en détail dans plusieurs publications (⁸)(²¹)(⁷⁹); nous ne jugeons donc pas utile de la reproduire ici. Nous montrerons en revanche que, dans le cas des grands systèmes (N >> 1), le point de vue de Heisenberg est d'utilisation beaucoup plus commode. Nous l'utiliserons au § B pour donner une description quantitative des deux régimes d'émissior spontanée. Dans le paragraphe C, nous présenterons les résultats d'expériences où nous avons pu tester de façon précise les prédictions du modèle théorique. Dans le paragraphe D, enfin, nous analyserons l'absorption d'un champ, thermique ou cohérent, par un ensemble d'atomes de Rydberg.

A) Emission collective dans la cavité décrite dans le point de vue de Schrödinger

Nous introduirons d'abord, dans ce paragraphe, les notations relatives à un système de N atomes à deux niveaux qui seront utilisées dans tout le reste de ce chapitre.

Nous considérons donc un système de N atomes à deux niveaux, situés aux points $\dot{r_1}$... $\dot{r_N}$ dans le mode de la cavité. Nous négligerons ici le mouvement à la vitesse thermique des atomes. Nous verrons qu'il n'y aurait aucune difficulté, dans le point de vue de Heisenberg au moins, à inclure le déplacement des atomes dans notre modèle. L'aspect mathématique du problème s'en trouve toutefois fortement compliqué, sans que les effets physiques ne soient sensiblement modifiés.

Nous introduirons, pour chaque atome, les opérateurs D_i^{\pm} et D_i^3 , analogues aux opérateurs décrivant un spin 1/2, définis par les équations (III.22). Le hamiltonien atomique H_A et le hamiltonien de couplage au champ E_{AF} s'écrivent alors :

$$H_{A} = \not M \omega_{O} \sum_{i} D^{3}_{i}$$
(IV.2)
$$H_{AF} = -\not M \Omega \sum_{i} \left[aD^{\dagger}_{i} f(r_{i}) + a^{\dagger} D^{-}_{i} f(r_{i}) \right]$$
(IV.3)

où $f(\vec{r}_i)$ est l'amplitude relative du champ au point \vec{r}_i , définie par les équations (III.5) (III.9). Pour écrire ce hamiltonien d'interaction, nous avons supposé que la polarisation atomique est égale à celle du mode et que les approximations dipolaire électrique et de l'onde tournante peuvent s'appliquer à ce système.

Nous ne tenons compte ici que de l'interaction résonnante avec le mode de la cavité. Il faudrait en toute rigueur introduire dans le hamiltonien d'interaction tous les modes non résonnants du champ (modes de la cavité de fréquence différente de ω_{o} et modes transverses) et tenir compte également de tous les niveaux d'énergie atomiques. L'influence de ces termes se manifeste en fait par des déplacements des niveaux d'énergie : "Lamb-shifts" et interaction dipôle-dipôle entre atomes différents. Les premiers peuvent être inclus dans la fréquence atomique ω_{o} . Les effets des seconds sont discutés en détail dans le chapitre V. La principale caractéristique de ces derniers est de dépendre fortement de la <u>densité</u> du milieu atomique. Dans le cas des expériences que nous décrirons ici, cette densité est relativement faible : nous préparons au plus N $\sim 10^6$ atomes dans un volume de l'ordre du millimètre cube. L'influence de l'interaction de Van der Waals est donc négligeable et nous l'oublierons dans la suite de cet exposé.

Ainsi que nous l'avons annoncé dans l'introduction, nous nous concentrerons dans ce chapitre sur le cas géométriquement le plus simple où l'échantillon atomique est contenu dans un volume de dimensions petites devant la longueur d'onde rayonnée λ , situé au voisinage d'un ventre de champ électrique. Toutes les amplitudes relatives $f(r_i)$ apparaissant dans le hamiltonien d'interaction H_{AF} sont alors, par définition, égales à 1. Nous sommes donc tout naturellement conduits à introduire les opérateurs collectifs (²⁰) :

$$D^{\pm} = \sum_{i} D^{\pm}_{i}$$
(IV.4)

et

$$D^{3} = \sum_{i} D^{3}_{i}$$
(IV.5)

Ces opérateurs obéissent, eux aussi, aux règles de commutation standard des moments cinétiques.

Les hamiltoniens H_{A} et H_{AF} s'écrivent alors simplement :

$$H_{A} = M_{O} D^{3}$$
(IV.6)
$$H_{AF} = -M\Omega \left[a D^{+} + a^{+} D^{-} \right]$$
(IV.7)

et sont évidemment <u>invariants</u> sous l'influence d'une <u>permutation quelconque</u> de deux atomes.

Si le système est initialement préparé dans un état lui aussi invariant par permutation de deux atomes quelconques (par exemple l'état $|e\ e\ ..\ e\ >\ correspondant\ a\ tous\ les atomes\ préparés\ dans\ le niveau\ supérieur$ $de la transition <math>a\ t=0$), cette propriété sera conservée pendant l'évolution sous l'influence de H_A + H_{AF} . Les seuls états accessibles au système seront donc les <u>états symétriques</u> par permutation atomique. Ces états ont été introduits pour la première fois par DICKE (²⁰) dans le contexte de la superradiance (états collectifs de nombre de coopération maximum). On peut les engendrer tous par actions répétées de l'opérateur D⁻ (lui aussi symétrique) sur l'état $|e\ ...\ e\ >\ On\ obtient\ ainsi\ N+1\ états\ qui\ sont\ isomorphes\ aux\ états\ propres$ $d'un moment\ angulaire\ J = N/2: |J, M >. On peut\ préciser\ cette\ correspondance$ en écrivant :

$$|J, M \rangle = \sqrt{\frac{(J+M)!}{N!(J-M)!}} (D^{-})^{J-M} |e \dots e \rangle (IV.8)$$

L'état $|J, M\rangle$ est un état non dégénéré d'énergie atomique < J, $M|H_A|J, M\rangle = M_OM$. On peut l'obtenir aussi par action de l'opérateur de symétrisation S sur l'état $|e \dots e, g \dots g\rangle$ où J+M atomes sont dans le niveau supérieur $|e\rangle$, et J-M dans le niveau inférieur $|g\rangle$.

Rappelons quelques relations importantes entre ces états :

$$D^{3} | J, M \rangle = M | J, M \rangle$$

$$D^{2} | J, M \rangle = J (J+1) | J, M \rangle$$

$$D^{+} | J, M \rangle = \sqrt{(J+M+1)(J-M)} | J, M+1 \rangle$$

$$D^{-} | J, M \rangle = \sqrt{(J+M)(J-M+1)} | J, M-1 \rangle$$

$$< J, M | \sum_{i} D_{i}^{+} D_{i}^{-} | J, M \rangle = J+M$$

$$< J, M | \sum_{i} D_{i}^{-} D_{i}^{+} | J, M \rangle = J-M$$

$$= J + M$$

 $D^{2} = \frac{1}{2} \left[D^{+} D^{-} + D^{-} D^{+} \right] + (D^{3})^{2}$ (IV.10)

Il est intéressant de remarquer que, pour les états de Dicke, il existe de fortes corrélations entre les dipôles appartenant à des atomes différents. Calculons par exemple la valeur moyenne dans l'état $|J, M \rangle$ de l'opérateur (D_i^{\dagger}, D_j^{-}) . On obtient très simplement, en utilisant les relations précédentes et le fait que cette valeur moyenne est évidemment indépendante du couple ij choisi,

$$< J, M | D_{i}^{+} D_{j}^{-} | J, M > = \frac{J^{2} - M^{2}}{N(N-1)}$$
 (IV.11)

Les corrélations entre dipôles sont donc nulles pour les états $|J, J \rangle = |e \dots e \rangle$ et $|J, -J \rangle = |g \dots g \rangle$ et maximales pour l'état d'énergie atomique nulle $|J, 0 \rangle$. Elles sont alors de l'ordre de 1/4. Le fait que les atomes ne soient couplés entre eux que par l'intermédiaire du champ commun explique bien que ces corrélations sont nulles dans l'état initial du système ($|J, J \rangle$ ou $|J, -J \rangle$).

L'émission spontanée du système atomique dans la cavité résonnante peut être décrite comme une cascade dans l'échelle des niveaux |J, M >, à partir du niveau |J, J > initialement préparé. Au cours de l'évolution de cette cascade le mode de la cavité tend à se remplir des photons émis par le système atomique, ce processus étant contrecarré par la relaxation du champ qui tend à le faire revenir à l'équilibre thermique en un temps de l'ordre de Q/ω . Comme dans le cas de l'émission spontanée d'un atome unique dans la cavité, on doit distinguer deux régimes selon les valeurs respectives du temps caractéristique de la cascade et du temps d'amortissement du champ. Une description parfaitement rigoureuse de l'émission doit faire intervenir la résolution de l'équation pilote (III.28), projetée sur la base des états J, M, n > (système atomique dans l'état de Dicke J, M > avec n photons dans le mode de la cavité). Le système différentiel obtenu est très complexe et ne peut être résolu directement. Il est toutefois possible de dégager des idées physiques simples et de donner une solution analytique dans les cas limites d'une cavité très peu ou très fortment amortie.

1) Régime d'oscillations collectives dans une cavité très faiblement amortie

Considérons d'abord le cas d'une cavité sans relaxation ($\omega/Q = 0$), initialement vide de champ (T = 0 K). Dans ce cas, comme pour l'émission spontanée d'un seul atome, on peut s'attendre à un régime d'oscillations de Rabi de l'énergie atomique. Le champ rayonné par les atomes est en effet stocké dans la cavité et peut être réabsorbé par ceux-ci.

L'évolution du système atome + champ est décrite, en l'absence de relaxation, par l'équation hamiltonienne :

$$\frac{d\rho_{A+F}}{dt} = \frac{1}{iK} \left[H_A + H_F + H_{AF}, \rho_{A+F} \right]$$
(IV.12)

L'état initial du système à température nulle est bien sûr :

$$\rho_{A+F}(0) = \left| J, J \right| < J, J \leq J, J \leq \left| 0 \right|_{F} < 0 \left| (IV.13) \right|$$

A résonance ($\omega = \omega_0$), on peut vérifier très simplement que le hamiltonien d'interaction H_{DF} conserve l'énergie du système :

$$\begin{bmatrix} H_{AF}, H_{A} + H_{F} \end{bmatrix} = 0$$
 (IV.14)

Les seuls états accessibles au système sont donc les N+1 états de la forme $|J, M, n \rangle$ avec n = J-M (il y a autant de photons dans le mode que d'atomes désexcités). Afin de simplifier quelque peu les notations, nous poserons dans la suite de ce paragraphe :

$$J, M, n = J - M > = M >$$
 (IV.15)

Les états $|M\rangle$ étant tous des états propres du hamiltonien $H_A + H_F$ de même énergie, le problème se résume donc à la diagonalisation de la matrice H_{AF} dans la base de ces états. La structure de la matrice H_{AF} est très simple. En effet, seuls les états $|M \pm 1\rangle$ sont couplés à l'état $|M\rangle$ (H_{AF} ne décrit que des processus où le système atomique perd -ou gagneune excitation élémentaire pendant que le champ en gagne -ou perd respectivement- une). H_{AF} est donc une matrice tridiagonale avec pour éléments :

$$< M+1 | H_{AF} | M > = -M\Omega (J-M) \sqrt{J+M+1}$$
 (IV.16)

Les états propres de H_{AF} constituent une sorte de multiplicité de "niveaux habillés" qui généralise au cas de N atomes la multiplicité $|\pm 0\rangle$ introduite dans le paragraphe III.B.2 pour traiter l'émission spontanée oscillante d'un seul atome à T = 0 K. Par analogie, nous appellerons $|M\rangle$ ces N+1 états habillés qui sont simplement des combinaisons linéaires des états $|M\rangle$. L'état du système à l'instant t peut être obtenu très simplement si l'énergie $E_{\overline{M}}$ des niveaux habillés est connue :

$$|\psi(t)\rangle = \sum_{M} C_{\overline{M}} e^{-i E_{\overline{M}} t/M} |\overline{M}\rangle$$
 (IV.17)

Les coefficients $C_{\overline{M}}$ sont ceux du développement de l'état initial $|J, J, 0 \rangle = |J \rangle$ sur la base des niveaux habillés $|\overline{M} \rangle$.

$$|J \rangle = \sum_{M} C_{\overline{M}} |\overline{M} \rangle$$
(IV.18)

On peut écrire, en fonction de l'état du système, la valeur moyenne de l'énergie atomique en fonction du temps :



 $^{(0 &}lt; t < 10/\Omega)$. Noter les structures complexes de battement pour N = 3 et N = 5. (Les atomes sont initialement excités et la cavité vide -T = 0 K).

$$\langle H_{A} \rangle = M \omega_{O} \langle \Psi(t) | D^{3} | \Psi(t) \rangle$$

$$= M \omega_{O} \frac{\Sigma}{\overline{M}, \overline{M}'} C_{\overline{M}} C_{\overline{M}}, e^{i(E_{\overline{M}} - E_{\overline{M}}) t/M} \langle \overline{M} | D^{3} | \overline{M}' \rangle$$

$$(IV.19)$$

(L'énergie totale étant conservée, on a bien sûr :

$$< H_{\rm F} > = \frac{N \,\mu\omega_{\rm o}}{2} - < H_{\rm A} >)$$

Comme prévu, l'énergie atomique est une combinaison linéaire de fonctions oscillant aux différentes fréquences de Bohr entre états habillés.

La structure complexe qui résulte de cette superposition ne peut être décrite plus précisément que dans les deux cas limites d'un faible nombre d'atomes -pour lequel une diagonalisation explicite de H_{AF} est possibleou d'un très grand nombre d'atomes où l'on peut trouver des expressions asym**p**totiques pour le spectre de H_{AF} .

Pour deux atomes par exemple (⁷⁹), les trois niveaux habillés ont les énergies $\pm M\Omega \sqrt{6}$ et 0. Pour trois atomes, on trouve les énergies $\pm M\Omega \sqrt{7} \pm \sqrt{40}$ (Très généralement, les N+1 niveaux d'énergie sont répartis symétriquement autour de 0, cette valeur étant effectivement atteinte pour N pair). Au-delà de quatre atomes seul un calcul numérique reste possible. En général, les signaux obtenus pour l'énergie atomique moyenne révèlent un échange d'énergie périodique entre les atomes et le champ, avec une structure de battements compliquée due à l'interférence des différentes composantes de fréquence. La figure 16 par exemple présente, en fonction du temps, < $H_A(t)$ > pour N = 1, 2, 3, 4, 5 et 6 atomes. Ces battements sont particulièrement apparents pour N = 3 et 5.

Le calcul numérique des valeurs propres de H_{AF} n'est possible évidemment que pour des valeurs relativement faibles de N (nous l'avons effectué en fait jusqu'à N = 500). Seule l'analyse des propriétés asymptotiques du spectre de H_{AF} permet d'obtenir des renseignements sur le comportement des grands systèmes. Cette analyse -mathématiquement très difficile- a été donnée



Figure 17: Evolution de l'énergie atomique moyenne pour N = 500 atomes
initialement excités dans une cavité sans pertes à T = 0 K.
L'unité de temps est $0.2/\Omega$.

par SCHARF dans un très bel article (⁸). Le résultat le plus intéressant en est que, sur une large gamme, les niveaux d'énergie de la multiplicité d'états habillés restent pratiquement équidistants, avec un espacement entre niveaux de l'ordre de $M\Omega \sqrt{N}$. Les principales contributions à l'énergie atomique moyenne sont donc à la fréquence $\Omega \sqrt{N}$ ou à l'un de ses harmoniques. L'énergie atomique évolue donc de façon quasi périodique, avec une période de l'ordre de $1/\Omega \sqrt{N}$. Ce comportement quasi périodique est déjà clairement apparent pour N = 500 : la figure 17 présente le résultat du calcul numérique de < $H_A(t)$ > dans ce cas ^(*). Une analyse plus détaillée du résultat de ce calcul numérique (⁷⁹), ou des propriétés asymptotiques de H_{AF} , montre que la pseudo-période T est bien approchée par une loi de la forme

$$T = \frac{Log N + C}{\Omega \sqrt{N}}$$
(IV.20)

(avec C \sim 3.1), même pour des nombres d'atomes assez faibles (quelques dizaines) (par un accident remarquable, la formule IV.20 est exacte pour N = 1).

La dépendance en \sqrt{N} de la fréquence de ces oscillations de Rabi a une interprétation physique très simple. Le nombre de photons stockés dans la cavité est en effet, en moyenne, de l'ordre de N donc l'amplitude du champ électrique \sqrt{N} fois plus grande que celle correspondant à un seul photon. La fréquence de précession de Rabi dans un tel champ est alors de l'ordre de $\Omega\sqrt{N}$.

Une autre caractéristique essentielle de ce phénomène d'autonutation de Rabi est l'existence de très grandes fluctuations dans le nombre d'atomes excités à l'instant t, en particulier pour t \sim T/2. La largeur de la distribution des états $|M\rangle$ peuplés à l'instant t est, elle aussi, une fonction pseudo-périodique du temps de période T. L'effet de ces fluctuations apparaît très clairement sur le signal représenté dans la figure 17. En effet, la valeur moyenne de l'énergie n'atteint jamais le minimum possible

^(*) Dans la figure 17, la différence entre les deux minima de $\langle H_A(t) \rangle$ est essentiellement liée à l'accumulation d'erreurs d'intégration.



Figure 18: Evolution de l'énergie atomique moyenne dans une cavité faiblement
amortie ($\omega/Q = 0.2\Omega$) pour N = 2 atomes initialement excités (T = 0 K).
L'unité de temps est $2/\Omega$.

 $(-500 \frac{2}{2})$. Il reste, même à t = T/2, environ 25% des atomes dans le niveau supérieur de la transition : la distribution des états $|M\rangle$ peuplés s'étend sur les 250 états les moins excités. En revanche, à t = T, l'énergie atomique atteint à nouveau la valeur maximale ($500 \frac{2}{2}$), ce qui indique que les fluctuations s'annulent à cet instant.

On peut trouver dans la référence (⁷) une analyse détaillée des fluctuations dans ce régime.

Si le temps d'amortissement de l'énergie électromagnétique dans la cavité est fini, les oscillations s'amortissent avec une constante de temps de l'ordre de Q/w. Le champ rayonné par les atomes est en effet progressivement absorbé par les miroirs. La description précédente ne s'applique évidemment plus dans ce cas et on doit résoudre l'équation pilote complète. Comme nous l'avons déjà mentionné, il n'existe pas de solution analytique à cette équation. Seul un calcul numérique est possible si le nombre d'atomes n'est pas trop grand (des raisons purement pratiques nous limitent dans ce cas à N = 6). La figure 18 présente par exemple l'énergie atomique moyenne en fonction du temps pour N = 2 atomes, dans une cavité telle que $w/Q = 0.2 \Omega$. Nous verrons, dans le paragraphe IV.B, que le point de vue de Heisenberg est beaucoup mieux adapté que celui de Schrödinger à la description de ce régime. Il permet en effet, au pire au prix d'un calcul numérique très simple, de calculer exactement < $H_A(t)$ > ainsi que toutes les quantités physiques intéressantes.

2) Régime d'émission collective surcritique dans une cavité de finesse modérée

Si le taux d'amortissement du champ dans la cavité est de l'ordre de -ou plus grand que- la période caractéristique $\Omega \sqrt{N}$, les oscillations de Rabi auto-induites disparaissent et l'énergie atomique moyenne décroît de façon monotone en fonction du temps. Là encore, seuls des calculs numériques sont possibles dans le régime intermédiaire $\Omega \sqrt{N} \sim \omega/Q$. En revanche, si la condition d'obtention du régime surcritique est largement remplie (c'est-à-dire si $\Omega \sqrt{N} \ll 0$, il est possible d'éliminer les variables du champ et d'ob-

tenir une équation pilote pour le système atomique <u>seul</u> $\binom{21}{79}$. La raison en est que, comme dans le cas de l'émission spontanée surcritique d'un seul atome, le champ étant très fortement couplé à son réservoir, son état n'est pratiquement pas modifié par l'émission atomique. L'équation pilote pour la matrice densité atomique peut s'écrire de façon générale dans le cas T \neq 0 K :

$$\frac{d\rho_{A}}{dt} = \frac{1}{i\not\!h} \left[-H_{A}, \rho_{A} \right] - \frac{\Gamma^{cav}}{2} (1+\overline{n}) \left[D^{+} D^{-}, \rho_{A} \right]_{+} + \Gamma^{cav} (1+\overline{n}) D^{-} \rho_{A} D^{+} - \frac{\Gamma^{cav}}{2} \overline{n} \left[D^{-} D^{+}, \rho_{A} \right]_{+} + \Gamma^{cav} \overline{n} D^{+} \rho_{A} D^{-}$$
(IV.21)

 Γ^{cav} , taux d'émission spontanée dans la cavité, est défini par l'équation (III.37).

Cette équation décrit une cascade dans l'échelle des niveaux de Dicke, les termes en 1+n représentant la somme des contributions de l'émission spontanée et de l'émission induite par le rayonnement thermique, alors que les termes en n représentent l'absorption induite par ce dernier.

En développant cette équation opératorielle sur la base des états $|M \rangle = |J, M \rangle$, on obtient les équations d'évolution des populations des niveaux $|M \rangle$, ρ_{M} :

$$\frac{d\rho_{M}}{dt} = -\Gamma^{cav} \left[(J+M) (J-M+1)\rho_{M} - (J+M+1) (J-M)\rho_{M+1} \right] -\overline{n} \Gamma^{cav} \left[(J+M) (J-M+1) (\rho_{M} - \rho_{M-1}) + (J+M+1) (J-M) (\rho_{M} - \rho_{M+1}) \right] (IV.22)$$

où le premier terme décrit les effets de l'émission spontanée et le second les transferts induits par le rayonnement du corps noir.

On peut obtenir une solution à cette équation asymptotiquement exacte pour N >> \overline{n} . Comme le calcul complet de cette solution est assez long, qu'il a déjà été exposé en détail (⁷⁹) et que nous retrouverons plus simplement ces résultats dans le point de vue de Heisenberg, nous ne le décrirons pas ici. Nous en rappellerons simplement le résultat :



Figure 19 : $\rho_M(t)$ calculé numériquement pour N = 200, T = 0 K. Les courbes a), b), c), d) et e) correspondent à $t/T_R = 2.65$, 3.97, 5.3, 6.62 et 7.95 respectivement.

$$\rho_{M}(t) = \frac{1}{1+n} \left(\frac{N}{\frac{N}{2} + M} \right)^{2} e^{-t/T_{R}} e^{-t/T_{R}} \left(-\frac{N}{1+n} \frac{\frac{N}{2} - M}{\frac{N}{2} + M} e^{-t/T_{R}} \right)$$
(IV.23)

où T_R est le temps caractéristique de l'émission collective défini par la formule (IV.1). Cette solution a été obtenue par différents auteurs dans le cas $\overline{n} = 0$ (²¹)(¹¹⁰ - ¹¹²). $\rho_{M}(t)$ a été représenté à différents instants en fonction de M sur la figure 19, dans le cas N = 200, $\overline{n} = 0$ (¹¹²).

 $\rho_{\rm M}(t)$ est, aux temps courts, une fonction exponentiellement décroissante de J-M, au voisinage de M=J. Aux temps plus longs, elle couvre à peu près toutes les valeurs possibles de M, ce qui montre encore une fois l'existence de très grandes fluctuations dans l'évolution de ce système. Aux temps très longs enfin, $\rho_{\rm M}$ devient une fonction très étroite centrée en M = -J qui est évidemment l'état final de l'évolution.

On définit souvent le délai moyen de l'émission T_D comme l'instant auquel l'énergie atomique moyenne est nulle (c'est-à-dire l'intensité rayon-née maximale (¹¹³)). Dans ce régime :

$$T_{D} = T_{R} \log \frac{N}{1+n}$$
 (IV.24)

Les solutions obtenues ici dans le cas d'une cavité fortement amortie sont impossibles à généraliser, que ce soit au cas des valeurs intermédiaires de l'amortissement, ou à ceux, plus complexes, où tous les atomes ne sont pas couplés de la même façon au champ (différentes valeurs de f($\dot{r_i}$) dans l'expression (III.5), avec un couplage dépendant éventuellement du temps (prise en compte du déplacement à vitesse thermique à travers le mode).

Ceci est dû au fait que la matrice densité totale ρ_{A+F} que nous cherchons à déterminer dans ce point de vue contient beaucoup plus d'informations que nécessaire pour analyser une expérience simple. Si nous détectons en effet l'énergie atomique moyenne, nous n'avons que faire de toutes les corrélations du système atomique avec le champ. Nous allons montrer dans le paragraphe suivant que le point de vue de Heisenberg est beaucoup plus économique, puisqu'il nous permet de ne calculer que les grandeurs physiques qui nous intéressent véritablement. Il peut de plus être facilement généralisé pour prendre en compte les différentes complications que nous venons de mentionner.

B) <u>Etude de l'émission collective de N atomes dans le point de</u> vue de Heisenberg (⁸⁰)

Dans ce point de vue, la polarisation atomique d'une part et le champ électrique dans la cavité, d'autre part, sont représentés par des opérateurs dont l'évolution dans le temps est déterminée par un système d'équations différentielles couplées. Nous verrons en fait que le système atomique peut être décrit par un vecteur évoluant dans un espace abstrait représentant le moment cinétique J = N/2 déjà introduit dans le point de vue de Schrödinger. Ce vecteur, dont l'évolution est régie par une équation analogue à celle d'un pendule amorti, est initialement dans une position d'équilibre instable (correspondant à l'état où tous les atomes sont excités). Il est, comme nous l'avons déjà indiqué dans l'introduction à ce chapitre, écarté de cette position d'équilibre sous l'effet d'un couple aléatoire décrivant l'influence des fluctuations du champ d'origine thermique ou spontanée. Le démarrage de l'émission est en fait décrit dans ce point de vue comme <u>l'amplification transitoire</u> (²") de ce mouvement brownien.

Nous avons déjà écrit, dans le cas d'un atome unique, les équations d'évolution de l'opérateur du champ a et de l'opérateur décrivant la polarisation atomique D⁻. Ces équations sont bien entendu les mêmes pour un système de N atomes, à condition d'employer les opérateurs atomiques collectifs définis par les équations (IV.4) (IV.5).

Nous supposerons ici pour simplifier les calculs que la cavité est strictement à résonance sur la transition atomique ($\omega_0 = \omega$) et nous utiliserons la représentation d'interaction en introduisant les opérateurs :

 $\overset{\circ}{a} = e^{-i\omega t} a$ et $\overset{\circ}{D} \overset{\pm}{} = e^{\mp i\omega t} D^{\pm}$, $\overset{\circ}{D}{}^{3} = D^{3}$

Les équations de Heisenberg s'écrivent alors :

$$\frac{d\tilde{a}}{dt} = -\frac{\omega}{2Q} \quad \tilde{a} + i\Omega \tilde{D} + \tilde{F}_{a}$$

$$\frac{d\tilde{D}}{dt} = -2i \ \Omega \quad \tilde{a} \quad \tilde{D}^{3}$$
(IV.25)

 $\stackrel{\sim}{F_a}$, force de Langevin en représentation d'interaction, a bien entendu les mêmes propriétés statistiques que F_a , décrites par les équations (III.18) (III.19) (III.21).

Nous supposerons qu'à l'instant t = 0 le champ dans la cavité est en équilibre thermique à la température T : a(0) est alors un opérateur aléatoire avec une statistique gaussienne, la valeur moyenne du moment d'ordre 2 étant :

$$< a(0) a(0) > = n + 1$$
 (IV.26)

Nous considérerons de plus que tous les atomes sont initialement excités dans le niveau |e >. On a donc :

$$\langle D^{-}(0) D^{+}(0) \rangle = 0$$
 (IV.27)

La résolution des équations de Heisenberg (IV.25) est rendue très complexe par la présence du terme non linéaire $\stackrel{\searrow}{aD^3}$ dans l'équation d'évolution de D. Il est en particulier impossible d'obtenir une équation ne faisant intervenir que les opérateurs atomiques ou les opérateurs du champ.

Les fluctuations du champ, qui sont responsables du démarrage de l'émission, ne sont a priori, importantes que pendant les tous premiers instants. Nous allons donc voir qu'il est possible de linéariser -et de résoudre- les équations de Heisenberg pour les temps courts.
1) Régime linéaire au début de l'émission

Nous considérons donc ici les tous premiers instants de l'évolution, pendant lesquels l'influence de F_a est importante. Cette phase de l'évolution correspond à l'émission d'un nombre de photons petit devant le nombre d'atomes N. La population du niveau excité ne change donc pratiquement pas, ce qui peut s'écrire, en termes d'opérateurs :

 $D^{3} = \frac{N}{2} \qquad 1 \tag{IV. 28}$

(1 est l'opérateur unité).

Cette approximation remplit le programme que nous nous étions fixé en supprimant le terme non linéaire dans les équations de Heisenberg.

Introduisons maintenant les opérateurs $\overset{\Lambda}{b}$ et $\overset{\Lambda^+}{b}$ définis par :

D'après les relations de commutation des opérateurs $\overset{\vee +}{D}$ et $\overset{\vee -}{D}$, on a :

 $\begin{bmatrix} b, b^+ \end{bmatrix} = 1.$ (IV.30)

b et b⁺ sont formellement identiques aux opérateurs annihilation et création d'un oscillateur harmonique <u>inversé</u> (énergie d'excitation élémentaire négative) (¹¹⁴), qui est couplé au mode de la cavité. En d'autres termes, l'échelle de Dicke se comporte comme l'échelle des niveaux d'un oscillateur harmonique inversé tant que seuls les niveaux les plus excités sont peuplés (on peut vérifier aisément, par une brève digression dans le point de vue de Schrödinger, que les éléments de matrice de b et b⁺ entre niveaux du sommet de l'échelle sont bien ceux des opérateurs d'un oscillateur harmonique). Avec ce changement de notations, les équations de Heisenberg (IV.25) s'écrivent :

$$\frac{d\dot{b}}{dt} = i\Omega_{N} \overset{\circ}{a}^{+}$$

$$\frac{d\dot{a}}{dt} = -\frac{\omega}{2Q} \overset{\circ}{a}^{+} - i\Omega_{N} \overset{\circ}{b} + \overset{\circ}{F}_{a}^{+}$$
(IV.31)

Ces équations représentent le couplage linéaire entre deux oscillateurs harmoniques (le mode du champ et le système atomique) dont l'un seulement (le champ) subit directement un processus de relaxation se traduisant par un "mouvement brownien" de à. Sous l'effet du couplage entre les deux oscillateurs le système atomique va, lui aussi, subir un mouvement brownien induit.

Nous avons introduit ici la fréquence des oscillations de Rabi collectives :

$$\Omega_{N} = \Omega \quad \sqrt{N}$$
 (IV.32)

La résolution de ce système d'équations différentielles linéaires ne pose aucun problème (⁸⁰). On peut en effet éliminer l'opérateur a et obtenir une équation ne faisant intervenir que des quantités atomiques :

$$\frac{d^{2} \stackrel{\sim}{b}}{dt^{2}} + \frac{1}{2T_{cav}} \frac{d\stackrel{\sim}{b}}{dt} - \Omega_{N}^{2} \stackrel{\sim}{b} = -\frac{\Omega_{N}}{i} \stackrel{\sim}{F_{a}}^{+} \qquad (IV.33)$$

La résolution de cette équation est évidente. En introduisant les fréquences propres λ^+ et λ^- de l'équation sans second membre :

$$\lambda^{\pm} = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} -\frac{\omega}{2Q} \pm \sqrt{-\frac{\omega^2}{4Q^2} + 4\Omega_N^2} \end{bmatrix}$$
(IV.34)

qui sont toutes deux réelles et de signe opposé, on obtient :

$$\hat{b}(t) = f_{0}(t) - \int_{0}^{t} \tilde{F}_{a}^{+}(t') G(t, t') dt'$$
 (IV.35)

f (t) contient toute la dépendance de b(t) en fonction des conditions initiales :

$$f_{o}(t) = \frac{1}{\lambda^{-} \lambda^{+}} \left[e^{\lambda^{+} t} \left[\lambda^{-} b(0) - i\Omega_{N} a^{+}(0) \right] + e^{\lambda^{-} t} \left[-\lambda^{+} b(0) + i\Omega_{N} a^{+}(0) \right] \right]$$
(IV.36)

(nous faisons intervenir ici $a^+(0)$, proportionnel à $\frac{db}{dt}$ (0), d'après les équations de Heisenberg).

Le noyau intégral G(t, t') est :

$$G(t, t') = \frac{i\Omega_{N}}{\lambda^{-} \lambda^{+}} \left[e^{\lambda^{+}(t-t')} - e^{\lambda^{-}(t-t')} \right]$$
(IV.37)

L'équation (IV.35) montre que b(t) est une fonction linéaire tant des conditions initiales du champ -et du système atomique- que des forces de Langevin entre 0 et t. Toutes ces quantités sont des grandeurs aléatoires gaussiennes. $\hat{b}(t)$ est donc également un opérateur aléatoire à <u>statistique gaussienne</u>. En d'autres termes, tous les moments d'ordre impair de \hat{b} sont nuls et tous les moments d'ordre pair peuvent se calculer simplement à partir du moment d'ordre 2: $\langle \hat{b}^{+}(t) | \hat{b}(t) \rangle$.

La quantité $\langle \overset{\vee}{b}^{+}(t) \overset{\vee}{b}(t) \rangle$ n'est autre que le nombre moyen d'atomes désexcités, c'est-à-dire le nombre moyen de photons émis à l'instant t. Comme $\overset{\vee}{b}$ a des propriétés statistiques gaussiennes, le nombre de photons émis obéit, autour de cette valeur moyenne, à une statistique de Bose-Einstein dont la température $\Theta(t)$ est donnée par :

$$\Theta(t) = -\frac{\cancel{M}\omega}{k_{B}} \left[\log \frac{\langle \overset{\circ}{b}^{+}(t) \overset{\circ}{b}(t) \rangle}{1 + \langle \overset{\circ}{b}^{+}(t) \overset{\circ}{b}(t) \rangle} \right]^{-1}$$
(IV.38)

Le résultat de toutes les expériences où nous ne mesurons que l'énergie atomique et ses propriétés statistiques se déduit donc de < $\overset{\circ}{b}$ ⁺(t) $\overset{\circ}{b}$ (t) >.

Le calcul de $\langle \overset{\circ}{b}^{+}(t) \overset{\circ}{b}(t) \rangle$ fait intervenir la fonction d'autocorrélation de $\langle f_{o}^{+}(t) f_{o}(t) \rangle$. A l'instant t = 0, $\langle \overset{\circ}{b}^{+}(0) \overset{\circ}{b}(0) \rangle$ est nul (puisque l'oscillateur harmonique inversé est dans son état fondamental, c'est-à-dire dans son état d'énergie maximum). D'autre part, la préparation du système étant supposée instantanée, les atomes ne sont pas initialement corrélés au champ (ces corrélations mettent un temps de l'ordre de $(\lambda^{\pm})^{-1}$ à s'établir). On a donc $\langle \overset{\leftarrow}{b}^{+}(0) \overset{\leftarrow}{a}^{+}(0) \rangle = 0$. Seule intervient donc dans $\langle f_{o}^{-+}(t) f_{o}(t) \rangle$ la fonction d'autocorrélation du champ à t = 0, donnée par l'équation (IV.26) :

$$\langle f_{0}^{+}(t) f_{0}(t) \rangle = (n + 1) |G(t, 0)|^{2}$$
 (IV.39)

Il intervient aussi des termes croisés de la forme :

$$\langle f_0^+(t) \int_0^t \tilde{F}_a(t') G(t, t') dt' \rangle$$

La force de Langevin F_a n'est corrélée aux conditions initiales que pendant un temps de l'ordre de τ_c (voir les propriétés de corrélation de F_a^+ et de a données par l'équation (III.19)). Ces termes sont donc de l'ordre de τ_c , complètement négligeables devant le premier.

On a enfin :

$$< \int_{0}^{t} \tilde{F}_{a}^{+}(t') G^{*}(t, t') dt' \int_{0}^{t} \tilde{F}_{a}^{+}(t'') G(t, t'') dt'' >$$
$$= < \tilde{F}_{a}^{+}(t) \tilde{F}_{a}(t) > \int_{0}^{t} |G(t, t')|^{2} dt',$$

 $\hat{F}_{a}^{+}(t')$ et $\hat{F}_{a}(t'')$ n'étant corrélées que pour t' = t" à τ_{c} près.

On obtient donc finalement :

$$\langle \hat{b}^{+}(t) \hat{b}(t) \rangle = (n+1) \left[|G(t,0)|^{2} + \frac{\omega}{2Q} \int_{0}^{t} |G(t,t')|^{2} dt' \right]$$
 (IV.40)

Cette expression n'est bien entendu valable que quand l'approximation du régime linéaire peut s'appliquer, c'est-à-dire tant que :

$$< \dot{b}^{+}(t) \dot{b}(t) > << N$$
 (IV.41)

L'équation (IV.40) décrit en fait une augmentation exponentielle de la "température" Θ (t) décrivant la distribution du nombre de photons émis.

Il est à ce stade très fructueux d'introduire, à la suite de nombreux auteurs (¹¹⁵ - ¹¹⁸), une interprétation des équations de Heisenberg (IV.25) et de leur solution (IV.35) en termes de <u>variables aléatoires classi-</u> <u>ques</u>. Si nous remplaçons en effet dans ces équations les opérateurs aléatoires $\hat{a}(0)$ et $\hat{F}_{a}^{+}(t)$ par des variables aléatoires classiques obéissant, elles aussi, à une statistique gaussienne de même valeur moyenne -pour le second moment- que leur analogue quantique, il est évident que $\hat{b}(t)$ sera, lui aussi, remplacé par une polarisation atomique aléatoire classique. Les propriétés statistiques de cette polarisation seront à chaque instant -du moins dans la phase linéaire de l'émission- les mêmes que celles de l'opérateur $\hat{b}(t)$ dans le formalisme quantique; donc toutes les quantités physiquement intéressantes pourront être calculées à partir de ces distributions classiques.

Il est possible de donner à ces quantités classiques une interprétation physique très simple en introduisant les angles θ et ϕ reliés à la polarisation atomique $\overset{\circ}{D}^+ = \overset{\circ}{b} \sqrt{N}$ par $\overset{\circ}{b} \sqrt{N} \rightarrow \frac{N}{2} \sin \theta e^{i\phi}$. θ et ϕ sont en fait les coordonnées polaires du "vecteur de Bloch" (¹⁰³) représentant, dans un espace abstrait, la polarisation atomique et analogue classique du spin J = N/2 décrivant le système atomique. On identifie alors D³ à (N/2) cos θ . θ = 0 correspond donc à l'excitation maximale du système (état initial dans le cas qui nous intéresse ici), alors que θ = π correspond à l'état final de l'évolution (tous les atomes désexcités dans le niveau |g >). Il est de même possible d'identifier $\overset{\circ}{a}^+$ à $\overset{\circ}{\mathcal{C}} e^{i\psi}$, où $\overset{\circ}{\mathcal{C}}$ est un champ classique, de phase ψ , dans le mode de la cavité.

Dans le cadre de l'approximation linéaire (c'est-à-dire $\theta \ll 1$), les équations de Heisenberg (IV.25) sont remplacées par leur analogue classigue :

$$\frac{d\theta e^{i\Phi}}{dt} = \frac{2i}{\sqrt{N}} \Omega_N \xi e^{i\Psi}$$

$$\frac{d\xi e^{i\Psi}}{dt} = -\frac{\omega}{2Q} \xi e^{i\Psi} - i\Omega_N \frac{\sqrt{N}}{2} \theta e^{i\Phi} + F_a^*$$
(IV.42)

On reconnaît là les équations de Bloch-Maxwell bien connues dans la théorie semi-classique de l'émission spontanée collective ou de l'émission laser (⁹), linéarisées en supposant négligeable la variation de l'inversion de population totale. Dans ces équations, la force aléatoire classique F_a joue le rôle d'un bruit écartant le système de sa position d'équilibre instable ($\theta = 0$).

On peut calculer toutes les grandeurs intéressantes dans le formalisme quantique, en particulier les moments de $\stackrel{\sim}{b}(t)$ de la forme $<\stackrel{\sim}{b}^{+(n)}(t) b^{(m)}(t) >,$ à partir de ces équations classiques. Il suffit en effet de calculer un ensemble de "trajectoires classiques", solutions des équations de Bloch-Maxwell (IV.42) correspondant à différentes réalisations possibles de l'expérience. Les moments quantiques s'obtiennent alors par le calcul, à partir de cet ensemble de trajectoires classiques, des moments correspondants des quantités classiques. En particulier, le fait que les moments d'ordre impair de b, c'est-à-dire les moments avec m \neq n, sont nuls est la conséquence de l'équiprobabilité des valeurs de la phase ϕ entre 0 et 2π .

Le calcul direct des trajectoires classiques en tenant compte de la force aléatoire F_a est possible, mais difficile. Il faut en effet procéder au tirage au sort de nouvelles valeurs pour l'amplitude et la phase de F_a après chaque intervalle de temps de l'ordre de T_c , c'est-à-dire, en pratique, à quelques centaines de milliers de tels tirages pour décrire raisonnablement bien la phase linéaire ! Il faut ensuite reprendre cette procédure pour un grand nombre de trajectoires classiques afin d'obtenir les valeurs moyennes quantiques.

Il est heureusement possible de contourner cette difficulté d'ordre purement pratique. Plutôt que de considérer un système initialement dans l'état $\theta = 0$ (avec éventuellement $\frac{d\theta}{dt}(0) \neq 0$) soumis à une force aléatoire, nous prendrons en effet les conditions initiales $\theta(0) \neq 0$, $\frac{d\theta}{dt}(0) = 0$ et nous ne tiendrons pas compte de l'influence de F_a. Nous allons montrer que, si $\theta(0)$ est une variable aléatoire avec des propriétés statistiques bien choisies, les prédictions de ces deux modèles sont équivalentes.

Une résolution élémentaire du système (IV.42) avec $F_a = 0$ et $\frac{d\theta}{dt}$ (0) = 0, $\theta(0) \neq 0$ donne en effet :

$$\theta^{2}(t) = \frac{\theta^{2}(0)}{(\lambda^{-} - \lambda^{+})^{2}} (\lambda^{-})^{2} e^{2\lambda^{+}t}$$
(IV.43)

pour des temps assez longs pour que la condition $e^{\lambda^+ t} >> 1 >> e^{\lambda^- t}$ soit remplie (λ^+ et λ^- sont, rappelons-le, de signes opposés). Cette condition exprime simplement que nous ne nous intéressons à l'état du système que pour des temps tels qu'un nombre de photons grand devant 1 (mais petit devant N régime linéaire oblige) ait été émis. Pour des temps plus courts, en effet, l'évolution du système n'est strictement pas détectable.

Pour des temps du même ordre, l'expression (IV.40) du nombre moyen de photons émis s'écrit :

$$\langle \hat{b}^{+}(t) \hat{b}(t) \rangle = \frac{\Omega_{N}^{2}}{(\lambda^{-} - \lambda^{+})^{2}} \left[1 + \frac{\omega}{2\lambda^{+}Q} \right] e^{2\lambda^{+}t}$$
(IV.44)

Les valeurs moyennes obtenues sur des ensembles de trajectoires classiques coincideront donc avec les moments de $\tilde{b}(t)$ à condition de choisir pour $\theta(0)$ une statistique gaussienne de valeur moyenne $\overline{\theta_0}$ telle que :

$$\frac{N\overline{\theta}^{-2}}{4} = \Omega_{N}^{2} (\overline{n} + 1) \left[1 + \frac{\omega}{2\lambda^{+}Q} \right] \frac{1}{(\lambda^{-})^{2}} = \overline{n} + 1$$
 (IV. 45)

c'est-à-dire :

$$\overline{\theta_{o}} = 2 \sqrt{\frac{\overline{n+1}}{N}}$$
(IV.46)

(le nombre moyen de photons émis à l'instant t dans une trajectoire classique est $\frac{N\theta^2(t)}{4}$).

Il est donc complètement équivalent, du point de vue des trajectoires classiques, de considérer le démarrage du système depuis sa position d'équilibre instable sous l'influence d'un bruit ou de prendre seulement comme condition initiale une petite polarisation atomique de statistique gaussienne et de ne pas tenir compte du bruit. Le calcul pratique des trajectoires classiques s'en trouve grandement simplifié. Il suffit de procéder à deux tirages au sort par trajectoire classique : celui de la phase initiale $\phi(0)$, dont toutes les valeurs entre 0 et 2π sont également probables, et celui de l'angle initial $\theta(0)$ obéissant à une loi de probabilité donnée par :

$$P\left(\theta(0)\right) \quad d\theta(0) = \frac{2\theta(0)}{\overline{\theta_0}^2} e^{-\theta^2(0)/\theta_0^2}$$
(IV.47)

Remarquons de plus que la phase $\phi(0)$ n'intervient pas dans le calcul des moments d'ordre pair (nombre de photons émis en particulier) et n'intervient dans les moments d'ordre impair que pour les annuler.

L'utilisation de ces conditions initiales constitue en fait le modèle, largement répandu dans le contexte de la superradiance, du "tipping angle" (²³) que nous avons justifié dans un cadre assez général (T \neq 0, valeurs quelconques de Ω_{N} et ω/Q).

La procédure que nous venons de décrire pour reconstituer la statistique des trajectoires classiques sans avoir à procéder à un nombre prohibitif de tirages au sort n'est pas la seule possible. Il serait tout aussi légitime de prendre comme condition initiale une polarisation atomique nulle et un petit champ non nul de statistique gaussienne (c'est-à-dire une vitesse initiale non nulle pour θ) ou de prendre simultanément une polarisation et un champ non nuls. Dans tous les cas, si les valeurs moyennes des statistiques initiales sont bien choisies, les moyennes de trajectoires classiques redonnent bien le résultat quantique aux temps suffisamment longs pour que e $^{\lambda+t}$ >> 1. Les signaux ne coincident pas nécessairement aux temps courts, mais le nombre de photons émis est alors si faible que cette différence n'est absolument pas détectable. (On peut montrer que les prédictions des trajectoires classiques et l'expression quantique (IV.40) temps courts également si, dans le régime fortement coincident aux amorti $\Omega_{N} << \omega/Q$, on prend comme conditions initiales $\frac{d\theta}{dt} = 0, \ \theta \neq 0$ et, dans le régime fortement oscillant $\Omega_{N} >> \omega/Q$, $\frac{d\theta}{dt} \neq 0$ et $\theta = 0$, (0) correspondant alors à la précession de Rabi dans le champ de n+1at photons). Les signaux effectivement observables ne dépendant pas du type

de conditions initiales, ce choix est uniquement déterminé par des arguments de simplicité de calcul. On peut, bien entendu, se poser le problème de savoir quelle est la condition initiale qui donne la meilleure description de la réalité physique. Cette discussion est certainement très semblable à celle des rôles respectifs des fluctuations de polarisation atomique et des fluctuations du champ dans la description de l'émission spontanée (¹¹⁹).

Les trajectoires classiques que nous venons d'introduire ont en fait une signification physique profonde, directement reliée à la description d'une réalisation unique de l'expérience d'émission spontanée collective. Supposons en effet que nous effectuions une mesure du champ -ou de la polarisation atomique- à un instant où un nombre de photons grand devant n a été émis, instant qui peut coincider avec le domaine de validité du régime linéaire si $n \ll b$ > $\ll N$, c'est-à-dire si le nombre d'atomes est très grand. Immédiatement après une telle mesure, l'état du système est sans fluctuations. C'est là une conséquence directe du postulat de la mesure. De plus, le nombre de photons émis étant grand devant n, la force aléatoire F_{a} , dont l'"amplitude" est de l'ordre de \overline{n} , a une influence négligeable sur l'évolution du système à partir de cet instant. L'évolution restera donc complètement déterministe après cette mesure initiale et sera décrite par une des trajectoires classiques possibles. Donc, si on peut mesurer, en une seule réalisation de l'expérience, le champ émis par exemple on obtient une trajectoire classique. Cette trajectoire ne sera pas la même d'une réalisation de l'expérience à l'autre et les quantités que nous fournit la mécanique quantique correspondent en fait à la moyenne de signaux obtenus pour un grand nombre de réalisations différentes de l'expérience.

Bien sûr, l'introduction des trajectoires classiques ne nous a rien appris sur l'évolution du système que nous ne sachions déjà grâce à la résolution explicite des équations de Heisenberg. L'intérêt principal de cette notion de trajectoires classiques est qu'elle permet de traiter simplement le régime non linéaire de l'émission.

2) Régime non linéaire (nombre de photons émis de l'ordre de N)

Quand le nombre de photons émis est de l'ordre du nombre d'atomes N, la description précédente de l'évolution du système en termes d'équations linéarisées n'est bien sûr plus valable.

On peut toutefois faire une simplification importante dans ce régime. Ainsi que nous venons de le souligner, la force de Langevin F_a devient négligeable dès que le système a émis plus de n photons, c'est-à-dire bien avant qu'on ne sorte du régime linéaire (si N >> n). L'évolution du système est donc complètement déterministe dans la phase non linéaire.

Il est donc légitime de considérer que, dans ce régime, le système est décrit par une des trajectoires classiques (⁷⁹). Il n'est bien entendu plus possible d'approcher la polarisation atomique par $\theta e^{i\phi}$: D⁺ et D⁻ correspondent ici à $\frac{N}{2} \sin \theta e^{\pm i\phi}$ et D³ à $\frac{N}{2} \cos \theta$. Il est élémentaire d'éliminer le champ électrique $\overset{\circ}{\mathcal{E}}$ dans les équations de Bloch-Maxwell non linéaires. On obtient alors le système d'équations régissant l'évolution de θ et ϕ :

$$\frac{d^{2}\theta}{dt^{2}} + \frac{\omega}{2Q} \frac{d\theta}{dt} - \Omega_{N}^{2} \sin \theta = 0 \qquad (IV.48)$$

$$\frac{d\phi}{dt} = 0 \qquad (IV.49)$$

équations formellement analogues à celles d'un pendule amorti dans un champ de gravitation constant.

Le problème de l'émission collective dans la cavité est donc formellement analogue au problème du basculement d'un pendule, initialement dans sa position d'équilibre instable $\theta = 0$ et soumis à un petit couple aléatoire qui devient négligeable devant le couple gravitationnel dès que l'angle du pendule a varié de façon significative (c'est-à-dire dès que beaucoup plus de n photons ont été émis).

Les valeurs moyennes de la mécanique quantique sont obtenues à partir d'un ensemble de trajectoires classiques, solution^s des équations (IV.48) et (IV.49) avec les conditions initiales aléatoires définies par les équations (IV.46) et (IV.47).

La forme des trajectoires classiques dépend bien entendu des valeurs relatives de ω/Q et $\Omega_{_{\rm N}}.$

Si $\Omega \sqrt{N}$ est très grand devant ω/Q , ces trajectoires sont fortement oscillantes, ce qui correspond, dans le point de vue de Schrödinger, à une suite de cascades et de remontées dans l'échelle des niveaux de Dicke. En d'autres termes, le champ émis est réabsorbé par les atomes qui subissent une sorte d'auto-nutation de Rabi. L'ordre de grandeur de la période de ces oscillations $(1/\Omega \sqrt{N})$ est bien celui que nous avions déduit du formalisme de l'atome habillé (paragraphe IV.A.1).

En revanche, dans une cavité fortement amortie ($\omega/Q >> \Omega_N$), le pendule est dans le régime surcritique et l'évolution est monotone entre $\theta = 0$ et $\theta = \pi$. Ceci correspond à la cascade irréversible dans l'échelle des niveaux de Dicke décrite dans le point de vue de Schrödinger par l'équation pilote (IV.21) (voir paragraphe IV.A.2).

Il n'existe pas de solution analytique générale pour les oscillations de grande amplitude d'un pendule amorti. On doit donc souvent re contenter de calculer numériquement les trajectoires classiques et leurs valeurs moyennes.

Soit θ ($\theta(0)$, t) la trajectoire classique correspondant à la condition initiale $\theta(0)$. La probabilité $\rho_{M}(t)$ de trouver le système à l'instant t dans l'état $|J, M \rangle$ est alors :

$$\rho_{M}(t) = \int P\left(\theta(0)\right) \quad \delta\left[M - \frac{N}{2}\cos\theta\left(\theta(0), t\right)\right] \quad d\theta(0)$$
(IV.50)

Cette expression n'est calculable que numériquement dans le cas du régime oscillant. Il existe cependant une expression analytique de $\rho_M(t)$ dans le cas du pendule fortement amorti.

Dans le cas des amortissements forts, on peut en effet, dans l'équation (IV.48), négliger le terme d'accélération $\frac{d^2\theta}{dt^2}$ devant le terme de frottement visqueux. L'équation d'évolution de θ se réduit alors à :

$$\frac{d\theta}{dt} = 2\Omega_{N}^{2} \frac{\omega}{Q} \sin \theta = \frac{1}{2T_{p}} \sin \theta \quad (IV.51)$$

où T $_{\rm R}$ est le temps caractéristique de l'émission spontanée collective déjà introduit à plusieurs reprises.

Cette équation, avec la condition initiale $\theta(0)$ et $\frac{d\theta}{dt}$ (0) = 0, admet la solution bien connue en sécante hyperbolique :

$$\cos \theta \left(\theta(0), t \right) = - Th \left((t - t_0) / 2T_R \right) \quad (IV.52)$$

avec

$$\operatorname{Th}\left(t_{O}^{2}/2T_{R}\right) \cong t_{O}^{2}/2T_{R} = \cos\left(\theta(0)\right) \qquad (IV.53)$$

En remplaçant $\theta(\theta(0), t)$ par cette solution dans l'équation (IV.50), nous trouvons :

$$\rho_{M}(t) = \int \frac{2\theta(0)}{\theta_{0}^{2}} e^{-\theta^{2}(0)/\overline{\theta_{0}}^{2}} \delta \left[M + \frac{N}{2} \operatorname{Th}\left\{\frac{(t - t_{0})}{2T_{R}}\right\}\right] d\theta(0)$$
(IV.54)

On peut vérifier aisément, en effectuant l'intégration contenue dans (IV.54), que cette expression de $\rho_{\rm M}$ (t) coincide bien avec celle obtenue par résolution de l'équation pilote dans ce régime, dans le point de vue de Schrödinger. L'aspect des variations de cette distribution de probabilité, représentée sur la figure 19, a déjà été décrit en détail dans le paragraphe IV.A.2.

Ainsi que nous venons de le voir, une des caractéristiques essentielles du phénomène d'émission spontanée collective est l'existence de <u>fluctuations macroscopiques</u> tout au long de l'évolution. Ces fluctuations reflètent le caractère aléatoire des tous premiers instants de l'émission pendant lesquels le système quitte sa position d'équilibre instable. Il se comporte alors comme un <u>amplificateur linéaire</u> du bruit aléatoire gaussien de nature quantique (T = 0 K) ou thermique, qui conserve donc les propriétés statistiques de ce bruit : dans le régime linéaire, le nombre de photons émis obéit à une statistique de Bose-Einstein, avec une température exponentiellement croissante en fonction du temps. Au fur et à mesure que l'émission se produit, l'inversion de population change et l'amplification sature. Cette saturation se traduit par la distorsion de la statistique du nombre de photons émis, qui cesse d'être exponentielle aux temps longs (voir figure 19), tout en restant univoquement liée à la statistique du bruit initial.

Ces fluctuations macroscopiques de l'émission existent dans tous les systèmes superradiants. Dans le cas de la superradiance "ordinaire", c'est-à-dire dans le domaine optique et en l'absence de cavité, l'analyse théorique de ces fluctuations est toutefois rendue délicate par les effets de diffraction -qui couplent des modes différents du champ- et par les effets de propagation (⁵⁸). Il est alors très difficile de calculer les trajectoires classiques et même de déterminer les conditions initiales reproduisant la statistique réelle. On doit en général se livrer à d'énormes calculs numériques prenant en compte -aussi exactement que possible- ces différents effets. De plus, la comparaison entre théorie et expérience n'est souvent que qualitative : il est difficile de préparer un échantillon dont la forme et la population totale soient parfaitement contrôlées. En revanche, dans le cas que nous venons de discuter, le fait que le système soit couplé à un seul mode du champ simplifie considérablement l'analyse théorique et toutes les quantités physiques mesurables peuvent être calculées avec toute la précision souhaitée. Nous verrons de plus, dans le paragraphe IV.C, que le système expérimental décrit dans le chapitre II permet de vérifier avec précision les prédictions de cette théorie.

Pour conclure ce paragraphe, nous voudrions souligner que le formalisme développé ici dans le point de vue de Heisenberg peut se généraliser aisément à des situations où tous les atomes ne sont pas couplés de la même manière au champ. Il est alors possible de décrire l'évolution d'un système dont les dimensions sont plus grandes que λ , c'est-à-dire pour lequel tous les $f(\vec{r}_i)$ de l'équation (IV.3) ne sont pas égaux (²⁸), de tenir compte du mouvement des atomes à travers le mode ou d'une éventuelle dispersion des fréquences atomiques due à l'effet Doppler ou à l'effet Stark. L'idée principale de cette généralisation est de diviser l'échantillon atomique en classes, correspondant chacune à une valeur définie du couplage avec le champ et de la fréquence atomique (une procédure qui n'est bien entendu possible que si N >> 1). A chacune de ces classes on peut associer un vecteur de Bloch, représentant la polarisation atomique dans la classe considérée. Tous ces vecteurs de Bloch sont couplés au même champ, avec seulement des constantes de couplage ou des conditions de résonance différentes. Les équations de Bloch-Maxwell des trajectoires classiques constituent alors un système différentiel décrivant la précession des vecteurs de Bloch dans le champ et l'évolution du

champ sous l'influence de la somme vectorielle des polarisations atomiques et des termes de relaxation. On peut également prendre comme conditions initiales pour ce système d'équations une petite polarisation atomique. Celle-ci est déterminée par la phase linéaire de l'évolution pendant laquelle chaque classe peut être décrite comme un oscillateur harmonique inversé, couplé à une "force" fluctuante dont les propriétés statistiques sont bien connues. Une résolution, numérique en général, des équations de Bloch-Maxwell avec ces conditions initiales fournit alors l'évolution des quantités physiques intéressantes.

Un cas particulièrement intéressant que permet de traiter cette généralisation est celui où deux échantillons atomiques, de dimension petite devant λ , sont préparés simultanément dans la cavité, l'un dans un ventre du champ électrique ($f(\vec{r}) = 1$), l'autre en un point tel que $f(\vec{r}) = 1/2$. Le vecteur de Bloch de la première classe tourne alors à une vitesse double de celle du second. L'état final du système ne peut donc correspondre à une situation où les deux vecteurs de Bloch sont simultanément dans leur position d'équilibre stable ($\theta = \pi$). L'angle des deux vecteurs à l'équilibre dépend, bien entendu, des populations relatives dans les deux classes (c'est-à-dire du "poids" des pendules). Il peut donc rester, à la fin de l'évolution, un nombre appréciable d'atomes dans le niveau supérieur de la transition (30% quand les populations des deux classes sont égales). L'équilibre atteint est en fait, contrairement au cas d'une seule classe, un équilibre dynamique : il existe, pour chaque classe, une polarisation importante ($\theta \neq \pi$), mais ces deux polarisations interfèrent destructivement et le champ dans la cavité est nul. A l'heure où cous écrivons ces lignes, ce phénomène de superradiance limitée -ou subradiance (120) - n'a pas encore été mis en évidence expérimentalement (à cause de quelques difficultés d'ordre purement technique).

C) <u>Observation de l'émission collective d'atomes de Rydberg dans</u> une cavité résonnante : un test quantitatif de la théorie

Nous avons pu, grâce à l'appareillage expérimental décrit au chapitre II, observer l'émission collective d'un échantillon d'atomes de Rydberg sur une transition entre niveaux voisins $(nS_{1/2} \rightarrow n'P_{1/2})$ à l'intérieur d'une cavité résonnante $\binom{25}{26}\binom{27}{28}\binom{29}{29}\binom{121}{122}\binom{123}{124}$.



Signaux micro-onde émis par N $\sim 10^5$ atomes sur la transition 33S \Rightarrow 32P_{1/2}. On a représenté ici le signal de battement avec Figure 20 : un oscillateur local décalé de 130 MHz par rapport à la fréquence atomique, redressé et filtré. Chacune des courbes représente une réalisation unique de l'expérience.

Un appareil idéal permettrait d'enregistrer, pour une seule réalisation de l'expérience, l'ensemble de l'évolution : on peut ainsi avoir accès aux trajectoires classiques mentionnées plus haut. La technique d'analyse des populations (§ II.D) détruisant le système, il est nécessaire de détecter le champ émis, lequel est directement relié à la dérivée de l'énergie atomique. Il suffit pour cela de coupler le mode de la cavité à un guide d'onde par l'intermédiaire d'un petit trou percé au centre de l'un des miroirs et d'utiliser un récepteur hétérodyne très sensible (¹²⁵) réalisant le battement entre le champ atomique et celui d'un oscillateur local, décalé d'une centaine de Mégahertz par rapport à la fréquence atomique. Le signal de battement est alors filtré et amplifié. La température de bruit du détecteur que nous avons utilisé étant assez élevée, le signal n'est observable que pour un échantillon d'une centaine de milliers d'atomes. L'enveloppe du battement observé représente alors la dérivée de la trajectoire classique pour l'énergie atomique. La figure 20 présente quelques-uns de ces signaux. La comparaison quantitative précise avec les prédictions théoriques reste toutefois assez difficile. Le nombre d'atomes est en effet un paramètre assez mal contrôlé. De plus, pour observer le signal d'une seule réalisation de l'expérience, il est nécessaire d'éliminer le bruit au moyen d'un filtre de bande très étroite (\sim 1 MHz) centré autour de la fréquence de battement. La dépendance temporelle du signal est alors assez fortement distordue par les constantes de temps associées à ce filtrage (de l'ordre de 100 ns). Il devient alors très difficile, par exemple, de distinguer à coup sûr les régimes surcritique et oscillatoire de l'émission atomique. L'intérêt principal de cette technique est cependant que, contrairement à la détection des populations, elle est sensible à la phase et à la polarisation du champ émis (le guide d'onde rectangulaire couplant la cavité au mélangeur se comporte comme un analyseur de polarisation micro-onde). Quelques expériences qui utilisaient cette propriété ont été réalisées (²⁹). Elles ont déjà été décrites en détail dans (²²) et (²⁹). Nous n'y reviendrons donc que dans l'appendice 4.

Une comparaison plus quantitative avec les prédictions du modèle est possible en utilisant les méthodes de détection des populations atomiques et d'échantillonnage par l'électrode de trempe décrites dans le chapitre II. L'évolution étant reconstruite à partir d'un grand nombre de



Figure 21: Evolution temporelle de l'énergie atomique moyenne (traits pleins :
signal expérimental; pointillés : signal théorique). Données enre-
gistrées sur la transition $36S_{1/2} \rightarrow 35P_{1/2}$ (82.052 GHz) pour N =
2000, 19000, 27000, 40000 atomes dans les courbes a), b), c) et d)
respectivement. La réabsorption du champ émis est clairement visi-
ble sur les courbes b), c) et d).

réalisations de l'expérience, on n'a pas accès avec cette technique aux trajectoires classiques mais aux valeurs moyennes au sens de la mécanique quantique ainsi qu'aux propriétés statistiques de la distribution autour de ces valeurs moyennes.

Il faut bien entendu prendre quelques précautions pour réaliser, de manière reproductible, un système aussi proche que possible du modèle idéal que nous avons étudié théoriquement dans les paragraphes précédents.

On peut s'affranchir des fluctuations d'intensité et de fréquence des lasers à colorant qui sont à l'origine d'une dispersion relative du nombre N d'atomes excités par chaque impulsion de l'ordre de 20 à 30%. Il suffit pour cela, comme nous pouvons mesurer la population absolue totale à la fin de l'interaction avec le mode de la cavité, de sélectionner les impulsions laser ayant donné une population totale comprise dans un petit intervalle fixé à l'avance. On peut ainsi réduire la dispersion relative à quelques %. Cette procédure n'est bien sûr possible en temps réel (10 impulsions par seconde) que grâce au calculateur couplé à l'expérience. De plus, les lasers sont focalisés de telle manière que le diamètre de l'échantillon atomique soit beaucoup plus petit que λ (diamètre de la tache focale de l'ordre de 100 μ) et le jet atomique est diaphragmé pour que la longueur de cet échantillon soit beaucoup plus petite que le diamètre du mode de la cavité (qui est de l'ordre de quelques millimètres à un centimètre). On choisit aussi en général de n'étudier que des systèmes dont les constantes de temps d'évolution sont petites devant le temps de transit Δt à travers le mode de $\dot{}$ la cavité, c'est-à-dire, en pratique, de l'ordre de 500 ns à 1 µs .L'approximation qui consiste à négliger le mouvement des atomes à travers le mode est alors tout à fait légitime.

Un premier type d'expérience consiste donc à mesurer le nombre <u>moyen</u> d'atomes désexcités en fonction du temps. Il est illustré sur la figure 21 où on a porté l'enregistrement, en fonction du temps, de la population moyenne relative du niveau excité, pour quatre valeurs de la population totale N (celle-ci est fixée à ±10% près par la méthode de sélection évoquée plus haut). Ces données ont été prises sur la transition $36S_{1/2} \rightarrow 35P_{1/2}$,



Figure 22:Histogrammes de la proportion d'atomes désexcités à un temps
fixé dans le régime surcritique de l'émission superradiante.
Chaque histogramme correspond à 900 impulsions laser excitant
 $3200 \pm 5\%$ atomes dans le niveau $29S_{1/2}$. La cavit' est réson-
nante sur la transition $29S_{1/2} \div 28P_{1/2}^{1/2}$ à 162 GHz. Un champ
magnétique est utilisé pour isoler un système à deux niveaux.
Les temps sont exprimés en fonction du délai de l'émission
t
 $_{D}$ = 450 ns. Les courbes superposées aux histogrammes repré-
sentent la distribution théorique.

à 82.052 GHz, en présence d'un champ magnétique pour isoler un système à deux niveaux (voir § II.B). Le temps caractéristique d'amortissement de l'énergie électromagnétique dans la cavité est ici $Q/\omega = 200$ ns. Cette valeur assez élevée a été obtenue avec une cavité de finesse modérée (f = 2000), mais de grande dimension (L = 60 mm). La fréquence de Rabi dans le champ d'un photon est, dans ce cas, $\Omega = 1.3 \ 10^5 \ {\rm s}^{-1}$. Pour la valeur la plus faible de N (2000 atomes), la condition $\Omega \sqrt{N} \ll \omega/Q$ d'obtention du régime surcritique est remplie et on observe bien une décroissance monotone de la population du niveau excité, avec la forme caractéristique de la solution en sécante hyperbolique du problème de la superradiance. Les autres courbes (N = 19000, 27000, 40000) correspondent à $\Omega \sqrt{N} \gtrsim \omega/Q$ et les oscillations de l'énergie atomique dues à la réabsorption du champ émis deviennent clairement visibles (c'est là, à notre connaissance, la première mise en évidence de cet effet de "pendule optique"oscillant).

Les courbes en pointillé correspondent aux prédictions théoriques obtenues par trajectoires classiques calculées numériquement, selon les prescriptions de l'équation (IV.50). L'accord est tout à fait acceptable, d'autant plus qu'aucun paramètre ajustable ne fut utilisé dans ce calcul théorique. Nous pouvons en effet mesurer ou calculer indépendamment tous les paramètres importants (Q, d, N ...). La principale cause d'incertitude est la détermination absolue de la population (\pm 30%).

L'étude expérimentale que nous avons réalisée sur les propriétés statistiques de l'émission superradiante est résumée sur les figures 22 et 23. La figure 22 représente les histogrammes expérimentaux, correspondant à 900 réalisations de l'expérience, donnant la probabilité d'avoir, à un instant donné, un certain pourcentage d'atomes désexcités, c'est-à-dire la fonction $\rho_{\rm M}(t)$ définie par l'équation (IV.50). Ces données furent enregistrées sur la transition $29S_{1/2} \rightarrow 28P_{1/2}$ à 162 GHz, en présence d'un champ magnétique. Le nombre d'atomes est fixé à 3200 ± 5% par la procédure de sélection. Pour une telle population totale et la cavité utilisée, la condition $\Omega \sqrt{N} \ll 0$ est largement remplie et nous sommes dans le régime surcritique : la valeur moyenne des histogrammes évolue de façon monotone. Les temps auxquels sont pris ces histogrammes sont exprimés ici en fonction du délai de l'émission superradiante, $T_{\rm p}$, défini par l'équation (IV.24) qui



Figure 23 :

Histogrammes de la proportion d'atomes désexcités dans le régime oscillatoire de l'émission (transition $33S_{1/2} \rightarrow 32P_{1/2}$ à 107 GHz avec N = 2.6 $10^5 \pm 10\%$, $\Omega \sqrt{N} = 7 \ 10^7 \ s^{-1}$, $Q/\omega = 90 \ ns$). Chaque histogramme correspond à 300 impulsions laser. La dégénérescence Zeeman de la transition n'est pas levée ici. Les courbes superposées aux histogrammes représentent la distribution théorique. Le caractère oscillant de l'énergie moyenne et des fluctuations est clairement apparent.

vaut 450 ns dans ces conditions. Pour les temps courts, les histogrammes présentent bien une dépendance exponentielle, caractéristique de l'amplification linéaire d'un champ thermique (la température du mode de la cavité est 300 K dans cette expérience, correspondant à un nombre de photons thermiques $\overline{n} = 38$; l'influence de l'émission spontanée dans la phase de démarrage est donc négligeable). La distorsion de la statistique quand le nombre de photons émis devient de l'ordre de N, que nous avons déjà décrite dans le paragraphe IV.A.2, est elle aussi bien apparente. Les courbes superposées aux histogrammes présentent les prédictions théoriques déduites des équations (IV.23) ou (IV.54). Elles ont été, ici aussi, calculées sans l'aide d'aucun paramètre ajustable (toutes les quantités essentielles sont connues ou mesurées). L'accord excellent avec les histogrammes expérimentaux constitue, à notre connaissance, le premier test quantitatif précis du modèle de la superradiance de Dicke.

La figure 23 présente des histogrammes similaires (portant sur 300 impulsions laser), obtenus dans le régime oscillant de l'émission collective. Ces données ont été obtenues sur la transition $33S_{1/2} \rightarrow 32P_{1/2}$ à 107.9 GHz, avec un nombre d'atomes total 2N = 5.2 $10^5 \pm 10^8$. Il a été impossible ici d'utiliser un champ magnétique pour isoler un système à deux niveaux. L'observation du régime oscillant nécessite en effet ici que nous nous placions très au-dessus du seuil de la superradiance à résonance (quelques centaines d'atomes seulement) . Comme nous ne pouvons appliquer qu' un champ magnétique de quelques dizaines de gauss et comme la résonance d'une cavité n'est que lorentzienne, la transition atomique déplacée par effet Zeeman est suffisamment proche de la résonance pour atteindre le seuil de superradiance. On a alors un mélange de deux signaux d'évolution temporelle dramatiquement différente, ce qui brouille complètement les propriétés statistiques. Nous travaillons donc en fait avec deux systèmes d'atomes émettant simultanément sur des transitions indépendantes puisque de polarisations croisées pour chacune de ces classes N = 2.6 10⁵ atomes, $\Omega \sqrt{N} = 7 10^7 \text{ s}^{-1}$ et Q/ω = 90 ns). Il est alors clair que la distribution statistique obtenue est le carré de convolution de celle que l'on calcule pour une seule classe. $\{$ Si P₁(n) est la probabilité d'avoir émis n photons sur une classe, la probabilité P2(n) d'en émettre n sur deux transitions simultanées est $P_2(n) = \sum P_1(n_1) P_1(n - n_1)$. $n_1 = 0$



Figure 24 : Evolution temporelle de l'énergie atomique moyenne dans les conditions de la figure 23. Les traits verticaux indiquent les instants auxquels ont été pris les histogrammes de la figure 23. La ligne pointilléereprésente la dépendance théorique.



Figure 25 : 15 trajectoires classiques dans les conditions des figures 23 et 24 correspondant à des valeurs également espacées de l'angle initial $\theta(0)$.

L'évolution de la valeur moyenne de l'énergie atomique en fonction du temps est représentée sur la figure 24 (les lignes verticales indiquant les instants auxquels ont été pris les histogrammes). Le caractère oscillant de l'évolution est très clairement apparent. On peut noter également, sur la figure 23, que la largeur des histogrammes est, elle aussi, une fonction oscillante du temps : elle est grande quand l'énergie atomique est minimale et nettement plus faible quand l'énergie atomique passe par un maximum. Ce caractère oscillant des fluctuations avait déjà été mentionné dans le paragraphe IV.A.1, lors de l'étude des oscillations dans une cavité sans pertes. Il s'explique très clairement en termes de trajectoires classiques. La figure 25 présente par exemple ¹⁵ trajectoires classiques correspondant à des valeurs également réparties de l'angle initial $\theta(0)$. Ces trajectoires se déduisent en fait toutes les unes des autres par une simple translation temporelle (en première approximation du moins). Il est donc clair que les fluctuations doivent être maximales à l'instant où la vitesse des pendules est la plus élevée. En revanche, quand la vitesse de ces pendules s'annule, l'écart de position entre les plus lents et les plus rapides diminue très sensiblement. Les fluctuations sont donc minimales à ces instants.

Les courbes superposées aux histogrammes de la figure 23 et à la valeur moyenne expérimentale de la figure 24 présentent les prédictions numériques de l'équation (IV.50) qui se trouvent en bon accord avec les résultats expérimentaux. La forme caractéristique de ces distributions théoriques, avec de nombreux points singuliers, est liée au caractère non monotone de l'émission : les extréma du taux de transfert en fonction du temps se traduisent par une divergence des distributions de probabilité aux mêmes instants. Ces divergences sont éliminées, en partie, par la convolution de deux histogrammes identiques (deux transitions simultanées) et, en partie, par un lissage des histogrammes théoriques par convolution avec une gaussienne large, en unités de taux de transfert, de quelques %.

L'émission collective des atomes de Rydberg que nous avons présentée ici n'est pas autre chose en fait qu'un effet maser transitoire. Nous l'avons observé sur un grand nombre de transitions couvrant la gamme de fréquences de 50 GHz à 1.7 THz. Un des aspects les plus frappants de cet effet

maser est le tout petit nombre d'atomes émetteurs. La première courbe de la figure 21 correspond à 2000 atomes seulement dans l'échantillon, un nombre à rapprocher des 10^{10} à 10^{20} atomes nécessaires pour l'obtention d'un effet maser sur une transition "ordinaire". Le seuil de l'oscillation maser correspondant à la condition $T_R \sim \Delta t$ peut être atteint pour quelques atomes seulement si Q est assez grand. Dans les conditions d'observation de l'accélération de l'émission spontanée, par exemple, on a $\Gamma^{Cav} \Delta t \sim 0.15$. La condition $T_R \sim \Delta t$ est donc remplie pour N ~ 6 (nous avons en effet observé, dans ces conditions, des transferts de population totaux pour N ~ 10). On peut donc voir l'accélération de l'émission spontanée sint spontanée comme le régime limite d'un maser où le nombre d'atomes émetteurs n'est plus que de 1 !

D) Absorption collective par des atomes de Rydberg dans une cavité résonnante

Les effets radiatifs collectifs dans une cavité résonnante ne sont pas restreints au seul phénomène de superradiance que nous venons de décrire en détail. Ils se manifestent aussi dans des expériences d'absorption où le système, partant de sa position d'équilibre stable ($\theta = \pi$), absorbe de l'énergie de la part d'un champ cohérent ou thermique stocké dans la cavité. L'amortissement radiatif collectif des dipôles atomiques sera, dans ce cas, responsable d'une <u>limitation de l'absorption</u>, contrepartie de l'accélération de l'émission observée dans la superradiance (en d'autres termes, superradiance et subabsorption ne sont que les deux faces d'un même phénomène). Nous étudierons successivement dans ce paragraphe l'absorption d'un champ cohérent, produit par une source extérieure, et l'absorption du champ thermique dans la cavité (qui se révèlera être beaucoup plus intéressante que celle du champ cohérent).

1) Absorption d'un champ cohérent dans la cavité

Nous considérons ici l'absorption d'un champ cohérent par un système de N atomes à deux niveaux. Nous supposerons que le champ imposé est d'amplitude suffisante pour être très supérieur au champ thermique dans la cavité et pour être bien décrit par un champ classique d'amplitude $\dot{\zeta}$. Nous avons vu que, dans ces conditions, un atome unique dans la cavité subit

une précession de Rabi à la fréquence angulaire $\Omega_{R} = \frac{d \overset{*}{\not\sim}}{\not\sim}$. Comme le bruit thermique est négligeable, l'évolution du système est parfaitement classique et déterministe et peut être décrite en termes de vecteurs de Bloch par une équation de Bloch-Maxwell modifiée pour tenir compte du champ imposé. L'obtention de cette équation ne présente pas de difficultés. On trouve :

$$\frac{d^2\theta'}{dt^2} + \frac{\omega}{20} \frac{d\theta'}{dt} + \Omega_N^2 \sin \theta' = \frac{\omega}{20} \Omega_R \qquad (IV.55)$$

la phase ϕ étant constante et déterminée par celle du champ imposé. On a posé ici $\theta' = \pi - \theta$ (la condition initiale est donc $\theta' = 0$). Le régime d'évolution va, bien entendu, dépendre des valeurs respectives de Ω_R et Ω_N . La discussion étant plus simple dans le régime surcritique (et des données expérimentales n'ayant jusqu'ici été obtenues que dans ce régime), nous supposerons dans la suite $\Omega_N \ll 0$. Le terme d'accélération est alors négligeable et l'équation (IV.55) se réécrit :

$$\frac{d\theta}{dt} + \frac{1}{2T_R} \sin \theta = \Omega_R$$
 (IV.56)

où T_p est défini par (IV.1).

Si l'amortissement radiatif est négligeable, c'est-à-dire si $T_R << \frac{1}{\Omega_p}$, θ est sensiblement une fonction linéaire du temps :

 $\theta = \Omega_{R} t$ (IV. 57)

On observe alors un signal de précession de Rabi qui est le même que pour un atome isolé. Ceci justifie parfaitement que les signaux observés dans le paragraphe III.D.2 soient bien identiques à ceux qu'on obtiendrait pour N = 1. La population est en effet, dans ce cas, très faible et l'amortissement radiatif négligeable.

Si, en revanche, le nombre d'atomes est élevé : $T_R << \frac{1}{\Omega_R}$, l'amortissement radiatif est dominant. θ atteint alors de façon monotone une valeur d'équilibre définie par :



Figure 26: Signaux de précession de Rabi pour différentes valeurs de N
(transition $30S \rightarrow 30P_{\frac{1}{2}}$ à 134.284 GHz, puissance micro-onde
injectée 3 10^{-11} W - $\Omega_R/2\pi = 4.2$ MHz). La disparition des oscil-
lations pour N $\gtrsim 20000$ est due à l'amortissement radiatif collec-
tif des dipôles.

$$\sin \theta = 2T_R \Omega_R$$
 (IV.58)

L'atteinte de l'équilibre n'est exponentielle que si $\theta_{e} \ll 1$ (l'équation pouvant être linéarisée dans ce cas).

Cette disparition des oscillations de Rabi en présence d'un amortissement radiatif est déjà bien connue dans le domaine de la résonance magnétique nucléaire (¹⁰³). La seule nouveauté du système d'états de Rydberg est que cet effet est apparent pour de tous petits nombres d'atomes (quelques milliers, à comparer aux 10¹⁵ spins des expériences similaires en R.M.N.).

La figure 26 présente des signaux d'oscillations de Rabi (¹⁰²) -pourcentage d'atomes dans le niveau excité en fonction du temps- obtenus, sur la transition $30S_{1/2} \rightarrow 30P_{1/2}$ à 134.3 GHz par la méthode de l'électrode de trempe, pour quatre populations totales N et pour une puissance microonde constante (3 10^{-11} W incidents sur la cavité, c'est-à-dire $\Omega_{\rm R}$ = 4.2 MHz). Pour les plus faibles valeurs de N, la précession de Rabi est clairement observable (la disparition aux temps longs des oscillations est expliquée en détail dans le paragraphe III.D.2). En revanche, pour N \sim 20000, ce qui correspond bien à $\Omega_{\rm R}$ T_R \sim 1, les oscillations disparaissent et le système atteint de façon monotone sa position d'équilibre.

On peut remarquer que l'état d'équilibre atteint par le système à la fin de l'interaction avec le champ micro-onde correspond toujours, même dans le régime où les oscillations de Rabi ne sont plus visibles, à une proportion d'atomes excités de 1/2, contrairement aux prédictions de l'équation (IV.58).

La raison de ce désaccord est que, dans la formule (IV.58), nous avons implicitement négligé le mouvement des atomes à travers le mode. Les atomes quittent en effet la cavité à des instants légèrement différents, à cause de la dispersion des vitesses thermiques. Le couplage radiatif entre eux, responsable de la limitation de l'absorption cesse alors. Mais ils sont encore dans une région où le champ micro-onde est suffisamment fort pour qu'ils aient le temps de l'absorber. Une simulation numérique, tenant

compte de la dispersion des vitesses, donne en effet des résultats en bon accord avec ce qu'on observe dans l'expérience.

Nous allons maintenant discuter le cas plus intéressant de l'absorption d'un champ thermique.

2) Absorption collective du champ thermique dans la cavité

Nous considérons ici l'évolution d'un ensemble de N atomes à deux niveaux, initialement préparés dans le niveau |g > a l'intérieur d'une cavité amortie en équilibre thermodynamique à la température T.

Après un régime transitoire, le système atomique doit atteindre un équilibre thermodynamique avec le mode du champ, c'est-à-dire avec le réservoir à température T. L'équivalence de l'échantillon atomique avec un spin J = N/2 nous permet de préciser immédiatement quel est cet état d'équilibre. La probabilité ρ_p d'avoir p atomes excités à la température T est, d'après la distribution de Boltzmann :

$$\rho_{\rm p} = \frac{1 - \beta}{1 - \beta^{\rm N}} \beta^{\rm p}, \qquad (IV.59)$$

avec

$$\beta = \frac{\overline{n}}{1 + \overline{n}} = e^{-i \hbar \omega / k_{\rm B} T}$$
(IV.60)

(nous supposons ici que la cavité est exactement résonnante avec la tran^sition atomique : $\omega = \omega_0$).

Si le nombre de photons thermiques \overline{n} est négligeable devant N, le terme β^N dans $\rho_{_D}$ est négligeable devant 1 et on peut écrire :

 $\rho_{\rm p} = (1 - \beta) \beta^{\rm p} \qquad (IV.61)$

On reconnaît là une statistique de Bose-Einstein à la température T. Pourvu que le système atomique soit assez grand, la distribution statistique de l'excitation à l'équilibre est donc l'<u>exacte réplique</u> de celle du champ. En particulier, l'énergie atomique moyenne est, à l'équilibre, kT. Ce résultat est bien évidemment très différent de ce que nous obtiendrions si les atomes étaient couplés <u>indépendamment</u> au champ. Dans ce cas, en effet, <u>chaque atome</u> se met à l'équilibre à la température T donc, dès que $k_B^T \gg \not w$, prend l'énergie moyenne $\not w/2$. L'énergie totale absorbée par le système **est** $N \not w/2$, beaucoup plus grande que kT. Une autre façon d'obtenir ce résultat est de remarquer que, si l'échelle des niveaux d'énergie d'un système de N atomes indépendants comprend, elle aussi, N+1 niveaux, ceux-ci sont <u>très fortement</u> dégénérés (la dégénérescence du niveau médian est de l'ordre de 2^N). Cet énorme facteur de dégénérescence dans la distribution de Boltzmann favorise considérablement les niveaux médians de l'échelle et l'énergie moyenne absorbée est de l'ordre de $\frac{N}{2} \not w$. En d'autres termes, l'augmentation de l'entropie réalisée quand ces niveaux sont peuplés compense largement la perte d'énergie nécessaire pour les atteindre.

L'absorption faible d'énergie par un gaz d'atomes collectivement couplés au champ est, en fait, une conséquence des propriétés générales de la statistique de Bose-Einstein. En effet, tant que seules les propriétés radiatives sont concernées, les atomes de Rydberg sont indiscernables. Ils se comportent comme un gaz de Bose dont nous savons bien qu'il possède une <u>capacité calorifique très faible</u> : le système se met en équilibre avec le champ en absorbant une toute petite quantité d'énergie.

Ce type de raisonnement thermodynamique ne peut, bien sûr, nous donner que l'état d'équilibre du système. Pour étudier le régime transitoire d'approche de l'équilibre, il est nécessaire d'utiliser la description quantique du système dans le point de vue de Heisenberg. Cette approche est en fait une interprétation du phénomène en termes de mouvement brownien du vecteur de Bloch dans le champ thermique.

Nous avons vu que l'état d'équilibre correspond à l'absorption moyenne de n photons. Si N >> n, le système reste donc toujours très près de sa position d'équilibre stable et nous pouvons employer l'approximation de linéarisation consistant à écrire :

 $D^3 = -\frac{N}{2}$ 1 (IV.62)

En définissant alors, à l'exemple du § IV.B.1, c et c⁺ par :

$$c = \frac{D}{\sqrt{N}}$$

$$(IV.63)$$

$$c^{+} = \frac{D^{+}}{\sqrt{N}}$$

qui vérifient la relation de commutation standard $[c, c^+] = 1$, nous voyons que le système atomique est équivalent à un <u>oscillateur harmonique normal</u> (de fréquence positive) décrit par les opérateurs c et c⁺ et couplé à l'oscillateur harmonique amorti représentant le mode de la cavité.

Les équations de Heisenberg linéarisées s'écrivent, avec ces notations, en représentation d'interaction :

$$\frac{dc}{dt} = i\Omega_{N} \overset{\circ}{a}$$

$$\frac{da}{dt} = -\frac{\omega}{2Q} \overset{\circ}{a} + i\Omega_{N} \overset{\circ}{c} + \overset{\circ}{F}_{a}$$
(IV.64)

La résolution de ce système et le calcul de la fonction d'autocorrélation $\langle c^{+}(t) c(t) \rangle$ sont identiques à ceux décrits dans le § IV.B.1. Nous ne les reprendrons donc pas. On trouve :

$$\langle \overset{\circ}{c}^{+}(t) \overset{\circ}{c}(t) \rangle = \overline{n} \left[|H(t,0)|^2 + \frac{\omega}{Q} \int_{0}^{t} |H(t,t')|^2 dt' \right]$$
 (IV.65)

où le noyau intégral H est défini par :

$$H(t,t') = \frac{i\Omega_N}{\lambda^- - \lambda^+} \left[e^{\lambda^+ (t-t')} - e^{\lambda^- (t-t')} \right]$$
(IV.66)

 λ^{\pm} étant les fréquences propres du système différentiel (IV.64) :

$$\lambda^{\pm} = \frac{1}{2} \left[-\frac{\omega}{2Q} \pm \sqrt{\frac{\omega^2}{4Q^2} - 4\Omega_N^2} \right]$$
(IV.67)

 $(\lambda^{\pm}$ sont a priori complexes, contrairement au cas de l'émission collective).

Il est intéressant également dans ce cas de calculer le nombre moyen de photons dans le mode en fonction du temps, c'est-à-dire $\langle \stackrel{\sim}{a}^{+}(t) \stackrel{\sim}{a}(t) \rangle$. Ce calcul ne présente aucune difficulté, $\stackrel{\sim}{a}^{+}$ étant proportionnel à la dérivée de $\stackrel{\sim}{c}^{+}$. On trouve :

$$\langle \overset{\circ}{a}^{+}(t) \overset{\circ}{a}(t) \rangle = \overline{n} \left[|K(t,0)|^{2} + \frac{\omega}{Q} \int_{0}^{t} |K(t,t')|^{2} dt' \right]$$
 (IV.68)

avec

$$K(t,t') = \frac{i}{(\lambda^{-} - \lambda^{+})} \left[\lambda^{+} e^{\lambda^{+}(t-t')} - \lambda^{-} e^{\lambda^{-}(t-t')} \right]$$
(IV.69)

(K est proportionnel, bien sûr, à la dérivée de H par rapport à t-t').

 \sim (t) et à(t) étant des opérateurs aléatoires gaussiens, tous les moments de la distribution du nombre de photons ou du nombre d'atomes excités peuvent être calculés exactement à partir des formules (IV.65) et (IV.68).

On peut vérifier immédiatement que :

$$\langle \stackrel{\circ}{a}(0) \stackrel{\circ}{a}(0) \rangle = \langle \stackrel{\circ}{c}(\infty) \stackrel{\circ}{c}(\infty) \rangle = \langle \stackrel{\circ}{a}(\infty) \stackrel{\circ}{a}(\infty) \rangle = \overline{n}$$
 (IV.70)

On retrouve bien l'équilibre thermodynamique attendu.

La forme détaillée du régime transitoire dépend bien sûr des valeurs relatives de $\Omega \sqrt{N}$ et ω/Q : on a encore à distinguer les régimes oscillatoire et surcritique.

Si ω/Q << Ω / N, λ^\pm ont une partie imaginaire et sont voisins de :

.

$$\lambda^{\pm} = \pm i\Omega - \frac{\omega}{4Q}$$
 (IV.71)

On a alors :

$$\langle \hat{c}^{+}(t) \hat{c}(t) \rangle \cong \overline{n} \left[1 - (\cos^{2}\Omega_{N}t) e^{-\frac{\omega}{2Q}t} \right]$$
 (IV.72)



a) régime oscillatoire ω/Q = 0.2 Ω , 0 < t < 20/ Ω

b) régime surcritique ω/Q = 5 Ω , 0 < t < 10/ Ω

et

$$\langle \hat{a}^{+}(t) \hat{a}(t) \rangle = \overline{n} \left[1 - (\sin^{2}\Omega_{N}t) e^{-\frac{\omega}{2Q}t} \right]$$
 (IV.73)

Les valeurs de ces deux fonctions ont été représentées sur la figure 27-a, dans le cas $\Omega_N = 5 \frac{\omega}{Q}$. On remarque que l'énergie atomique et l'énergie du champ sont toutes deux des fonctions oscillantes du temps et évoluent en opposition de phase. En fait, pour des temps courts devant Q/ω , la somme de ces deux quantités est constante et égale à \overline{n} . Ceci indique simplement que la relaxation de la cavité ne peut pas fournir d'énergie plus vite que Q/ω . Les oscillations de l'énergie peuvent être comprises comme une précession de Rabi collective dans le champ thermique. Il faut noter toutefois que, contrairement aux expériences classiques de précession de Rabi comme celles que nous venons de décrire dans le paragraphe précédent, le champ est considérablement modifié par l'absorption atomique. En particulier, il est clair, sur la figure 27-a, que la température du rayonnement dans la cavité, qui est définie par :

$$\Theta_{\rm F}(t) = -\frac{\varkappa}{k} \left[\log \frac{\langle {\stackrel{\circ}{a}}^+(t) {\stackrel{\circ}{a}}(t) \rangle}{1 + \langle {\stackrel{\circ}{a}}^+(t) {\stackrel{\circ}{a}}(t) \rangle} \right]^{-1} ({\rm IV}.74)$$

<u>s'annule périodiquement</u> presque exactement (si $\Omega_N >> \frac{\omega}{Q}$). Le mode est ensuite réchauffé par l'émission atomique (et revient d'ailleurs à la température initiale une demi-période plus tard). Si on appliquait, à l'instant où $\langle a^+ a^- \rangle = 0$, une tension sur l'électrode de trempe, on pourrait ainsi préparer une cavité dont la température reste <u>très faible</u> pendant un temps de l'ordre de ω/Q . Ce serait un effet amusant à observer. Il ne l'a pas été jusqu'ici, car l'obtention du régime oscillant nécessite actuellement de grands systèmes (N $\sim 10^5$), sur lesquels l'absorption de n photons est un effet bien négligeable !

Si $\frac{\omega}{Q} >> \Omega \sqrt{N}$, l'évolution du système atomique est monotone. λ^{\pm} sont en effet toutes deux réelles et proches de :

$$\begin{cases} \lambda^{+} \cong -\frac{1}{2T_{R}} \\ \lambda^{-} \cong -\frac{\omega}{2Q} \end{cases}$$
(IV.75)

où la constante de temps $T_R = \left(4\Omega^2 \frac{Q}{\omega}\right)^{-1}$ est la constante de temps de l'émission superradiante si le système était initialement préparé dans le niveau excité.

On obtient alors, dès que
$$t \gtrsim \frac{Q}{\omega}$$
:
 $< c^{+}(t) c(t) > = n \begin{bmatrix} -t/T_R \\ 1 - e \end{bmatrix}$ (IV.76)

et

$$\langle \stackrel{\circ}{a}^{+}(t) \stackrel{\circ}{a}(t) \rangle = \overline{n} \begin{bmatrix} 1 - \frac{Q}{T_{R}\omega} & -t/T_{R} \end{bmatrix}$$
 (IV.77)

Les prédictions des équations exactes (IV.65) et (IV.68) sont représentées sur la figure 27-b, pour $\Omega_N = 0.2 \frac{Q}{\omega}$. Le nombre d'atomes excités atteint exponentiellement sa valeur d'équilibre, \overline{n} . L'énergie du mode du champ est extrêmement peu modifiée (modification relative maximale de l'ordre de $\frac{1}{T_R} \frac{Q}{\omega}$ au début de l'absorption). En d'autres termes, le réservoir peut ramener instantanément le mode à l'équilibre thermique après qu'un photon ait été absorbé par les atomes.

L'équation (IV.76) peut conduire à une interprétation très simple de l'absorption collective. Aux temps courts devant T_R , on peut en effet écrire :

$$\langle c^{+}(t) c(t) \rangle \approx \frac{\overline{nt}}{T_{R}} \approx \overline{n} N \Gamma^{cav} t$$
 (IV.78)

On peut donc définir -l'absorption totale étant proportionnelle à N- un taux d'absorption <u>par atome</u> W = $\overline{n} \Gamma^{cav}$, précisément égal à celui que nous obtiendrions pour un atome isolé (voir § III.C). Les atomes commencent donc à absorber le rayonnement comme s'ils étaient indépendants. Ceci est simplement dû au fait que, comme nous l'avons vu (formule (IV.11)), il n'existe pratiquement pas de corrélations entre les dipôles atomiques au voisinage des extrémités de l'échelle der niveaux de Dicke. Après un temps de l'ordre de T_R, le système s'écarte suffisamment du bas de l'échelle pour que ces corrélations apparaissent. L'absorption est alors en compétition


Figure 28: Nombre moyen de photons absorbés dans le mode de la cavité $\overline{\Delta N}$
en fonction de la population totale (transition $30S_{1/2} \xrightarrow{+} 30P_{1/2}$
à 134 GHz) pour deux températures du rayonnement : T = 300 K
(\overline{n} = 46; croix) et T = 900 K (\overline{n} = 140; triangles). Le temps
d'interaction est le temps de transit Δt = 3 µs. Les lignes
pointillées représentent le comportement théorique.

۰.

avec l'amortissement radiatif, dont le taux caractéristique est T_R^{-1} . La compétition entre ces deux phénomènes fait que le taux d'excitation d'un atome à l'équilibre est $WT_R = \frac{n}{N}$. Le nombre total d'atomes excités est donc n, en accord avec le raisonnement thermodynamique présenté au début de ce paragraphe.

Nous avons pu observer le régime surcritique de l'absorption collective du champ thermique dans une cavité (³⁰). Des atomes de sodium, préparés initialement dans le niveau $30S_{1_{\mathcal{K}}}$ absorbent le rayonnement thermique d'une cavité résonnante sur la transition $30S_{1/2} \rightarrow 30P_{1/2}$ à 134 GHz. On peut faire varier la température du mode de la cavité entre 300 et 900 K en utilisant les techniques décrites dans le paragraphe II.E. Nous mesurons en fait dans cette expérience le nombre moyen $\overline{\Delta N}$ d'atomes excités à la fin de l'interaction avec la cavité, en comparant les signaux d'ionisation obtenus avec une cavité résonnante et avec une cavité non résonnante (la condition de résonance est contrôlée au moyen de l'électrode de trempe utilisée immédiatement après l'impulsion laser). Nous avons effectué l'expérience sans appliquer de champ magnétique sur les atomes. Dans ce cas, nous avons deux systèmes d'atomes à deux niveaux absorbant chacun à l'équilibre n photons dans deux composantes du champ de polarisationsorthogonales. $\overline{\Delta N}$ vaut donc 2n si le système atteint l'équilibre (nous n'avons pas utilisé de champ magnétique, en fait, parce que l'existence de ce facteur 2 est un avantage certain quand il s'agit de détecter des absorptions aussi faibles). On peut déduire de la formule (IV.76) la dépendance de $\overline{\Delta N}$, dans ces conditions, en fonction de N :

$$\overline{\Delta N} = 2\overline{n} \begin{bmatrix} 1 - e & \frac{N\Gamma^{CaV} \Delta t}{2} \end{bmatrix}$$
(IV.79)

Le système atteint l'équilibre thermodynamique si N est assez grand.

Les valeurs expérimentales de ΔN en fonction de N sont représentées sur la figure 28, pour deux températures de la cavité : 300 K (croix) et 900 K (triangles). Les courbes en pointillé représentent les prédictions de l'équation (IV.79), avec n = 46 (300 K) et n = 140 (900 K).

Dans cette expérience, l'environnement de la cavité est à la température ambiante. A l'absorption du champ dans la cavité s'ajoutent alors



Figure 29:Histogramme du nombre de photons absorbés (T = 85 K,
 $30S_{1/2} \xrightarrow{+} 30P_{1/2}$). La courbe représente le carré de
convolution de la distribution de Bose-Einstein
(la dégénérescence Zeeman n'est pas levée ici).

des transferts dus aux modes transverses non résonnants et on ne peut déduire d'une telle mesure les propriétés statistiques de l'absorption. Pour les mettre en évidence, nous avons utilisé une cavité placée dans un environnement refroidi à une température cryogénique (6 K - voir l'appendice 2 pour des détails sur l'appareil). Nous réchauffons alors le mode de la cavité en le couplant légèrement avec une source de bruit thermique microonde (voir § II.E) à 3000 K. La température du mode, déduite du nombre moyen d'atomes excités à l'équilibre, est alors de 85 K. La figure 29 présente l'histogramme représentant $P(\Delta N)$, probabilité d'avoir ΔN atomes excités dans une réalisation donnée de l'expérience. La courbe continue superposée à l'histogramme est la distribution théorique à T = 85 K. Ici encore, nous n'avons pas appliqué de champ magnétique. La distribution théorique est donc le carré de convolution de la distribution exponentielle de Bose-Einstein :

$$P(\Delta N) = (\Delta N + 1) e$$
 (IV.80)

Il est important de remarquer que, dans ces expériences, le système d'atomes de Rydberg se comporte comme un <u>thermomètre absolu de radiation</u>. En effet, la mise en équilibre thermique de ce thermomètre ne modifie pas significativement (dans le régime surcritique) la température de la cavité. De plus, cette température est mesurée par un simple comptage de particules et la mesure est <u>indépendante de tous les paramètres</u> du système, pourvu que le nombre d'atomes soit assez grand pour que l'équilibre soit atteint pendant le temps d'interaction avec la cavité.

Notons pour conclure que cet effet d'absorption collective du rayonnement thermique doit aussi exister sur des transitions micro-ondes ordinaires. Il est toutefois, dans ce cas, complètement inobservable. En effet, l'équilibre n'est atteint que si $T_R \lesssim \Delta t$, ce qui nécessite de l'ordre de 10¹⁵ spins avec ces transitions. L'absorption de quelques dizaines de photons est alors strictement indétectable. En d'autres termes, seuls les atomes de Rydberg nous donnent la possibilité de travailler avec des vecteurs de Bloch assez "légers" pour que leur mouvement brownien dans le champ thermique soit observable.

CHAPITRE V

.

INTERACTIONS A COURTE PORTEE ENTRE ATOME DE RYDBERG ET PAROI METALLIQUE OU ENTRE ATOMES DE RYDBERG

.

....

Chapitre V

INTERACTIONS A COURTE PORTEE ENTRE ATOME DE RYDBERG ET PAROI METALLIQUE OU ENTRE ATOMES DE RYDBERG

Nous étudierons dans ce chapitre, au moins qualitativement, les interactions à courte portée (interactions du type Van der Waals) entre un atome de Rydberg et son image dans une paroi métallique et entre atomes de Rydberg dans un milieu dense. Nous pourrons montrer ainsi que ces interactions sont tout à fait négligeables dans les conditions des expériences décrites dans les chapitres précédents.

Nous commencerons (§ V.A) par décrire une expérience très simple sur l'interaction des atomes de Rydberg avec une paroi métallique où nous montrerons que, cette interaction étant à très courte portée, on peut se servir d'un objet métallique macroscopique pour "mesurer" la taille des atomes de Rydberg.

Dans le § V.B, nous analyserons en détail les interactions de Van der Waals entre atomes de Rydberg et, en particulier, leur influence sur l'émission collective dans l'espace libre ou dans une cavité.

A) Interaction des atomes de Rydberg avec une paroi métallique : une expérience simple pour mesurer la "taille" des atomes de Rydberg

Nous décrirons dans ce paragraphe une expérience simple, par son principe, permettant de mettre en évidence le caractère "macroscopique" des fonctions d'onde des états de Rydberg (³²). Nous avons vu en effet dans le chapitre I que l'extension spatiale caractéristique de ces fonctions d'onde est de l'ordre de $a_0 n^{*2}$, où a_0 est le rayon de Bohr et $n^* = n - \varepsilon_{g}$ le



 $\begin{array}{c} \hline \textbf{Figure 30} \\ \hline \textbf{Figure 30} \end{array} : \textit{Microscopie électronique d'une partie du réseau de fentes. La largeur moyenne est de 2 μm.} \end{array}$

nombre quantique principal effectif. Pour n = 30, cette quantité est de l'ordre de 0.1 µm, comparable donc à la taille d'objets biologiques (virus de la mosaique du tabac par exemple) ou même à celle d'objets manufacturés (fils, fentes, ...).

L'idée de cette expérience est de comparer directement la taille des atomes à celle d'une fente, pratiquée dans une surface métallique, ayant une largeur ℓ de l'ordre du micron. Pour cela, nous nous proposons de mesurer, en fonction de n, la transmission d'un jet d'atomes excités à travers cette fente. Il est bien évident que les niveaux tels que a $n^2 > \ell$ seront considérablement affectés et presque certainement détruits lors du passage à travers la fente, alors que les atomes peu excités ne seront pratiquement pas perturbés. On peut donc s'attendre à ce que la transmission décroisse quand le nombre quantique principal augmente.

Une des difficultés majeures de l'expérience est de se procurer une fente avec $\ell \sim 1~\mu m$. Nous avons en fait, pour des considérations évidentes de signal total, utilisé un réseau de fentes (70 × 35 fentes pratiquées sur une surface de 1 mm × 1 mm). Ce réseau fut réalisé par la Société D.M.E. par électrodéposition d'une feuille d'or très fine sur un masque obtenu par des techniques de photo-réduction. La figure 30 présente une microphotographie d'une petite portion de ce réseau, prise sur un microscope électronique à balayage (Service de Microscopie Electronique du C.N.R.S., Université de Paris VI). Nous avons déterminé, à partir d'un ensemble de clichés similaires, la largeur moyenne des fentes $\ell \sim 2 \mu m$, leur longueur L = 20 μm et l'épaisseur de la feuille d'or (e ∿ 3 µm). Nous avons également estimé à 20% la dispersion statistique sur la largeur des fentes. Ces données, qui reposent sur la calibration du grandissement du microscope électronique, assez peu précise, ont été confirmées par une petite expérience de diffraction optique. La figure de diffraction obtenue en éclairant le réseau de fentes avec un laser Hélium-Néon est tout à fait compatible avec la largeur moyenne et la dispersion de largeur citées plus haut.

Le schéma de l'appareil expérimental est représenté sur la figure 31. Les atomes de Rydberg sont produits par une excitation impulsionnelle en échelons d'un jet atomique de Sodium (voir paragraphe II.A). Nous



avons choisi ici de travailler avec la série des niveaux $nD_{3/2}$ et $nD_{5/2}$, simplement parce qu'ils sont environ dix fois plus faciles à exciter que les niveaux $nS_{1/2}$. La largeur spectrale du laser bleu a ici été réduite à 5 GHz environ. Il est alors possible de résoudre les niveaux D adjacents jusqu'à n \sim 70.

Après avoir été excités, les atomes traversent le réseau de fentes, puis sont détectés par la méthode de l'ionisation par champ décrite en détail dans le paragraphe II.D. On peut distinguer a priori trois types de processus à la traversée de la fente : les atomes peuvent être ionisés, transférés dans un autre niveau (processus inélastiques), ou peuvent enfin survivre dans le niveau initialement excité (processus élastique). Nous n'utilisons pas ici la sélectivité de la méthode de l'ionisation par champ et nous détectons en fait <u>tous</u> les atomes qui sortent de la fente avec un nombre quantique n ≥ 22 , sans distinguer donc les processus élastiques et inélastiques.

Pour mesurer la proportion d'atomes ionisés au niveau de la fente, il est nécessaire de normaliser le signal au nombre total d'atomes de Rydberg excités, par chaque impulsion laser, dans une section du jet égale à la surface totale des fentes s (s = 0.1 mm²). Pour ce faire, nous envoyons le jet atomique alternativement sur le réseau de fentes et sur un ensemble de trois trous (diamètre 300 µm) percés dans une feuille d'or. Ces "trous de référence" possèdent une surface totale α s, avec $\alpha \sim 2$. Un opercule mobile découvre alternativement ces trous (position b sur la figure 31) et le réseau de fentes (position a). Le jet atomique et la fenêtre d'entrée du multiplicateur d'électrons sont assez larges pour que la translation du jet d'atomes de Rydberg due au mouvement de l'opercule ne modifie pas appréciablement la géométrie du système. Le rapport des signaux moyennés sur une centaine d'impulsions laser avec l'opercule en position a), puis b), est donc égal à T/ α où T est la transmission normalisée du réseau de fentes pour le nombre quantique considéré.

Un des points les plus critiques de l'expérience est d'assurer une parfaite propreté du réseau de fentes. Des impuretés déposées sur celuici peuvent en effet créer des champs électriques ou magnétiques qui, agissant



Figure 32: Transmission expérimentale normalisée en fonction
de nº. Les croix correspondent au plan des fentes
perpendiculaire au jet (e = 2µm), les cercles à
un plan incliné de 20° (e = 1 µm). Les lignes
pointillées correspondent aux prédictions du
modèle de sphères dures avec k = 9.

d'autant plus sur les atomes de Rydberg que ceux-ci sont plus excités, peuvent simuler ou masquer l'effet attendu. Il nous faut donc éviter en particulier le dépôt de charges sur des surfaces métalliques oxydées et prendre garde aux potentiels de contact entre la feuille et un dépôt métallique éventuel (le potentiel de contact sodium-or est de quelques volts). Le premier point explique l'utilisation d'or pour la réalisation du réseau (l'échec d'une expérience précédente réalisée avec une feuille de nickel fut attribué à cet effet). On empêche les dépôts de sodium en maintenant, pendant toute l'expérience, la plaque portant le réseau de fentes à une température de l'ordre de 200°C (le reste de l'appareil étant refroidi à 77 K par un dewar à azote liquide pour améliorer le vide résiduel -10⁻⁶ torret protéger l'expérience d'éventuelles rétrodiffusions d'huile de pompe secondaire).

Bien sûr, avant d'être monté dans l'appareil, le réseau de fentes est très soigneusement nettoyé. Nous le passons dans un bain d'acide chlorhydrique pour éliminer les poussières métalliques, puis dans différents solvants organiques (éther, acétone, dioxane) et nous terminons par un nettoyage ultrasonique dans un bain d'éthanol absolu. Le réseau est alors immédiatement monté dans l'appareil et mis sous vide.

Les valeurs mesurées de la transmission relative T du réseau de fentes sont représentées en fonction de n^{*2} (c'est-à-dire de la "taille" atomique) sur la figure 32 (croix). Les cercles représentent sur cette figure des valeurs obtenues en inclinant le plan du réseau d'une vingtaine de degrés par rapport à l'axe du jet atomique. Les fentes étant assez épaisses (e = 3 μ m), leur largeur apparente est alors réduite à $l' \cong l/2 = 1 \mu$ m.

On peut décrire simplement ces résultats au moyen d'un modèle phénoménologique de "sphères dures". On considère en effet les atomes comme des sphères de diamètre k a_o n² qui sont détruites quand elles viennent en contact avec un des bords de la fente (k est en fait le seul paramètre ajustable de ce modèle). Il est alors très facile d'estimer la transmission T_{th} correspondant à ce modèle. Les sphères qui survivent au passage dans la fente passent en effet au plus à une distance d_{max} = $\frac{(l - k a_o n^2)}{2}$ de l'axe de la fente. La proportion d'atomes transmis est donc :

$$T_{th} = \frac{2d_{max}}{\ell} = 1 - \frac{k a_0 n^2}{\ell}$$
 (V.1)

Les droites pointillées sur la figure 32 représentent les valeurs de T_{th} pour k = 9. Le doublement de la pente de la droite $T_{th}(n^2)$, quand la largeur de la fente est réduite d'un facteur 2, est en très bon accord avec les données expérimentales.

On peut donner une interprétation -au moins qualitative- de cette image de sphères dures par un modèle électrostatique de l'ionisation d'un atome de Rydberg au voisinage d'une paroi métallique.

En effet, la fréquence caractéristique d'évolution de l'électron de valence très excité -qui est de l'ordre de la fréquence de Bohr entre niveaux voisins et qui correspond, en termes d'orbites classiques, à la fréquence de révolution autour du coeur- est très basse si on la compare aux fréquences caractéristiques d'évolution des électrons dans le métal et très grande devant l'inverse du temps de transit dans la fente (3 ns). La fréquence de rotation pour n \sim 40 est en effet de l'ordre de 10^{10} Hz, alors que la fréquence de plasma dans l'or est environ de 3 10^{14} Hz. Il est donc tout à fait légitime (127 - 130) de considérer que la répartition de charges dans le métal s'ajuste instantanément aux positions de l'électron et du coeur. On peut donc modéliser l'action du métal par les images électriques de l'élec-

En première approximation, nous négligerons de plus la courbure des parois métalliques et nous assimilerons la lèvre de la fente la plus proche de l'atome à un demi-espace limité par un plan infini. Si C et E sont alors les positions respectives du coeur et de l'électron et C' et E' les positions de leurs images électriques, de charge opposée, dans le plan métallique (C' et E' sont les symétriques de C et E par rapport à la surface métallique), les forces agissant sur le coeur et l'électron dérivent toutes deux du potentiel électrostatique :

$$V_{O}(C, E) = \frac{q^{2}}{4\pi\epsilon_{O}} \left[-\frac{1}{|CE|} - \frac{1}{2|EE'|} - \frac{1}{2|CC'|} + \frac{1}{|CE'|} \right]$$
(V.2)



Figure 33 : Potentiel électrostatique V_o vu par l'électron de Rydberg. L'électron est dans un plan perpendiculaire à la surface métallique et contenant le noyau. La surface métallique coupe ce plan selon l'axe Ox et z est la distance de l'électron au métal.

з,

Les quatre termes de ce potentiel décrivent respectivement l'interaction du coeur avec l'électron, de l'électron avec son image, du coeur avec son image et du coeur avec l'image de l'électron (qui est égale à l'interaction de l'électron avec l'image du coeur). (Les facteurs 1/2 dans l'interaction entre une particule et son image sont liés à ce que leurs positions respectives sont fortement corrélées). La figure 33 représente les variations du potentiel V_{o} en supposant le coeur fixe, en fonction de la position de l'électron dans un plan perpendiculaire à la surface métallique et contenant le coeur. Sur cette figure, les valeurs de V sont reportées sur un axe "vertical" et l'électron est contenu dans le plan xOy, la surface métallique coupant ce plan selon l'axe Ox. Les deux puits de potentiel infinis apparaissant sur cette figure sont dus à l'interaction de l'électron avec le coeur (singularité ponctuelle) et à l'interaction attractive avec le métal (singularité linéaire sur le devant de la figure). Entre ces deux singularités, il existe un "point col" S (courbures de la surface de signesopposésselon les axes x et y). Le potentiel en ce point est égal à :

$$V_{col} = -3.5 \frac{q^2}{4\pi\epsilon_o} \frac{1}{|cc'|}$$
 (V.3)

Pour un électron situé en S, les forces attractives dues au métal et au coeur s'équilibrent exactement.

Les surfaces représentant les variations de V_0 pour un coeur fixe et un électron se déplaçant dans un plan perpendiculaire au plan métallique, mais ne contenant pas le coeur, ont un aspect similaire. Les seules différences sont que le puits de potentiel dû à l'attraction du coeur n'est plus infini et que le potentiel au point col (qui existe toujours) est plus élevé que la valeur que nous venons de calculer.

Nous devons maintenant déterminer la probabilité de capture d'un électron, initialement dans un niveau de Rydberg de nombre quantique principal n et soumis au potentiel V_o. La distance |CC'| évoluant dans le temps depuis l'infini jusqu'à une distance minimum 2d_{min} et augmentant à nouveau ensuite, V_o est une fonction du temps dont la variation, comme nous l'avons déjà souligné, est lente devant les temps caractéristiques de

l'orbite électronique. Ce problème est en fait étroitement relié à l'ionisation d'un atome de Rydberg par un champ électrique lentement variable, un mécanisme largement étudié depuis quelques années (⁷² - ⁷⁴). Le potentiel auquel est soumis l'électron de valence en présence d'un champ électrique uniforme présente en effet des similarités frappantes avec le potentiel V_o. Il existe en particulier aussi, dans la surface représentant ce potentiel, un point col, dans la direction du champ électrique en partant du coeur, dont la distance au coeur et l'ordonnée dépendent de l'amplitude du champ électrique. Cette dernière joue donc un rôle similaire à la distance |CC'| ici. Une étude détaillée du processus d'ionisation par champ prouve que l'atome, initialement dans l'état n, s'ionise dès que le champ atteint une valeur telle que l'énergie initiale $-\frac{q^2}{4\pi\epsilon}$ $\frac{1}{2n^{*2}}$ soit égale à

l'énergie du point col. Dans ce cas en effet, l'énergie atomique reste const. ment très proche de sa valeur initiale pourvu que le temps de montée du champ électrique soit suffisamment long devant les temps atomiques caractéristiques. Ceci est dû au fait que l'état électronique suit adiabatiquement les niveaux Stark : les nombreux anticroisements qui existent dans la structure des niveaux Stark (⁷⁵) "confinent" l'énergie à un domaine proche de la valeur initiale.

Supposons que cette approximation adiabatique puisse s'appliquer aussi à notre problème. L'atome sera donc ionisé si la distance minimum d'approche de la surface métallique d_{min} est telle que :

$$\frac{q^{2}}{4\pi\epsilon_{O}} = \frac{1}{2n^{*2}} = 3.5 \frac{q^{2}}{4\pi\epsilon_{O}} \frac{1}{2d_{min}}$$
(V.4)

On trouve donc un résultat du type "sphères dures" (d $min \propto n^{*2}$), avec une valeur du paramètre k égale à 7.

Nous obtenons donc un accord seulement qualitatif avec la valeur mesurée (k = 9), ce qui n'est pas très surprenant compte tenu de la naïveté du modèle.

Nous avons envisagé plusieurs améliorations du modèle pour rendre compte de ce désaccord, petit mais, à notre avis, significatif.

Dans notre modèle de point col, nous n'avons pas tenu compte de la traversée de la barrière de potentiel entre le coeur et le métal par effet tunnel. La validité de cette approximation est confirmée par un calcul B.K.W. de la probabilité d'ionisation d'un atome de Rydberg près d'une paroi métallique (¹³¹) (le résultat de ce calcul doit être quelque peu modifié, l'auteur ayant omis le facteur deux dans l'interaction d'une charge avec son image). Il apparaît, dans ce calcul, que l'effet tunnel ne joue qu'un rôle extrêmement marginal dans l'ionisation.

Nous avons également corrigé notre modèle en tenant compte (ou en estimant l'ordre de grandeur) de quelques effets simples : influence de la seconde lèvre de la fente, prise en compte de la dispersion statistique dans les largeurs des fentes, déviation de la trajectoire atomique sous l'influence de l'attraction de Van der Waals vers le métal (¹³²), courbure des surfaces métalliques, pertes résistives dues au déplacement des images électriques ... Ces effets n'agissent que de quelques % sur la valeur de k et ne suffisent donc pas à expliquer ce désaccord.

L'approximation la plus douteuse que nous ayons faite est sans doute l'approximation adiabatique, consistant à supposer que l'énergie atomique ne varie pratiquement pas pendant l'approche vers la fente (¹³³). Une description plus réaliste du phénomène devrait prendre en compte la dynamique de cette approche, en particulier au voisinage des anticroisements entre niveaux atomiques. Ce problème est, bien entendu, formidablement complexe mais il faut sans doute chercher là l'origine du désaccord entre notre modèle théorique et l'expérience.

Cette expérience nous a permis de "voir" de manière frappante la taille des orbites atomiques dans les états de Rydberg qui était jusque là déduite indirectement des éléments de matrice dipolaires, des polarisabilités ou de mesures de sections efficaces de collisions. On peut en fait considérer le réseau de fentes comme un "tamis" capable de trier les atomes de Rydberg. Bien entendu, la calibration du grain de ce tamis n'est pas très précise et ne pourrait être améliorée que par une meilleure compréhension des interactions entre un atome et une surface métallique, ce qui constitue certainement un problème intéressant.

On peut aussi envisager un certain nombre de prolongements à cette technique. En particulier, l'étude de la transmission d'états de Rydberg circulaires $\binom{71}{|m|} = l = n - 1$ à travers des fentes devrait mettre en évidence des effets importants d'anisotropie (la "taille" d'un tel état est beaucoup plus importante dans le plan de l'orbite que dans un plan perpendiculaire). Le réseau de fentes agirait alors comme un polariseur pour l'orientation des orbites atomiques.

Il serait très intéressant aussi d'étudier la spectroscopie micro-onde d'atomes de Rydberg au voisinage d'une paroi métallique et d'explorer ainsi la structure des niveaux d'un atome en interaction avec son image électrique. Il devrait enfin être possible de reprendre avec des atomes de Rydberg les expériences de déviation d'un jet atomique par interaction de Van der Waals avec une paroi métallique (¹³²). Toutes ces expériences peuvent conduire à une meilleure compréhension de l'interaction atome-métal. Cependant, elles sont certainement très difficiles techniquement. Un ne pourra en particulier obtenir des résultats fiables et reproductibles que dans un environnement très propre et donc par l'utilisation des techniques de l'ultra-vide et de la cryogénie.

B) Effet des interactions de Van der Waals entre atomes de Rydberg

Nous n'avons jusqu'ici considéré dans ce mémoire que l'interaction entre atomes de Rydberg par l'intermédiaire du champ rayonné (terme en 1/r dans 1 ' expression du champ d'un atome). Ce couplage est en particulier responsable du phénomène d'émission spontanée collective -ou superradiance- décrit en détail dans le chapitre IV. Ainsi que nous l'avons déjà mentionné dans les paragraphes I.D. et IV.B, il est en concurrence, si la densité du milieu est élevée, avec l'interaction électrostatique instantanée entre dipôles (termes en 1/r³ du champ), c'est-à-dire avec les forces de Van der Waals. Les très fortes valeurs des dipôles électriques pour les niveaux de Rydberg (plusieurs ordres de grandeur plus élevés que dans les niveaux profonds) rendent en effet ces interactions à courte portée extrêmement importantes. Nous verrons que, dans des milieux relativement dilués d'atomes de Rydberg $(10^{10} - 10^{12} \text{ cm}^{-3})$, on observe des phénomènes similaires à ceux attendus dans des liquides ou des gaz sous haute pression $(10^{22} - 10^{23} \text{ cm}^{-3})$.

Le but de ce paragraphe est de décrire, au moins qualitativement, les effets de cette interaction sur le comportement du système atomique. Une interprétation quantitative de ces effets est, comme nous le verrons, formidablement difficile. Nous nous contenterons donc ici d'ordres de grandeur et nous nous attacherons en particulier à dégager des lois d'échelle simples en fonction du nombre quantique principal n des niveaux de Rydberg considérés.

Une description détaillée des interactions de Van der Waals entre atomes de Rydberg ayant déjà été donnée dans la thèse de 3ème cycle de G. Vitrant (³¹), nous ne rappellerons ici que les principaux résultats de cette étude. Nous commencerons par estimer (§ V.B.1) l'ordre de grandeur des interactions dipôle-dipôle entre atomes de Rydberg dans le même niveau, ou dans des niveaux différents. Nous analyserons également l'influence de ces interactions sur les cohérences millimétriques entre niveaux voisins. Dans le paragraphe 2, nous examinerons la compétition entre forces de Van der Waals et superradiance dans l'espace libre. Nous décrirons également une expérience simple mettant en évidence cette compétition. Nous donnerons aussi quelques indications sur la modification de la superradiance dans une cavité résonnante. Dans le paragraphe 3, nous étudierons une autre conséquence importante des interactions dipôle-dipôle : l'élargissement des raies optiques d'excitation des niveaux de Rydberg à forte densité. Lors de nos expériences sur les "gaz denses" d'états de Rydberg, nous avons également mis en évidence, à très haute densité, un phénomène d'ionisation collective en avalanche qui sera brièvement décrit dans le paragraphe 4.

1) Quelques ordres de grandeur sur les interactions à courte portée

Nous étudierons dans ce paragraphe l'ordre de grandeur de l'interaction à courte portée de deux atomes de Rydberg situés à une distance r l'un de l'autre. Si r est de l'ordre de la taille a des atomes $(r \ \sim a = a_0 \ n^2)$, l'approximation dipolaire n'est, bien entendu, pas valable pour traiter ce problème, tous les termes du développement multipolaire étant a priori importants. Toutefois, la condition r \sim a correspond, pour les niveaux avec lesquels nous travaillons habituellement (n \sim 30), à des densités de l'ordre de 10¹³ cm⁻³. Ces densités, qui sont à la limite

supérieure de ce que nous pouvons réaliser expérimentalement, sont bien au-dessus du seuil d'apparition du phénomène d'ionisation par avalanche. L'étude de l'interaction de deux atomes pour r ∿ a est donc, dans notre cas, d'une bien piètre utilité.

Nous nous limiterons donc ici au cas où les atomes sont bien séparés (r >> a). Le phénomène dominant est alors l'interaction électrostatique instantanée entre dipôles, décrite par le hamiltonien de Van der Waals :

$$V_{VW} = \frac{1}{4\pi\epsilon} \frac{1}{r^{3}} \left[\vec{D}_{1} \cdot \vec{D}_{2} - \frac{3(\vec{D}_{1} \cdot \vec{r})(\vec{D}_{2} \cdot \vec{r})}{r^{2}} \right]$$
(V.5)

où \vec{D}_1 et \vec{D}_2 sont les opérateurs dipolaires électriques relatifs à chaque atome (comme nous nous limitons au cas r >> a et à des déplacements atomiques à des vitesses thermiques, le mouvement des atomes peut être traité classiquement et les atomes considérés comme discernables). Il nous faut maintenant déterminer l'action de V_{VW} sur l'état combiné $|\psi_1 \ \psi_2 >$ représentant l'atome 1 dans l'état $|\psi_1 >$ et l'atome 2 dans l'état $|\psi_2 >$.

Si $|\psi_1\rangle = |\psi_2\rangle$, l'état $|\psi_1|\psi_2\rangle$ est couplé à des états $|\psi_1' \psi_2' \rangle$ qui ont en général une énergie différente en l'absence de couplage. L'interaction de Van der Waals, si elle n'est pas trop importante, n'agit donc qu'au second ordre sur les énergies du système. En revanche, si l'énergie non perturbée de $|\psi_1' \psi_2'\rangle$ se trouve exactement égale à celle de $|\psi_1 \psi_2\rangle$, ces deux états sont couplés de façon résonnante et donc l'interaction, agissant au premier ordre, est beaucoup plus efficace. C'est le cas également si $|\psi_2 \rangle \neq |\psi_1 \rangle$: l'état $|\psi_1 \psi_2 \rangle$ est alors dégénéré exactement avec l'état $|\psi_2 \psi_1 \rangle$. Si $|\psi_1 \rangle$ et $|\psi_2 \rangle$ sont reliés par une transition dipolaire électrique, ces deux états sont couplés par échange d'un photon entre les atomes. C'est là la situation qui se produit, par exemple, quand une partie des atomes d'un échantillon a été transférée dans le niveau $|\psi_2\rangle$ par transition micro-onde ou superradiante. Pour conclure ces ordres de grandeur, nous étudierons l'influence de V_{un} sur les cohérences millimétriques dans le cas où les atomes sont préparés dans une superposition linéaire d'états $|\psi_1
angle$ et $|\psi_2\rangle$ connectés par une transition dipolaire électrique.

a. Interactions de Van der Waals non résonnantes entre atomes dans le même état de Rydberg

Nous considérons donc ici une paire d'atomes préparés dans le niveau nlm >. L'état du système global nlm, nlm > est couplé par l'interaction de Van der Waals à tous les états de la forme n'l'm', n" ℓ "m" >, avec ℓ ' = $\ell \pm 1$, ℓ " = $\ell \pm 1$, m - m' et m - m" obéissant aux règles de sélection des transitions dipolaires électriques. La très grande richesse du spectre d'une paire d'atomes de Rydberg sans interaction fait qu'il existe en général un tel niveau (ou deux niveaux dégénérés si n' ≠ n") très proche du niveau |nlm, nlm >,qui sera donc la source essentielle de perturbation. L'existence de telles quasi-coincidences est l'une des causes de la grande sensibilité des états de Rydberg à l'interaction de Van der Waals. Bien sûr, une description détaillée nécessiterait de prendre en compte tous les niveaux couplés au niveau initial et de diagonaliser le hamiltonien de Van der Waals dans cette base. Ce calcul, qui ne peut être effectué que numériquement sur la base limitée des états a priori les plus importants, donne des indications (³¹) en bon accord avec les ordres de grandeur que nous allons déduire ici en ne considérant l'interaction qu'avec le niveau le plus proche.

Si l'amplitude de l'interaction est petite devant l'écart d'énergie entre les niveaux $\Delta E = (E_{n'l'm'} - E_{nlm}) + (E_{n''l'm''} - E_{nlm})$, la perturbation de Van der Waals agit au second ordre seulement. Le déplacement d'énergie du niveau $|nlm, nlm \rangle$ est donc de l'ordre de V² / ΔE , avec :

$$V \approx \frac{d^2}{4\pi\varepsilon_0 r^3} \approx \frac{q^2 a_0^2 n^4}{4\pi\varepsilon_0 r^3}$$
(V-6)

Ce déplacement correspond à des processus de transfert <u>virtuels</u>, où l'un des atomes passe du niveau $|nlm \rangle$ au niveau $|n'l'm' \rangle$ pendant que l'autre passe dans le niveau $|n"l"m" \rangle$.

. .

Bien entendu, ceci n'est valable que si V $\lesssim \Delta E$. On peut estimer simplement la limite de validité de cette condition. Le défaut d'énergie ΔE peut en effet s'exprimer comme :

$$\Delta E = \frac{2\Delta}{n^{\star_3}} R \qquad (V-7)$$

(R est la constante de Rydberg de l'alcalin), où Δ est un paramètre numérique, au plus de l'ordre de l'unité. Si nous considérons par exemple le niveau |31D,31D > d'une paire d'atomes de césium, il est couplé principalement aux niveaux |29F,28F > et |28F,29F >. Dans ce cas, on a Δ = 0.12 et Δ E = 0.02 eV seulement. (Nous prenons ici l'exemple du césium. En effet, pour des raisons techniques, nous avons effectué toutes les expériences sur les milieux denses avec des états de Rydberg de cet alcalin).

A l'aide de (V-7), la condition V \lesssim ΔE peut s'exprimer comme une condition sur la distance interatomique :

$$r \ge n^2 a_0 \left(\frac{n}{\Delta}\right)^{1/3}$$
 (V-8)

Pour n \sim 30 et $\Delta \sim 0.1$, la distance critique où l'interaction de Van der Waals cesse d'agir au second ordre seulement est de l'ordre de 6 fois le rayon atomique. Pour des distances plus faibles, l'interaction agit au premier ordre : les transferts d'énergie entre les atomes deviennent des processus <u>réels</u>; il se produit effectivement des échanges d'énergie entre les deux atomes, l'un étant excité aux dépens de l'autre.

Dans un gaz dense d'atomes de Rydberg, des transferts entre niveaux peuvent donc avoir lieu lors de "collisions" pendant lesquelles deux atomes s'approchent à une distance plus faible que 10a environ. En d'autres termes, la section efficace de ces collisions de transfert, σ_{trans} , est de l'ordre de :

$$\sigma_{\text{trans}} = 100 \sigma_{\text{g}} \tag{V-9}$$

où $\sigma_g = \pi (a_0 n^2)^2$ est la section "géométrique" de collision entre deux atomes de Rydberg.

Cet ordre de grandeur grossier est tout à fait confirmé par des calculs détaillés des processus de collision entre atomes de Rydberg (¹³⁴). Ceux-ci, faisant intervenir un calcul de trajectoires électroniques classiques pendant la collision et une méthode de moyennage du type Monte-Carlo pour retrouver les résultats quantiques, indiquent que la section efficace pour l'ionisation d'un des atomes est de l'ordre de 10 σ_g , alors que la section efficace de transfert vers les niveaux voisins est bien de l'ordre de 100 σ_g .

A partir de cette valeur de la section efficace, on peut estimer simplement le temps caractéristique T_1 de transfert de population sous l'effet des collisions (temps de "libre parcours moyen") :

$$T_{1} = \frac{1}{\rho \sigma_{\text{trans}} v_{\text{th}}} = \frac{1}{100 \rho \sigma_{g} v_{\text{th}}}$$
(V-10)

où ρ est la densité du gaz d'états de Rydberg et v_{th} la vitesse <u>relative</u> moyenne des atomes sous l'influence de l'agitation thermique. Si on prend par exemple n \sim 30 et $\rho \sim 10^{10}$ cm⁻³, on a T₁ = 600 ns : les transferts collisionnels sont une cause importante de relaxation atomique.

L'image de collisions isolées, utilisée pour calculer T₁, n'est bien entendu valable que si T₁ est beaucoup plus long que la durée d'une collision τ_{coll} . τ_{coll} étant de l'ordre de 10 a/v_{th}, cette approximation d'impact n'est valable que tant que :

$$\rho < \frac{10^{-3}}{\pi a^3}$$
 (V-11)

c'est-à-dire tant que la distance moyenne entre atomes est grande devant la "portée" de l'interaction de Van der Waals, 10a. Pour n \sim 30, la densité critique à partir de laquelle cette approximation n'est plus valable est de l'ordre de 10¹² cm⁻³. Elle est donc, là encore, de l'ordre de la densité d'apparition du phénomène d'ionisation collective.

ы.

b. Transferts entre niveaux par interaction de Van der Waals exactement résonnante

Nous considérerons encore ici le cas de deux atomes de Rydberg dans le même niveau $|\psi_1>$, mais nous supposerons qu'il existe deux états

 $|\psi'_1\rangle$ et $|\psi'_2\rangle$ tels que le niveau combiné $|\psi'_1 \psi'_2\rangle$ (et $|\psi'_2 \psi'_1\rangle$) soit couplé à $|\psi_1 \psi_1\rangle$ par l'interaction de Van der Waals en étant exactement dégénéré avec celui-ci en l'absence de perturbation. Il ne se produit bien sûr aucune coïncidence aussi miraculeuse dans le spectre des états de Rydberg non perturbés. Il est en revanche facile de réaliser cette situation en appliquant sur les atomes un champ électrique constant (et uniforme). Par exemple, dans le cas du sodium, le déplacement des niveaux nS sous l'influence de l'effet Stark est très différent de celui des niveaux nP. On peut alors, en ajustant la valeur du champ électrique, réaliser une situation où le niveau $|nS, nS \rangle$ de la paire d'atomes soit exactement dégénéré avec le niveau $|nP, (n-1)P \rangle$. La dégénérescence des sous-niveaux |m| = 0 et |m| = 1 des niveaux nP étant faiblement levée par effet Stark, on a en fait quatre valeurs très voisines du champ où une pareille coïncidence se produit. Pour n \sim 30, ces champs sont de l'ordre de 20 V/cm seulement.

Lorsque la coincidence des niveaux se produit, l'interaction de Van der Waals devient résonnante et les sections efficaces de transfert augmentent de plusieurs ordres de grandeur. Cet effet est très clairement mis en évidence en étudiant, au moyen de la technique d'ionisation par effet de champ (voir chapitre II), la population de l'un des états $|\psi'_1 \rangle$ ou $|\psi'_2 \rangle$, quelques microsecondes après l'excitation laser, en fonction du champ électrique appliqué. On observe alors, pour les valeurs attendues du champ, une augmentation résonnante de cette population. Ce phénomène a été étudié pour la première fois par Safinya et al (¹³⁵) (atomes de sodium) et nous l'avons nous-mêmes observé dans nos expériences avec des atomes de césium. Ces collisions résonnantes sont apparentées de près aux collisions assistées par micro-onde observées par Pillet et al (¹³⁶).

Nous allons maintenant essayer d'estimer l'ordre de grandeur des temps caractéristiques de transfert de population associés à ces processus.

Si la densité est assez faible, l'effet des interactions ne sera sensible qu'au moment où deux atomes passent à une distance relative beaucoup plus petite que la distance interatomique moyenne dans le milieu, c'est-à-dire au moment de collisions bien séparées dans le temps. On est donc, dans ce cas, dans le cadre de l'approximation du régime d'impact. L'interaction de Van der Waals étant exactement résonnante, elle agit au premier ordre avec une amplitude V(r) donnée par la formule (V-6). Elle varie donc rapidement avec r. En conséquence, si b est le paramètre d'impact d'une collision, la perturbation sera essentiellement appliquée pendant un temps de l'ordre de b/v_{th} , avec une amplitude moyenne de l'ordre de V(b). La modification de l'état du système pendant la collision peut être décrite par un "déphasage" $\Delta \phi$ dont l'ordre de grandeur est :

$$\Delta \phi = \frac{b}{v_{\text{th}}} \frac{V(b)}{k} = \frac{q^2 a_0^2 n^4}{4\pi \epsilon_0 k b^2} \frac{1}{v_{\text{th}}}$$
(V-12)

La collision sera efficace -c'est-à-dire le transfert d'énergie aura lieusi $\Delta \phi > 1$. On obtient donc une condition sur le paramètre d'impact b :

$$\pi b^{2} \lesssim \sigma_{g} \frac{q^{2}}{4\pi \varepsilon_{O} \varkappa} \frac{1}{v_{th}} = \left(\frac{\alpha c}{v_{th}}\right) \sigma_{g} \qquad (V-13)$$

En d'autres termes, la section efficace de collision pour les transferts résonnants, $\sigma^{rés}_{trans}$ est de l'ordre de :

$$\sigma_{\text{trans}}^{\text{rés}} = \begin{pmatrix} \alpha c \\ v_{\text{th}} \end{pmatrix} \sigma_{g} \qquad (V-14)$$

Elle est donc plus grande que $\sigma_{\rm g}$ dans un facteur égal à l'inverse de la vitesse thermique mesurée en unités atomiques (α c est, rappelorsle, la "vitesse" de l'électron sur la première orbite de Bohr de l'hydrogène). En pratique, $\alpha c/v_{\rm th} \sim 10^4$, et donc $\sigma_{\rm trans}^{\rm rés}$ est 10000 fois plus grande que $\sigma_{\rm g}$, c'est-à-dire 100 fois plus grande que la section efficace de transfert non résonnant ($\sigma_{\rm trans}$). De telles sections efficaces correspondent à des paramètres d'impact de l'ordre de 10 µm (pour n = 30), énormes pour des collisions atomiques ! Cet ordre de grandeur explique que les effets de transferts résonnants en fonction du champ électrique, décrits plus haut, aient pu être observés avec des densités relativement faibles ($\sim 10^6$ à 10^7 cm⁻³).

Le temps caractéristique des transferts de population, $T_1^{rés}$ est donc de l'ordre de :

$$T_{1}^{rés} = \frac{1}{\rho \sigma_{trans}^{rés} v_{th}} = \frac{1}{\pi \rho \alpha c a^{3}}$$
(V-15)

Pour n \sim 35, $\rho \sim 10^{10}$ cm⁻³, T₁^{rés} n'est que de quelques nanosecondes.

L'approximation d'impact que nous avons utilisée ici n'est, bien entendu, valable que si le temps moyen de transfert, $T_1^{rés}$, est beaucoup $\tau_{coll}^{rés}$. Celle-ci est assez plus long que la durée d'une collision résonnante importante :

$$\tau_{\text{coll}}^{\text{rés}} \approx \frac{(\sigma_{\text{trans}}^{\text{rés}})^{1/2}}{v_{\text{th}}} \approx \sqrt{\frac{\alpha c}{v_{\text{th}}}} \frac{a}{v_{\text{th}}}$$
(V-16)

L'approximation d'impact n'est donc justifiée que si :

÷

$$\frac{1}{\rho} \ge \left(\begin{array}{c} \frac{\alpha c}{v_{\text{th}}} \end{array}\right)^{3/2} a^{3} \sim 10^{6} a^{3} \qquad (V-17)$$

ce qui signifie que la distance moyenne au plus proche voisin doit être de l'ordre de 100 fois la taille atomique. Pour n \sim 30, cette condition n'est réalisée que pour des densités plus faibles que 10^9 à 10^{10} cm⁻³.

Pour des densités plus fortes, il n'est pas possible de considérer l'évolution atomique comme due à une succession de collisions bien séparées dans le temps. Il est plus fructueux de se placer dans le cadre de l'approximation quasi-statique (¹³⁷). On considère alors le milieu comme un ensemble d'atomes immobiles, répartis aléatoirement dans l'espace. Il faut, dans ce cas, évaluer le "déphasage" moyen par unité de temps < $\Delta \phi$ > de la fonction d'onde atomique sous l'influence de l'interaction de Van der Waals qui est, dans ce point de vue, une perturbation stationnaire. V(r) dépendant rapidement de r, le couplage avec le plus proche voisin aura une influence prépondérante. On peut alors écrire :

$$< \Delta \phi > \cong < \frac{V(r_{\min})}{\mu} > \cong \frac{q^2 a^2}{4\pi\epsilon_0 \mu} < \frac{1}{r^3_{\min}} >$$
 (V-18)

où r $_{\min}$ est, pour chaque atome, la distance au plus proche voisin. On peut montrer aisément que :

$$<\frac{1}{r_{\min}^{3}} > \cong \frac{5}{< r >^{3}}$$
 (V-19)

où < r > = $1/\rho^{1/3}$ est la distance interatomique moyenne. On a alors :

$$\langle \Delta \phi \rangle \cong 5 \alpha c a^2 \rho$$
 (V-20)

Le temps moyen caractéristique des transferts est tel que < $\Delta\varphi$ > $T_1^{r\acute{e}s}$ \sim 1, c'est-à-dire :

$$T_{1}^{res} \cong \frac{1}{5\alpha \ c \ a^{2} \ \rho}$$
(V-21)

On trouve donc un résultat très voisin de celui que nous avons obtenu dans le cadre de l'approximation d'impact (la petite différence de facteur numérique n'est pas significative dans un raisonnement d'ordres de grandeur). Cette coincidence est sans doute liée à la dépendance en 1/r³ de l'interaction de Van der Waals : les atomes se perturbent autant pendant la collision que pendant l'approche.

La discussion que nous avons conduite ici dans le cas où les deux atomes sont dans le même niveau pourrait être reprise de la même manière dans le cas où un atome est préparé dans l'état $|\psi_1\rangle$ et l'autre dans l'état $|\psi_2\rangle$. L'état combiné $|\psi_1|\psi_2\rangle$ étant toujours couplé de façon résonnante à l'état $|\psi_2|\psi_1\rangle$ (si $|\psi_1\rangle$ et $|\psi_2\rangle$ sont reliés par une transition dipolaire électrique), on observera aussi des transferts de population entre ces deux niveaux avec un temps caractéristique de l'ordre de $T_1^{rés}$ donné par (V-15) ou (V-21). Ces transferts ne sont pas, bien entendu, observables directement dans ce cas sur les populations atomiques.

c. Effet de l'interaction dipôle-dipôle sur l'évolution des cohérences millimétriques entre niveaux de Rydberg

Nous avons jusqu'ici considéré seulement les effets de transferts de population induits par l'interaction de Van der Waals. C'est là ce qu'on pourrait appeler, par analogie avec la relaxation des spins dans le vocabulaire de la Résonance Magnétique nucléaire (¹⁰³), une relaxation "longitudinale" (c'est d'ailleurs pourquoi nous avons noté T_1 les temps caractéristiques d'évolution associés à ces transferts). L'interaction dipôle-dipôle se manifeste aussi par une modification de la fréquence d'oscillation du dipôle électrique pour un atome préparé dans une superposition cohérente d'états reliés par une transition dipolaire électrique. C'est là une cause de relaxation pour la polarisation moyenne d'un échantillon d'états de Rydberg (relaxation "transversale" dont nous noterons le temps caractéristique T₂). Nous verrons que c'est essentiellement cette relaxation transverse qui entre en compétition avec la superradiance.

Pour préciser les ordres de grandeur de ce phénomène, nous considérerons deux atomes de Rydberg initialement préparés dans une même superposition linéaire des états $|nlm \rangle$ et $|n'l'm' \rangle$ reliés par une transition dipolaire électrique :

$$|\psi_1\rangle = |\psi_2\rangle = \alpha |n \ell m\rangle + \beta |n' \ell' m'\rangle \qquad (V-22)$$

Si les atomes n'interagissaient pas l'un avec l'autre, la valeur moyenne de l'opérateur dipôle électrique de chacun d'eux évoluerait à la fréquence ω_{n} , fréquence de Bohr entre |nlm > et |n'l'm' > :

$$< D_1 > \propto < D_2 > \propto \alpha^* \beta e^{i\omega_0 t} + cc$$
 (V-23)

avec :

$$\omega_{O} = \frac{E_{n \ell m} - E_{n' \ell' m'}}{\varkappa} \qquad (V-24)$$

)

Pour tenir compte de la perturbation de Van der Waals, il nous faut considérer l'état combiné des deux atomes qui s'écrit à t = 0 :

$$\begin{aligned} |\psi_1 \psi_2 \rangle &= \alpha^2 |nlm, nlm \rangle + \alpha \beta \left[|nlm, n'l'm' \rangle \\ &+ |n'l'm', nlm \rangle \right] + \beta^2 |n'l'm', n'l'm' \rangle \end{aligned} \tag{V-25}$$

Le premier et le dernier terme de ce développement ne sont a priori perturbés qu'au deuxième ordre par le hamiltonien de Van der Waals

(voir § III.1.a); nous écarterons ici le cas d'une dégénérescence, accidentelle ou provoquée, avec un niveau |n"l"m", n"'l"'m"' >. En revanche, les deux états |nlm, n'l'm' > et |n'l'm', nlm > sont exactement dégénérés et couplés par l'interaction de Van der Waals. L'amplitude de ce couplage, V, est donnée par l'équation (V-6).

En d'autres termes, le fait que chaque atome soit dans une superposition linéaire d'états crée une situation où l'interaction de Van der Waals devient nécessairement résonnante.

La fréquence de Bohr de l'état symétrique |nlm, n'l'm' > +|n'l'm', nlm > -qui est d'ailleurs un état propre du hamiltonien de Van derWaals- est donc modifiée d'une quantité de l'ordre de V/½ et l'état du système à l'instant t s'écrit :

$$\begin{aligned} |\psi_{1} \psi_{2}(t) \rangle &= \alpha^{2} e^{-2i E_{n lm} t/\aleph} \quad |nlm, nlm \rangle \\ &+ \alpha \beta e^{-i (E_{n lm}^{+}E_{n'l'm'}^{+}+V) t/\aleph} \quad \left[|nlm, n'l'm' \rangle + |n'l'm', nlm \rangle \right] \\ &+ \beta^{2} e^{-2i E_{n'l'm'}^{+} t/\aleph} \quad |n'l'm', nlm \rangle \qquad (V-26) \end{aligned}$$

On en déduit immédiatement la valeur moyenne du dipôle D_1 dans cet état :

 $< D_{1}(t) > \propto \alpha^{*}\beta \left[\alpha^{*}\alpha e^{-V/\cancel{1}t} + \beta^{*}\beta e^{-\beta^{*}t} \right] + cc$ (V-27)

Les atomes se déplaçant dans le milieu, les dipôles atomiques oscillent donc à des fréquences dépendant du temps par l'intermédiaire de V(t). Là encore, selon la densité de l'échantillon, il faut distinguer les régimes d'impact et quasi-statique. A faible densité, la fréquence d'évolution des dipôles est presque toujours ω_0 , sauf pendant des collisions bien séparées dans le temps où les dipôles subissent un déphasage important. A forte densité, il faut appliquer le modèle quasi-statique décrivant un déphasage inhomogène des dipôles. Dans les deux cas, la discussion est identique

à celle que nous avons menée dans le paragraphe précédent et on trouve que le temps caractéristique de déphasage des dipôles est de l'ordre de :

$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{T_1^{rés}} = 5\alpha a^2 c \rho \qquad (V-28)$$

Le fait que $T_2 = T_1^{rés}$ n'a rien d'étonnant : ces deux effets -transferts de population et déphasage des dipôles- ne sont en fait que deux manifestations différentes du même phénomène : l'interaction de Van der Waals résonnante.

Une des premières manifestations de ces déplacements des fréquences d'évolution des dipôles atomiques est l'élargissement des raies micro-onde entre niveaux de Rydberg voisins, quand la densité du milieu est assez grande. Nous avons en effet observé des largeurs de raie de l'ordre de 100 MHz à des densités aussi faibles que 10⁹ cm⁻³ (rappelons que les largeurs de ces raies pour des atomes isolés sont de quelques centaines de kilohertz seulement). Un autre effet est l'inhibition de l'émission superradiante à haute densité. Nous allons l'étudier maintenant plus en détail.

2) <u>Compétition entre la superradiance et les interactions dipôle-dipôle</u> dans un échantillon d'atomes de Rydberg

La superradiance est, comme nous l'avons vu dans le paragraphe I.D et au chapitre IV, un phénomène dont la constante de temps, T_R , dépend essentiellement du <u>nombre total</u> d'atomes dans le milieu. L'interaction dipôle-dipôle dépend, pour sa part, de la <u>densité</u> de l'échantillon. A nombre total d'atomes constant, la superradiance doit donc dominer l'évolution pour des milieux relativement dilués, alors que les effets des interactions de Van der Waals sont certainement prédominants pour des milieux denses. Lous allons tenter de préciser ici, toujours par des raisonnements d'ordre de grandeur, la limite entre ces deux régimes. Nous considérerons d'abord (§ a) le cas de la superradiance dans l'espace libre, situation pour laquelle nous avons pu mettre en évidence expérimentalement cette compétition (³³) (§ b) et vérifier qualitativement les ordres de grandeur qui seront donnés ici .

Nous dirons quelques mots également (§ c) sur la compétition entre interaction dipôle-dipôle et superradiance dans une cavité micro-onde résonnante, pour justifier les approximations effectuées dans le chapitre IV. a. Cas de la superradiance dans l'espace libre

Nous considérerons ici l'émission superradiante d'un échantillon de N atomes de Rydberg, situés dans un volume cylindrique de longueur L et de diamètre w. L'analyse théorique exacte de la superradiance dans ce cas est très complexe. Nous avons déjà mentionné les difficultés liées au couplage des atomes à tous les modes résonnants du rayonnement, nécessitant une description précise des effets de diffraction et de propagation (⁵⁸). Inclure dans ce problème i'interaction dipôle-dipôle -qui est due au couplage entre atomes par l'intermédiaire de tous les modes non-résonnants du champ- est certainement très difficile.

Il est toutefois possible de dégager quelques idées physiques simples et des ordres de grandeur assez précis. Il suffit pour cela de comparer les temps caractéristiques de transfert de population ou de déphasage des dipôles par interaction de Van der Waals au temps caractéristique de l'émission superradiante en l'absence de perturbation. Comme nous l'avons déjà indiqué, le temps caractéristique de la superradiance, T_R , est donné par :

$$T_{\rm R} = (N \Gamma \mu)^{-1} \qquad (V-29)$$

où Γ est le taux d'émission spontanée sur la transition considérée. μ est un facteur géométrique, dépendant essentiellement de l'angle solide dans lequel l'émission se produit. Pour un milieu ayant un nombre de Fresnel \mathcal{F} voisin de 1, on a (²³) :

$$\mu = \frac{3}{8\pi} \frac{\lambda^2}{w^2}$$
 (V-30)

(où λ est la longueur d'onde de la transition).

Rappelons que le nombre de Fresnel $\mathcal{F} = w^2/L$ n'est autre que le rapport de l'ouverture géométrique du milieu cylindrique (w/L) à l'angle de diffraction (λ/w).

Nous considérerons ici surtout des milieux très allongés (milieu en aiguille), tels que L $\sim \lambda$ et w << λ . La raison de ce choix apparaîtra

clairement dans la description des procédures expérimentales (§ V.B.2.b). Le nombre de Fresnel étant très inférieur à 1, le facteur μ n'est plus donné par l'expression (V-30). Il est cependant encore possible d'obtenir un ordre de grandeur de T_R par un raisonnement très simple.

Dans le cas d'un milieu de très petites dimensions transverses, la diffraction joue un rôle important. Le faisceau émis par le milieu diverge en effet avec un angle caractéristique $\theta_D \sim \lambda/w$. Le champ émis par une petite région de l'échantillon cesse donc d'interagir notablement avec celuici dès qu'il s'est propagé sur une longueur ℓ telle que $\ell \theta_D \sim w$, c'est-àdire telle que :

$$\ell = \frac{w^2}{\lambda} \tag{V-31}$$

Il est donc possible de diviser formellement le milieu en petits segments de longueur ℓ (le nombre de ces segments est $L/\ell = \mathcal{F}^{-1}$). Le nombre de Fresnel de chacun de ces segments est, par définition, égal à l'unité. De plus, chaque segment n'interagit pratiquement pas avec ses voisins, si on suppose que la seule cause de couplage entre les atomes est le champ rayonné. Le temps T_R de l'évolution de l'ensemble des atomes est donc de l'ordre du temps d'évolution T_{cp} de chacun de ces segments pris indépendamment. On a :

$$T_{SR} = \begin{bmatrix} \frac{3}{8\pi} (N \mathcal{F}) \Gamma \frac{1}{L \mathcal{F}} \end{bmatrix}$$

c'est-à-dire :

$$T_{R} = T_{SR} = \left(\frac{3}{8\pi} N\Gamma \frac{\lambda}{L}\right)^{-1}$$
 (V-32)

En d'autres termes, pour un milieu en "aiguille", le temps de superradiance est, à N et L donnés, indépendant du diamètre w de l'échantillon. Cette propriété rend très simple la discussion de la compétition entre superradiance et interaction dipôle-dipôle dans ce cas.

Au démarrage de l'évolution superradiante, tous les atomes sont dans le même niveau et, en général, l'interaction de Van der Waals ne se manifeste que par les collisions de transfert non résonnantes. Pour que la superradiance puisse démarrer, il faut donc que la condition $T_{SR} << T_1$ soit remplie.

Cette condition peut s'écrire :

$$w \ge 3\lambda \left(\frac{\alpha c}{v_{th}}\right)^{1/2} \sim 3 \ 10^{-2} \lambda$$
 (V-33)

Elle est donc pratiquement toujours remplie, même pour des transitions dans le domaine millimétrique.

L'évolution superradiante peut donc en général commencer à se produire. Elle transfère alors des atomes vers le niveau inférieur de la transition, créant les conditions nécessaires à l'apparition d'interactions dipôle-dipôle résonnantes. Pour que la superradiance puisse continuer à progresser, il faut que T_{SR} soit plus court que les temps caractéristiques de transfert_s résonnants ou de déphasage des cohérences millimétriques :

$$T_{SR} < T_1^{res}, T_2$$
 (V-34)

 $T_1^{rés}$ et T_2 sont, comme nous l'avons vu plus haut, du même ordre de grandeur mais beaucoup plus petits que T_1 . Si la condition (V-34) est réalisée, (V-33) l'est a fortiori. (V-34) peut s'écrire, après quelques transformations :

 $w \ge \frac{\lambda}{3}$ (V-35)

La condition d'observation de la superradiance ne dépend donc pas du nombre total N d'atomes. Elle ne dépend que du rapport entre le diamètre du milieu et la longueur d'onde émise. En maintenant N constant, la superradiance doit donc disparaître dès que le diamètre du milieu est plus petit que λ .

44

Ce résultat avait déjà été obtenu par Friedberg et Hartman (¹³⁸). Leur étude, plus quantitative que celle que nous venons de présenter, montre bien que les interactions dipôle-dipôle tendent à limiter la superradiance d'un petit échantillon sphérique de dimension bien inférieure à λ . L'intérêt

des atomes de Rydberg est de permettre la mise en évidence expérimentale de cet effet, ce qui est, bien sûr, impossible sur des transitions dans le domaine optique.

b. Observation de la compétition entre superradiance et interactions de Van der Waals dans l'espace libre (^{3 3})

Le principe de l'expérience consiste donc à observer les transferts de population vers le niveau final d'une transition micro-onde, en fonction du diamètre w de l'échantillon atomique, à N et L constants.

Pour observer la superradiance dans l'espace libre, il est nécessaire de pouvoir exciter un nombre d'atomes assez important. Le seuil de superradiance, obtenu en comparant T_{SR} avec les temps caractéristiques des processus de déphasage des dipēles -autres que l'interaction de Van der Waals, est en effet de l'ordre de 10⁵ à 10⁶ atomes (⁵⁷). Nous avons donc choisi de travailler sur les niveaux de Rydberg du césium. Il est en effet relativement facile de produire des jets atomiques intenses de ce métal, par des techniques décrites en détail dans (³¹) (densité d'atomes dans l'état fondamental de l'ordre de 10¹³ cm⁻³ au plus). Ces atomes sont portés dans les niveaux de Rydberg nD (n \sim 20 à 50) par une excitation optique au moyen de lasers à colorants en impulsion, selon un schéma très semblable à celui utilisé pour le sodium (voir chapitre II) : on réalise une excitation en échelons par les transitions 6S \Rightarrow 6P₃à 8521 Å et 6P_{3/2} nD autour de 5100 Å.

L'excitation ne se faisant pas dans une cavité résonnante, l'émission superradiante peut se produire a priori sur toutes les transitions vers des niveaux plus profonds que l'état initialement préparé. Il se trouve toutefois que le temps caractéristique de superradiance vers le niveau nP immédiatement inférieur est beaucoup plus court que tous les autres. La superradiance se produit donc uniquement sur la transition nD \rightarrow nP.

Il nous faut pouvoir faire varier le diamètre du milieu à N et L donnés. L est céterminé par le diamètre du jet atomique au niveau de l'intersection avec les faisceaux laser (L \sim 5 mm). Pour varier w, nous plaçons une lentille convergente (f = 300 mm) sur les faisceaux laser. Le diamètre de la tache focale obtenue est de l'ordre de 100 µm. Les faisceaux laser ont donc



Figure 34: Signaux d'ionisation résolus en temps. Le niveau initialement
préparé est le 27d ($N = 5 \ 10^7$ atomes)

- a) w = 1 mm, $\rho = 1.6 \ 10^9 \ cm^{-3}$: la superradiance vers le niveau 27P est clairement apparente.
- b) w = 200 μ m, ρ = 3.10¹⁰ cm⁻³ : la superradiance a disparu au profit de transferts induits par collisions entre atomes très excités.

la forme d'un cône, leur diamètre augmentant de 22 μ m environ par centimètre d'éloignement à partir du foyer. Les tailles des faisceaux ont été mesurées en enregistrant l'intensité transmise à travers un trou de diamètre 50 μ m, déplacé perpendiculairement à l'axe des lasers. En changeant la distance entre la lentille et le jet atomique, on peut donc faire varier continuement le diamètre w entre 100 μ m et 1 mm environ. La divergence des faisceaux étant relativement faible, leur diamètre ne varie pratiquement pas sur la longueur L : l'échantillon est donc bien cylindrique. De plus, si le laser vert ne sature pas la transition 6P \rightarrow nD, ce qui est le cas dans nos expériences, le nombre moyen d'atomes excités à chaque impulsion ne dépend pratiquement pas du diamètre des faisceaux.

Les atomes sont excités à l'intérieur d'un condensateur qui permet, par la méthode de l'ionisation par champ, de mesurer les transferts de population. Le délai entre l'impulsion laser et l'application de la rampe de champ est de l'ordre de 1 µs.

Nous n'avons pas appliqué, pour ces expériences, les procédures de calibration du gain de la chaîne de détection exposées en détail dans l'appendice 1. Nous ne disposions pas en effet, à l'époque, d'un ordinateur et ces techniques sont beaucoup trop lourdes pour être appliquées "à la main". De plus, le voisinage de jets atomiques très intenses dégrade très vite le gain du multiplicateur d'électrons. Le comptage d'électrons individuels n'est quelques jours ! Nous avons donc utilisé une méthode plus possible après bien adaptée à la calibration des faibles gains. Nous comparons en effet l'aire des signaux recueillis à la sortie du multiplicateur à l'aire des signaux obtenus en collectant les électrons directement sur la première dynode. Cette dernière détection a un gain égal à 1 exactement si l'énergie des électrons incidents est assez basse pour qu'il ne se produise pas d'émission d'électrons secondaires. Pour obtenir un grand nombre d'électrons de basse énergie, nous excitons des niveaux de Rydberg très proches de la limite d'ionisation ou nous utilisons le phénomène d'ionisation en avalanche décrit dans le paragraphe V.B.4.

La figure 34-a présente le signal d'ionisation moyen obtenu pour N = 5 10⁷ atomes, w = 1 mm (c'est-à-dire ρ = 1.6 10⁹ cm⁻³). Les atomes
sont initialement excités dans le niveau 27D. La superradiance, se manifestant par un transfert de population important vers le niveau 27P, est clairement observable. La longueur d'onde rayonnée λ est ici de 0.57 mm. La figure 34-b présente le signal enregistré dans les mêmes conditions, avec w = 200 µm. Le transfert vers le niveau 27P est alors beaucoup plus faible et des transferts vers d'autres niveaux apparaissent. Ceux-ci sont dus aux collisions de transfert non résonnantes. La superradiance est donc, dans ce cas, détruite par les interactions dipôle-dipôle. Sa disparition étant assez brusque, en fonction de w, nous avons pu mesurer le diamètre minimum w_{min} d'apparition de la superradiance en fonction de λ .

Nous avons utilisé les transitions $24D \rightarrow 24P$, $27D \rightarrow 27P$, $31D \rightarrow 31P$ et $32S \rightarrow 31P$, dont les longueurs d'onde respectives sont 0.38, 0.57, 0.91, 1.83 mm. Les rapports w_{\min}/λ mesurés sont respectivement 0.47±0.08, 0.53±0.05, 0.50±0.05, 0.27±0.10. Ils sont donc en bon accord qualitatif avec l'ordre de grandeur donné plus haut ($w_{\min}/\lambda = 0.33$). Nous avons aussi vérifié l'indépendance de w_{\min} en fonction de N.

Enfin, l'analyse de la forme des signaux d'ionisation, quand la superradiance disparaît nous a permis de déduire un ordre de grandeur pour les temps caractéristiques de transferts non résonnants, en bon accord avec les prédictions du paragraphe V.B.1.a.

Bien entendu, les résultats que nous obtenons dans cette expérience ne sont que qualitatifs. Il nous est en particulier impossible de déterminer si l'émission superradiante est complètement inhibée par l'interaction de Van der Waals ou si elle est arrêtée en cours d'évolution, comme le laissent prévoir les calculs de Friedberg et Hartman (¹³⁸).

c. Cas de la superradiance en cavité

La compétition entre superradiance et interaction de Van der Waals est beaucoup moins favorable à cette dernière dans une cavité résonnante. L'évolution superradiante est en effet accélérée par la cavité : le rapport entre les temps d'émission dans l'espace libre et dans la cavité est égal à N_{cav}, défini au chapitre III par l'équation (III-38). Les interactions de Van der Waals ne sont, quant à elles, pratiquement pas modifiées par rapport à ce qu'elles sont dans l'espace libre. La seule modification à apporter est en effet de tenir compte, en plus des interactions dipôle-dipôle entre atomes, du couplage des atomes avec leurs images électriques dans les miroirs de la cavité. La dimension caractéristique d'une cavité étant de l'ordre du centimètre, cette interaction est tout à fait négligeable.

La superradiance l'emporte donc dès que la condition :

$$T_{R} = (N \Gamma \eta_{cav})^{-1} < T_{1}^{rés}, T_{2}$$
 (V-36)

est remplie. Si V est le volume du milieu atomique, cette condition s'écrit :

$$v > \frac{\mathcal{O}}{Q} - \frac{20\pi^2}{3} - \frac{\alpha c}{\Gamma} - \frac{a^2}{\lambda^3}$$
 (V-37)

(\mathcal{U} est le volume effectif du mode de la cavité).

Pour un niveau n = 30, on a $\Gamma \sim 100 \text{ s}^{-1}$, $\lambda \sim 1 \text{ mm}$ et on doit donc réaliser :

$$v > 4 \frac{v}{Q}$$
 (v-38)

Dans la plupart de nos expériences, le milieu excité est un cylindre dont la longueur est pratiquement égale à w_0 , rayon du mode gaussien de la cavité. Le diamètre w de ce cylindre doit donc être tel que (pour n \sim 30 toujours) :

$$w > \sqrt{\frac{w_o L}{Q}}$$
 (V-39)

On a en général $w_0 \sim 1 \text{ mm}$, $L \sim 1 \text{ cm}$, $Q \sim 10^4 - 10^5$. La superradiance l'emporte donc dès que w > 10-30 µm, ce qui est toujours le cas pour les expériences décrites dans ce mémoire (w $\sim 100 \text{ µm}$ en pratique). L'utilisation d'une cavité résonnante présente donc l'avantage d'accélérer les phénomènes radiatifs sans modifier l'interaction de Van der Waals et donc de rendre cette dernière négligeable dans la plupart des cas. Un traitement théorique plus précis de la superradiance en cavité, incluant les interactions dipôle-dipôle, est très complexe. En effet, les atomes étant distribués au hasard dans le milieu, les déplacements de fréquence induits par l'interaction de Van der Waals brisent la symétrie du couplage atomes-champ dans une permutation de deux atomes quelconques. Il n'est donc plus possible a priori de parler en termes d'opérateurs collectifs, de niveaux de Dicke ou même de vecteur de Bloch.

On peut toutefois obtenir un comportement approché du système en incluant, dans les équations de Bloch-Maxwell (voir § IV.B), un terme modélisant les interactions dipôle-dipôle par un champ moyen, égal à $\vec{P}/3\epsilon_{o}V$ où \vec{P} est la polarisation, supposée uniforme, du milieu atomique. Cette démarche est exactement celle qui fut adoptée par Friedberg et Hartman (¹³⁸) pour traiter ce problème dans l'espace libre et conduit à des résultats voisins. En particulier, dans certaines conditions, l'évolution superradiante démarre, mais s'arrête quand le vecteur de Bloch passe au voisinage de l'équateur ($\theta = \pi/2$).

Il serait certainement très intéressant de mettre en évidence cet effet de "subradiance" lié aux interactions dipôle-dipôle. On se heurte toutefois à un problème expérimental important. La densité du milieu reste en effet relativement élevée, malgré la dispersion des vitesses thermiques, pendant tout le temps de transit entre la cavité et le condensateur de détection (voir chapitre II). Les collisions de Van der Waals non résonnantes induisent pendant cette période des transferts qui rendent très difficile l'interprétation des signaux. Cet effet commence à se manifester bien avant que la densité nécessaire à l'observation de la subradiance de Van der Waals n'ait été atteinte. Là encore, la seule solution pour contourner cette difficulté serait de détecter les populations atomiques à l'intérieur même de la cavité ce qui, comme nous l'avons vu dans le chapitre II, ne va pas sans poser quelques problèmes.

3) Observation des élargissements de raies spectrales dues aux interactions de Van der Waals entre atomes de Rydberg

En plus de leur influence sur les transitions millimétriques entre niveaux de Rydberg voisins, les interactions de Van der Waals qui,



- Figure 35: Spectre optique d'excitation au voisinage du niveau 40D (le laser
assurant la transition $6P \rightarrow nl$ est balayé en fréquence)
 - a) $\rho \, \sim \, 10^{10} \, \text{ cm}^{-3}$: les raies sont bien résolues. La largeur résiduelle (10 GHz) est due principalement à celle du laser à coloran
 - b) $\rho = 2 \ 10^{11} \ \text{cm}^{-3}$: les raies sont très élargies ($\sim 40 \ \text{GHz}$) par interactions entre atomes très excités

comme nous l'avons vu dans le paragraphe 1.a, induisent des déplacements de niveaux, doivent modifier les raies optiques d'excitation des états de Rydberg depuis les niveaux profonds. On peut donc s'attendre à un élargissement important de ces raies pour un gaz dense d'états de Rydberg.

Nous avons effectivement pu mettre en évidence cet effet (³⁴) en utilisant le dispositif expérimental décrit dans le paragraphe V.B.2.b. Dans cette expérience, les dimensions du milieu atomique sont maintenues constantes (L \diamond 5 mm, w \diamond 100 µm) et on enregistre l'aire <u>totale</u> du signal d'ionisation par champ en fonction de la longueur d'onde λ_2 du laser à colorant assurant la transition 6P \rightarrow nS ou nD. La figure 35-a présente une petite partie du spectre obtenu avec une faible puissance laser (\diamond 200 W crête) et correspondant donc à une faible densité d'atomes de Rydberg (\sim 10¹⁰ cm⁻³ au sommet des raies). Les pics correspondant à des niveaux différents sont bien résolus. La largeur de raie est ici limitée essentiellement par la largeur spectrale du laser, de l'ordre de 8 GHz. Cette largeur est contrôlée en permanence en enregistrant, en même temps que le spectre, le signal transmis à travers un étalon Fabry-Perot (intervalle entre ordres 30 GHz, finesse 15, c'est-à-dire largeur de raie de l'ordre de 2 GHz). On obtient ainsi de plus une calibration précise de l'axe des fréquences.

La figure 35-b présente la même partie du spectre, enregistrée avec un laser beaucoup plus intense (5 kW, c'est-à-dire une intensité de l'ordre de 150 kW/mm² au niveau du jet). La densité maximum d'états de Rydberg est ici de l'ordre de 2 10^{11} cm⁻³. Les raies sont maintenant considérablement élargies (30 à 50 GHz) et les raies correspondant à des niveaux voisins commencent même à se recouvrir.

Le problème est de savoir si cet élargissement énorme des raies spectrales peut être attribué sans ambiguité aux interactions de Van der Waals entre états très excités. Il nous faut pour cela éliminer les hypothèses concurrentes.

La première cause d'élargissement possible est l'élargissement radiatif des niveaux par la forte intensité du laser à colorant. Estimer l'ordre de grandeur de cet effet est extrêmement simple. Pour une puissance

laser crête de l'ordre de 5 kW, c'est-à-dire une intensité de 150 kW/mm², le champ électrique du laser est de l'ordre de 10⁷ V/m. En tenant compte de la valeur du dipôle de la transition optique (voir chapitre I), on trouve un élargissement de l'ordre de 10 GHz, bien inférieur à celui qui est observé (50 GHz). Cet ordre de grandeur peut être confirmé expérimentalement. En maintenant l'intensité du laser fixe, on diminue considérablement l'intensité du jet atomique en agissant sur la température du four. Les spectres obtenus alors correspondent à une faible densité d'états de Rydberg. On observe effectivement encore un petit effet d'élargissement (quelques GHz), lié à l'intensité du laser et tout à fait compatible avec l'ordre de grandeur précédent. L'élargissement radiatif est donc tout à fait insuffisant pour rendre compte de ceux observés à très haute densité.

L'influence des collisions avec les atomes restés dans des niveaux peu excités ($^{139} - ^{140}$) (6S ou 6P) est, elle aussi, négligeable. Les sections efficaces de collisions entre ces atomes et les états de Rydberg sont en effet assez faibles. Stoicheff et al (62) ont en effet observé des élargissements de raies de l'ordre de 1 GHz seulement pour des états de Rydberg immergés dans un gaz d'atomes peu excités à une pression de l'ordre du Torr.

Une autre cause possible d'élargissement est l'effet Stark dans un champ électrique inhomogène. Comme la largeur des raies dépend très fortement de la densité, ce champ ne pourrait être produit que par des ions ou des électrons créés au moment de l'excitation laser (par exemple par photoionisation des atomes de Rydberg). Pour induire des élargissements de l'ordre de 30 GHz sur les niveaux considérés, un champ de l'ordre de 10 V/cm est nécessaire. Un tel champ est créé par un plasma d'une densité voisine de 10¹¹ charges/cm³ (¹⁺¹). Il serait donc nécessaire qu'une fraction très importante des atomes soit ionisée au moment de l'impulsion laser. Nous avons mesuré cette proportion en appliquant la rampe de champ électrique de détection immédiatement après l'impulsion laser et en déterminant le rapport entre le signal provenant du niveau initialement préparé et le signal recueilli instantanément après l'application de la rampe de champ, qui correspond donc à des charges libres.



Figure 36: Principe de l'excitation d'une paire d'atomes par un laser
loin de résonance. Les niveaux d'énergie du système sont
représentés en fonction de $1/x^3 = (a_0 n^2/r)^3$. Le processus
d'excitation est une transition à deux photons vers les
niveaux déplacés par interaction de Van der Waals.

٠.

Nous avons pu vérifier ainsi que la proportion d'atomes ionisés <u>pendant l'impulsion laser</u> n'est jamais supérieure à quelques pour cents (le phénomène d'ionisation collective, décrit dans le prochain paragraphe, ne se produit qu'après un délai de quelques dizaines de nanosecondes). Cette faible valeur est d'ailleurs tout à fait compatible avec les sections efficaces de photoionisation.

Il est donc tout à fait légitime de considérer que les élargissements observés sont dus aux interactions de Van der Waals entre atomes de Rydberg. Il nous faut cependant préciser un peu le mécanisme d'excitation. Le laser joue en effet dans cette expérience un double rôle : il prépare le système et il sonde simultanément ses propriétés. On peut se poser, en particulier pour les raies très élargies, le problème du mécanisme d'excitation des premiers atomes de Rydberg par un laser dont la fréquence est très différente de la fréquence atomique, non déplacée puisqu'aucun atome n'a encore été préparé dans un état excité. En termes imagés, le premier atome qui va être excité ne "sait" pas encore que d'autres le seront, avec lesquels il interagira. La solution de ce paradoxe apparent est qu'il ne faut pas considérer l'excitation individuelle d'atomes isolés, mais une excitation collective, par plusieurs photons laser, d'un ensemble d'atomes dont les niveaux sont déplacés par l'interaction de Van der Waals.

Les atomes restés dans le niveau 6S ne jouent évidemment aucun rôle dans les élargissements observés. Nous considérons donc un ensemble d'atomes initialement dans le niveau 6P. Nous nous placerons de plus, pour décrire ce milieu dense, dans l'approximation quasi statique et nous supposerons donc, dans un premier temps, que les atomes sont immobiles. Le couplage dipôle-dipôle dépendant fortement de la distance interatomique, seule l'interaction entre plus proches voisins sera prise en compte. Nous nous ramenons donc au problème de l'interaction de paires d'atomes avec le faisceau laser.

Sur la figure 36, nous avons représenté schématiquement quelques uns des niveaux d'énergie d'une telle paire en fonction de $1/x^3$ où x est la distance interatomique exprimée en unités de rayon atomique du niveau $|nl\rangle >$ $(x = r/a_0 n^2)$.

....

Dans l'état $|6p, 6P \rangle$, les deux atomes sont dans des niveaux profonds. Cet état n'est donc pas perturbé par l'interaction de Van der Waals à l'échelle de distances interatomiques où nous nous plaçons (r \sim 1 µm, x \sim 10). L'interaction d'un état profond avec un atome dans un niveau très excité étant également négligeable, l'énergie du niveau $|6P, nl \rangle$ ne dépend pas non plus de x. En revanche, l'état $|nl, nl \rangle$ où les deux atomes sont dans un niveau très excité est fortement perturbé par l'interaction dipôle-dipôle qui le couple à d'autres états. Pour simplifier le problème, nous considérerons le couplage avec un seul état, de la forme $|n', l \pm 1, n'', l \pm 1 \rangle$. L'ordre de grandeur du déplacement d'énergie $M\Delta\omega_1$ peut être estimé à partir du hamiltonien de Van der Waals et de l'écart d'énergie entre ces niveaux (voir § 1.a). On trouve :

$$\Delta \omega_{1} \sim \frac{(3/2)^{2} (q a_{0} n^{2})^{2}}{(4\pi \varepsilon_{0} \not n) x a_{0} n^{2}} \cong 4.5 \omega_{B} / x^{3} \qquad (V-40)$$

où $\omega_{\rm B} = \frac{q^2}{8\pi\epsilon_{\rm O}}$ est l'énergie de liaison de l'état

nl > exprimée en unités de pulsation.

Examinons maintenant l'excitation de ce système par un champ laser dont la largeur spectrale est faible devant l'écart entre niveaux. Pour des atomes très éloignés (x >> 1), les transitions |6P, 6P > +|6P, nl > et |6P, nl > + |nl, nl > sont dégénérées et ne peuvent être induitesque par un laser dont la fréquence ω_{L} est égale à la fréquence ω_{O} de la transition non perturbée. Pour deux atomes proches, en revanche, et un laser hors résonance ($\omega_{\text{L}} \neq \omega_{\text{O}}$), le processus d'excitation de la paire est un processus à deux photons, schématisé sur la figure 36 : une transition virtuelle vers le niveau |6p, nl > (le laser n'est pas résonnant avec cette transition), suivie immédiatement d'une transition vers le niveau |nl, nl > (ou $|n' l \pm 1$, $n'' l \pm 1 >$), déplacé par l'interaction de Van der Waals. Ce processus d'excitation <u>à deux photons d'une paire d'atomes</u> lève, bien entendu, le paradoxe mentionné plus haut.

Pour préciser l'ordre de grandeur de l'efficacité de cette excitation, il est nécessaire de tenir compte du mouvement des atomes pendant

l'impulsion laser. Considérons par exemple un désaccord $\omega_{\rm L} - \omega_{\rm O}$ de l'ordre de 50 GHz (ailes des raies nD sur la figure 35-b). Le laser est alors résonnant sur la transition à deux photons quand la distance x entre atomes est de l'ordre de 5.2 (niveau 40D). Les atomes sortent de résonance quand ils se sont déplacés de Δx , tel que $\Delta(\Delta \omega_1(x))$ soit de l'ordre de la largeur spectrale du laser (quelques Gigahertz). Δx est donc de l'ordre de 0.25. La paire d'atomes reste donc à résonance pendant un temps de l'ordre de

 $\tau_{\rm C} = \frac{\Delta x \ n^2 \ a_{\rm O}}{v_{\rm th}} , \ {\rm c'est-à-dire\ 60ps.} \ {\rm En\ tenant\ compte\ des\ différents\ para-mètres\ atomiques\ et\ pour\ une\ intensité\ laser\ de\ 150\ kW/mm^2,\ la\ probabilité\ d'excitation\ de\ la\ transition\ à\ deux\ photons\ est\ donc\ de\ l'ordre\ de\ 5\ 10^{-2}.$ D'autre part, pour une densité du jet voisine de $10^{12}\ {\rm cm}^{-3}$, environ un atome sur quatre passe à une distance x < 5.2 de son plus proche voisin pendant la durée de l'impulsion laser (\sim 10 ns). Le taux d'excitation du niveau 6P par ce processus est donc typiquement de l'ordre de 1% : un nombre significatif d'atomes de Rydberg peuvent être préparés dans le niveau |n& > par un laser loin de résonance.

Dès qu'un nombre suffisant d'atomes sont excités dans le niveau $|nl\rangle$, le processus d'excitation de paires à deux photons entre en concurrence avec des processus à un photon, où une paire d'atomes est excitée directement à partir du niveau |6p, $nl\rangle$ lors du passage d'un état de Rydberg auprès d'un atome dans le niveau 6p.

De la combinaison de ces processus résulte donc une forme de raie dont la dépendance avec l'intensité du laser est certainement très compliquée mais dont la largeur est nécessairement de l'ordre de $\Delta \omega_1$ (\mathbf{x}_{\min}), où \mathbf{x}_{\min} est la distance moyenne entre atomes de Rydberg plus proches voisins. Pour une densité ρ de 2 10¹¹ cm⁻³ (fig. 35-b), \mathbf{x}_{\min} est de l'ordre de 7 et l'interaction de Van der Waalsmoyenne est de l'ordre de 3 10¹¹ s⁻¹, correspondant à un élargissement de fréquence des raies de l'ordre de 50 GHz, en bon accord qualitatif avec la valeur mesurée.

Bien sûr, nous n'avons présenté ici qu'une analyse d'ordres de grandeur. La première étape vers une théorie plus raffinée de ces formes de raie est le calcul précis, en fonction de x, de la position des niveaux

÷



Figure 37 : Ionisation en avalanche. Forme des signaux d'ionisation résolus en temps pour différentes valeurs de la densité (niveau initialement excité 41D). Le seuil d'ionisation est de l'ordre de 2.5 10¹¹ cm⁻³.

d'énergie d'une paire d'atomes. Comme nous l'avons déjà mentionné plus haut (§ V.B.1.a), nous avons effectué ce calcul numériquement pour quelques niveaux (43D et 44S en particulier) (³¹) en utilisant une base d'états restreinte à ceux susceptibles de contribuer de façon majeure au déplacement des niveaux. Le résultat de la diagonalisation du hamiltonien de Van der Waals dans cette base confirme l'ordre de grandeur de l'étalement des raies $\Delta \omega_1$ (\mathbf{x}_{\min}). Il laisse aussi prévoir un effet de déplacement vers le rouge des raies 6P \rightarrow nD, de l'ordre de $\Delta \omega_1$ lui aussi. Celui-ci n'a pas pu être mis en évidence expérimentalement : la stabilité de position du Fabry-Perot d'analyse, utilisé pour contrôler la largeur spectrale du laser, n'est pas suffisante pour que nous disposions d'une référence absolue de fréquence. Un calcul complet de la forme de raie nécessiterait de plus l'évaluation, en fonction de la fréquence du laser, des contributions des processus à un et deux photons décrits plus haut. Ce calcul, très complexe, n'a pas encore été effectué.

Les effets décrits dans ce paragraphe fournissent encore un exemple spectaculaire illustrant l'énorme facteur d'échelle entre les atomes de Rydberg et les niveaux profonds. Des élargissements de raies optiques de l'ordre de l'écart entre niveaux, dus à l'interaction de Van der Waals, peuvent aussi être observés sur ces derniers mais pour des densités de l'ordre de 10^{20} à 10^{21} cm⁻³. De telles densités sont atteintes dans un gaz pour des pressions de l'ordre de 100 atmosphères, alors que la pression équivalente de notre gaz d'atomes de Rydberg n'est que de 10^{-4} torrs !

4) Ionisation collective d'un gaz d'atomes de Rydberg à très haute densité

Lors de nos expériences sur les gaz denses d'états de Rydberg, nous avons constaté un curieux phénomène se manifestant par une modification radicale de la forme des signaux d'ionisation à partir d'une certaine densité (35). La manifestation de cet effet, déjà observé par M. Gross lors de son travail sur la superradiance des états de Rydberg dans l'espace libre (22), est représentée sur la figure 37. On y a porté, pour différentes densités du gaz d'atomes de Rydberg, les signaux d'ionisation résolus en temps. Pour une faible densité (10⁸ cm⁻³, courbe a), on obtient un pic étroit, caractéristique du niveau 41D excité par le laser. A plus forte densité (2.5 10¹¹ cm⁻³,



Figure 38: Densité seuil d'apparition de l'ionisation en avalanche en
fonction de Log n*. Cercles : valeurs expérimentales,
ligne : prédiction du modèle théorique avec $\sigma = (1/10) \sigma_q$.

courbe b), ce pic est élargi. Cet élargissement est la manifestation de transferts vers des niveaux voisins sous l'influence de collisions de Van der Waals non résonnantes pendant le délai de l'ordre de la microseconde qui s'écoule entre l'impulsion laser et l'application de la rampe de champ de détection. Pour une densité à peine plus grande ($\sim 2.6 \ 10^{11} \ cm^{-3}$, courbe c), un nombre important d'électrons sont collectés dans un champ électrique extrêmement faible, tout au début de la rampe. Ils correspondent donc à l'apparition de charges libres dans le milieu. Très rapidement, ce signal devient dominant : la courbe d)correspond à une densité de 4.5 $10^{11} \ cm^{-3}$.

Cette ionisation est un phénomène à seuil : l'apparition de charges libres se produit pour une variation très faible de la densité atomique. Nous avons mesuré la densité seuil en fonction du nombre quantique principal effectif n^{*} du niveau initialement excité par le laser. Les résultats sont représentés par les points sur la figure 38. La variation de ce seuil est compatible avec une loi en n^{-4} . Nous avons pu vérifier d'autre part que l'apparition de ces charges libres ne se fait pas instantanément au moment de l'impulsion laser. En fait, un délai de l'ordre de quelques dizaines de nanosecondes est nécessaire pour que l'ionisation du milieu se produise.

L'échelle de temps de ce processus semble indiquer que le mouvement relatif des atomes joue un rôle important. Nous avons donc développé un modèle simple qui rend assez bien compte de cet effet en termes d'ionisation en avalanche due aux collisions entre atomes de Rydberg et entre atomes de Rydberg et électrons libres.

Les collisions les plus importantes susceptibles de créer des charges libres dans le milieu sont les suivantes :

$Cs^* + hv \rightarrow Cs^+ + e^-$	(V-41)
$Cs^* + Cs \rightarrow Cs^+ + Cs + e^-$	(V-42)
$Cs^* + Cs \rightarrow Cs_2^+ + e^{-i\Delta}$	(V-43)
$Cs^* + Cs^* \rightarrow Cs^* + Cs^+ + e^-$	(V-44)
$Cs^* + e^- \rightarrow Cs^+ + 2e^-$	(V-45)
$Cs^* + Cs^+ \rightarrow Cs^+ + Cs^+ + e^-$	(V-46)

où Cs^{*} représente un atome de césium dans un niveau de Rydberg.

Ces équations décrivent respectivement : la photoionisation (V-41), les collisions ionisantes entre un état de Rydberg et un atome dans le niveau fondamental (V-42), l'ionisation associative $(^{142})(^{143})$ (V-43), les collisions ionisantes entre deux niveaux de Rydberg $(^{134})$ (V-44), les collisions Rydberg-électrons $(^{144})$ (V-45) et Rydberg-ions $(^{144})$ (V-46).

Les longueurs d'onde des deux lasers utilisés pour l'excitation étant de 8521 Å d'une part et d'environ 5100 Å d'autre part, la photoionisation produit des électrons relativement énergétiques. L'énergie de liaison d'un niveau de Rydberg n'est en effet, en unités de fréquence, que de quelques Terahertz. La photoionisation est donc relativement peu probable. Nous avons vu de plus, dans le paragraphe précédent, que le nombre de charges libres créées au moment de l'impulsion laser est extrêmement faible (1% environ du nombre d'atomes de Rydberg). Le processus (V-41) est donc négligeable en première approximation.

Les sections efficaces des collisions atome de Rydberg-atome dans un état profond sont typiquement dix fois plus faibles au moins que celles des collisions entre atomes de Rydberg (134). Dans un milieu tel que celui que nous étudions, où le nombre total d'atomes de Rydberg est voisin du nombre d'atomes dans l'état fondamental ou dans l'état 6p (les lasers sont presque saturants), les collisions décrites par (V-42) et (V-43) ont donc une contribution négligeable.

Enfin, les sections efficaces des collisions Rydberg-ion et Rydberg-électron sont très voisines (¹⁴⁴). Les taux d'ionisation dus à ces deux processus sont donc dans le rapport de la vitesse moyenne des ions à celle des électrons. Si on suppose, ce qui semble assez légitime, que ces deux espèces ont une énergie voisine de l'énergie thermique, les collisions avec les électrons sont de loin dominantes.

En définitive, seules les réactions (V-44) et (V-45) peuvent contribuer de façon notable à l'ionisation du milieu.

Après l'excitation laser, l'échantillon ne contient pratiquement que des états de Rydberg. Ceux-ci subissent des collisions entre eux, produisant des ions et des électrons. Ces derniers, animés d'une très grande vitesse, puisqu'ils sont produits à une énergie voisine de l'énergie thermique, quittent le milieu très rapidement (diamètre de l'échantillon $w \sim 100 \mu$). Les ions, en revanche, beaucoup plus lents, restent sur place. Ils créent alors une charge d'espace qui peut, dès que 10⁴ à 10⁵ d'entre eux ont été créés, retenir les électrons produits ensuite. Ces électrons, piégés dans l'échantillon et animés de grandes vitesses, ionisent alors rapidement les états de Rydberg restants en créant un phénomène d'avalanche. Cette avalanche est, bien entendu, en compétition avec l'expansion du milieu due à la dispersion des vitesses thermiques qui, en diluant l'échantillon, tend à rendre les processus collisionnels moins efficaces.

Cette interprétation relie cet effet à des observations plus anciennes sur les états de Rydberg du strontium (¹⁴²) et aussi à l'ionisation importante observée par McIlrath et Lucatorto dans des gaz alcalins à haute densité irradiés sur leur raie de résonance par un faisceau laser intense (¹⁴⁵). Là encore, le facteur d'échelle entre niveaux de Rydberg et états profonds apparaît clairement : la densité, dans ces dernières expériences, est de l'ordre de 10^{17} cm⁻³, alors qu'elle n'est, dans le phénomène que nous décrivons ici, que de 10^{11} - 10^{12} cm⁻³.

On peut donner une interprétation plus quantitative par une simple équation de bilan détaillé. On peut en effet écrire :

$$\frac{dN_R}{dt} = \left[-\frac{1}{T_e} - \frac{1}{T_R} \right] N_R \qquad (V-47)$$

où N_R est le nombre d'atomes de Rydberg restant à l'instant t après l'impulsion laser. T_R^{-1} est le taux des collisions ionisantes entre atomes de Rydberg :

$$T_{R}^{-1} = \frac{N_{R} \sigma v_{R}}{Lw^{2}}$$
 (V-48)

où v $_{\rm R}$ est la vitesse relative moyenne des atomes de Rydberg. w est le diamètre du milieu à l'instant t qui augmente linéairement avec le temps :

$$w \cong w_0 + v_R t$$
 (V-49)

T est le taux des collisions entre électrons et atomes de Rydberg :

$$T_{e}^{-1} = \frac{\binom{N_{o} - N_{R}}{O}}{L_{w}^{2}} \sigma v_{e}$$
(V-50)

où v_e est la vitesse moyenne des électrons par rapport aux atomes, qui est très grande devant v_R et où N_o est le nombre d'états de Rydberg initialement préparés. Nous prenons ici, pour ce modèle d'ordres de grandeur, la même section efficace σ pour les deux processus d'ionisation. σ sera d'ailleurs le seul paramètre ajustable de ce modèle.

L'équation d'évolution de $N_{_{\rm D}}$ peut donc s'écrire :

$$\frac{\mathrm{dN}_{\mathrm{R}}}{\mathrm{dt}} = -\frac{\mathrm{N}_{\mathrm{R}}^{2}}{\mathrm{N}_{\mathrm{O}}\mathrm{T}_{\mathrm{O}}} \left[\frac{\mathrm{w}_{\mathrm{O}}}{\mathrm{w}(\mathrm{t})}\right]^{2} - \frac{\mathrm{N}_{\mathrm{R}}(\mathrm{N}_{\mathrm{O}}-\mathrm{N}_{\mathrm{R}})}{\mathrm{N}_{\mathrm{O}}\mathrm{T}_{\mathrm{O}}} \left[\frac{\mathrm{w}_{\mathrm{O}}}{\mathrm{w}(\mathrm{t})}\right]^{2} - \frac{\mathrm{v}_{\mathrm{e}}}{\mathrm{v}_{\mathrm{R}}} (\mathrm{v}-51)$$

où l'on a posé :

$$\frac{1}{T_{o}} = \frac{N_{o} \sigma v_{R}}{L w_{o}^{2}}$$
(V-52)

L'effet de l'expansion du milieu est pris en compte ici explicitement par la dépendance temporelle de w (pendant la durée de l'expérience, de l'ordre de la microseconde, la longueur L de l'échantillon ne varie pratiquement pas en valeur relative).

La résolution numérique de l'équation (V-51) (³¹) reproduit assez bien les résultats expérimentaux. En particulier, le taux d'ionisation reste toujours très faible si la population initiale est inférieure à un seuil, l'avalanche n'ayant alors pas le temps de se produire avant que le milieu ne se soit dilué. Le délai d'apparition du signal de charges libres -quelques dizaines de nanosecondes- est également en bon accord avec nos déterminations qualitatives. Enfin, le seuil déterminé par la résolution de cette équation obéit, comme 1/ σ , à une loi en n^{*-4}. Ses variations sont représentées par la ligne continue sur la figure 38. La valeur de σ utilisée ici est 0.25 (a n²)², en accord qualitatif avec d'autres déterminations de ce paramètre (¹³⁴). Elle est cependant environ 5 fois plus petite que la

valeur attendue. Ce désaccord peut s'expliquer soit par la naïveté de notre modèle, soit par une surestimation systématique de la densité du milieu. Cette dernière est peut-être due soit à la mauvaise précision de la méthode de calibration du gain de la chaîne de détection que nous avons utilisée ici (voir paragraphe 2.b), soit à une sous-estimation du diamètre initial w_o de l'échantillon (ce qui est sans doute le cas si les lasers saturent fortement les transitions atomiques).

Ce phénomène d'ionisation collective semble purement lié aux collisions dans le milieu. Il commence à se produire pour des densités correspondant à des distances interatomiques moyennes de l'ordre de 15 a $_{\rm O}$ n². Il vient donc masquer un autre phénomène dont les manifestations seraient voisines mais dont l'interprétation est très différente. Il s'agit d'une transition de phase entre un état isolant -gaz d'atomes de Rydberg- et un état conducteur -plasma- : la transition de Mott (146). En effet, pour des densités très grandes, il est énergétiquement favorable qu'un électron quitte l'atome pour se délocaliser dans un plasma. La densité où apparaît cette transition de phase peut être calculée simplement par un petit modèle thermodynamique. Le premier électron libre est en effet produit dès que l'énergie de liaison d'un état de Rydberg est inférieure à l'énergie de polarisation du gaz dense de Rydberg par un électron et un ion libres. Après un calcul élémentaire (³¹), il apparaît que la transition de Mott se produit pour une distance interatomique moyenne de l'ordre de 4a n², c'est-à-dire pour des densités 50 fois plus grandes que le seuil du phénomène d'avalanche. Cette transition de phase, déjà étudiée dans de nombreux systèmes (excitons dans les semi-conducteurs, électrons solvatés dans l'ammoniac liquide pour ne citer qu'eux) serait très intéressante à mettre en évidence dans les gaz d'atomes de Rydberg. Il faudrait pour cela que le phénomène d'avalanche ne puisse se produire. Une solution possible serait d'effectuer l'expérience très rapidement, en un temps de l'ordre de la nanoseconde, beaucoup plus court donc que le délai d'apparition de l'avalanche. Une telle condition pose cependant de nombreux problèmes technologiques.

En conclusion à ce chapitre, nous pouvons donc distinguer cinq domaines de densité pour un échantillon d'atomes de Rydberg :

- * l'atome isolé (p \sim 0)
- * le régime où le phénomène dominant est l'interaction collective avec le rayonnement (voir chapitre IV) ($\rho < 10^9 - 10^{10} \text{ cm}^{-3}$)
- * le régime où les interactions de Van der Waals entre états excités dominent (voir § V.B.2) $(10^9 < \rho < 10^{11} \text{ cm}^{-3})$
- * le régime d'avalanche collisionnelle, que nous venons de décrire (p $\sim 10^{12}~{\rm cm}^{-3})$
- * et,enfin, le régime d'instabilité thermodynamique (p \sim 10 $^{1.3}$ cm $^{-.3}).$

Nous avons pu montrer, par un raisonnement d'ordres de grandeur et l'analyse de quelques expériences sur les interactions de Van der Waals, que toutes les expériences décrites dans ce mémoire (chapitres I, III, IV) peuvent être classées dans les deux premiers domaines.

CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Nous espérons avoir montré dans ce mémoire qu'un ensemble de N atomes de Rydberg interagissant avec le rayonnement dans une cavité microonde est un système idéal pour tester certains effets fondamentaux d'électrodynamique quantique : modification de l'émission spontanée, comportements collectifs en émission et en absorption, etc... Nous avons développé un modèle théorique qui permet de calculer exactement la plupart de ces effets dans le contexte des atomes de Rydberg.

Au prix de quelques précautions expérimentales, imposant en particulier de travailler avec des milieux de faible densité pour que les interactions de Van der Waals demeurent négligeables, le système effectivement réalisé s'approche beaucoup de celui décrit par le modèle théorique. Nous avons effectivement constaté un excellent accord entre théorie et expérience (accélération de l'émission spontanée, propriétés statistiques de l'émission ou de l'absorption collectives).

Parmi les effets les plus fondamentaux que nous ayons décrits, seul5 l'émission spontanée oscillante et les disparitions et réapparitions d'oscillations de Rabi dans un champ cohérent très faible n'ont pu être mis en évidence. Il ne semble pas irréaliste de penser pouvoir les observer avec des atomes de Rydberg, à condition toutefois de consentir à un effort technologique important (amélioration des finesses des cavités, techniques d'asservissement, préparation de jets atomiques "ralentis" par laser). L'effet, moins fondamental, de l'absorption thermique oscillante est sans doute, pour sa part, observable dans un délai assez bref.

Nous n'avons décrit ici que des situations où la cavité est au voisinage de la résonance, c'est-à-dire <u>amplifie</u> les propriétés radiatives du système. Une autre situation très intéressante correspond au cas d'une

cavité hors résonance : il est alors possible de <u>supprimer</u> les effets d'émission spontanée et les transferts induits par le rayonnement thermique. Dan Kleppner (¹³) suggère par exemple de placer un atome, excité dans le niveau supérieur d'une transition résonnante à la fréquence ω_{p} , dans un guide d'onde dont la fréquence de coupure ω_{c} est supérieure à la fréquence atomique. Si le guide d'onde est parfait, il n'y a dans ce cas <u>aucun mode</u> du champ à la fréquence ω_{p} . L'atome ne peut donc rayonner et conserve son énergie tant qu'il reste dans le guide.

L'équipe du M.I.T. a déjà démontré (¹²⁶) la variation brusque des taux de transfert induits par le rayonnement thermique quand la fréquence de coupure ω_c passe par la valeur ω . L'observation du même effet pour l'émission spontanée nécessite la préparation d'atomes qui ne peuvent rayonner que dans le domaine millimétrique. Les transitions optiques qui déterminent la durée de vie des niveaux de Rydberg de faible moment angulaire ne sont pas affectées en effet par un guide d'onde millimétrique. La démonstration récente (⁷¹) de la possibilité de préparer des niveaux de Rydberg avec |m| = $\ell = n-1$ (niveaux "circulaires"), qui ne peuvent rayonner que sur <u>une</u> transition millimétrique, est certainement très prometteuse à cet égard.

Les états circulaires présentent un autre intérêt : leur très grande durée de vie, leur très faible sensibilité à l'effet Stark en font des outils de choix pour des expériences de spectroscopie de haute résolution. Nous considérons actuellement la possibilité de préparer de tels états par une excitation continue, dans un jet atomique ralenti par laser (pour tirer tout le bénéfice possible de la longue durée de vie).

En plus de leurs aspects fondamentaux, les expériences décrites dans ce mémoire peuvent suggérer des applications pratiques intéressantes pour les atomes de Rydberg. Quand nous avons étudié les phénomènes d'émission ou d'absorption dans la cavité, nous avons montré en fait que le système se comporte comme un compteur de photons millimétriques.

Ce compteur n'est pas seulement capable de donner <u>l'intensité</u> <u>moyenne</u> du signal : il nous révèle aussi les <u>propriétés statistiques</u> du champ incident, ce qui est certainement tout à fait nouveau dans le domaine

millimétrique et sub-millimétrique. Nous n'avons pas décrit dans ce mémoire les expériences plus spécifiques que nous avons effectuées pour prouver la faisabilité d'un détecteur millimétrique à états de Rydberg. Elles sont résumées dans l'appendice 4. Mentionnons ici simplement qu'une analyse quantitative de ces mesures donne une détectivité meilleure que 10^{-18} W/ $\sqrt{\text{Hz}}$, dans la gamme des 100 GHz. Cette valeur (qui correspond aussi à une température de bruit du détecteur de l'ordre de 6 K) est comparable à celles obtenues par les meilleurs détecteurs à l'état solide. L'intérêt principal des détecteurs à états de Rydberg est la possibilité d'étendre ces résultats vers les courtes longueurs d'onde (la détectivité est en effet essentiellement indépendante de la longueur d'onde de la transition), là où il n'existe pas de bons détecteurs à l'état solide. Une technique de "réfrigération" du champ utilisant l'absorption collective oscillante devrait permettre aussi de réduire considérablement le bruit de ces détecteurs et pourrait même s'avérer utile pour un détecteur à état solide.

Il est possible également de réaliser, au moyen des atomes de Rydberg, une "photocathode" pour le rayonnement millimétrique permettant de réaliser de <u>l'imagerie</u> dans ce domaine de longueur d'onde (il suffit d'exciter une nappe d'atomes de Rydberg devant une galette de microcanaux utilisée comme détecteurs d'électrons). Une telle expérience est en cours de montage.

APPENDICE 1

.

.

•

QUELQUES DETAILS SUR LES PROCEDURES EXPERIMENTALES

.

÷i i

APPENDICE 1

QUELQUES DETAILS SUR LES PROCEDURES EXPERIMENTALES

Nous donnerons, dans cet appendice, quelques détails sur l'appareil expérimental, qu'il aurait été trop fastidieux d'exposer dans le chapitre II.

Nous ne reviendrons pas sur la technologie des lasers à colorants en impulsion, ni sur celle des jets atomiques. En effet, toute cette partie du montage a déjà été décrite en détails dans les références (22) et (36). Nous insisterons plutôt ici sur les problèmes d'acquisition de signaux et sur les techniques d'interfaçage d'un calculateur à l'expérience. La quantité d'information nécessaire à la réalisation des expériences décrites ici est telle qu'un dépouillement manuel aurait été une tâche exorbitante. La figure 22, par exemple, a nécessité l'analyse détaillée de plusieurs dizaines de milliers de signaux d'ionisation. Les problèmes informatiques ont donc occupé une place non négligeable dans notre travail. Nous pensons aussi que les solutions que nous avons développées sont transposables à la plupart des expériences résolues en temps et qu'il n'est donc pas inutile de les décrire en détail ici.

Nous reviendrons également sur la technologie des sources microonde, bien qu'elle ait déjà été évoquée dans $(^{22})$ et $(^{36})$. En effet, quelques progrès significatifs ont été réalisés depuis lors. Le plus important est sans doute le développement de multiplicateurs de fréquence, permettant d'obtenir une source micro-onde bon marché à partir d'un klystron centimétrique.



Figure 39 : Schéma de principe de l'électronique d'acquisition de données.

1. Acquisition des signaux. Interfaçage au calculateur

La figure **39** présente un schéma détaillé du système électronique et informatique qui nous permet d'acquérir les signaux d'ionisation par champ. Nous allons en décrire successivement les principaux éléments.

Le taux de répétition de l'expérience est déterminé par celui du laser Nd³⁺:YAG (Quantel YG481) qui sert à pomper les lasers à colorants. Les centres actifs de ce laser sont excités au moyen de lampes à décharge haute pression. L'allumage périodique des lampes est déterminé par une horloge dont la fréquence est de l'ordre de 9.3 Hz (110 ms entre deux impulsions laser). La durée de l'impulsion lumineuse produite par ces flashes étant assez longue (de l'ordre de la centaine de microsecondes); on tire parti de la durée de vie des niveaux excités du néodyme pour accumuler le plus d'énergie possible dans les barreaux amplificateurs. On empêche donc, au moyen d'une cellule de Pockels, l'effet laser de se produire avant qu'une quantité suffisante d'énergie n'ait été stockée. La cellule de Pockels est alors ouverte, et le rayonnement laser émis en une impulsion dont la durée est de 15 ns. En agissant sur le délai d'ouverture de la cellule de Pockels par rapport à l'allumage des lampes flash (environ 100 μ s), on peut faire varier l'énergie émise. Il est donc possible de compenser ainsi manuellement, pendant une acquisition de données, les dérives lentes du signal atomique, principalement liées aux dérives de température des cristaux générateurs d'harmoniques dans le laser à Yag et au vieillissement des colorants. L'intérêt de cette méthode apparaît clairement dans la description des expériences sur l'effet maser, où il est nécessaire que la population atomique totale reste aussi constante que possible.

Une photodiode détecte, ou plutôt supporte, une petite partie du faisceau infrarouge (1.06 μ) émis par le laser de pompe (les lasers à colorants sont pompés par le troisième harmonique de ce faisceau, obtenu dans les cristaux non linéaires déjà mentionnés). Après amplification, nous obtenons un signal qui sert à déclencher tous les éléments de l'expérience.

Le déclenchement le plus critique est celui de l'impulsion de tension appliquée sur l'électrode de trempe $(F_2(t))$. Si nous voulons conserver

une bonne résolution temporelle, sa stabilité par rapport à l'impulsion laser doit en effet être de l'ordre de la nanoseconde. Le signal de synchronisation générale déclenche une rampe de tension qui passe linéairement de 0 à 5 V en 2 µs environ. Cette tension est appliquée sur un comparateur rapide dont l'autre entrée est reliée à une source de tension continue réglable : potentiomètre ou sortie de l'un des convertisseurs digitaux analogiques interfacés au calculateur. La sortie du comparateur nous fournit alors le signal de déclenchement pour $F_2(t)$ dont le délai par rapport à l'excitation laser peut varier continuement entre 0 et 2 μ s. L'impulsion F₂(t) est produite par la décharge, au moyen d'un transistor rapide en régime d'avalanche, d'un condensateur sur une résistance de 50 ohms. Cette résistance est placée le plus près possible de l'électrode de trempe pour minimiser la dégradation du temps de montée liée à une mauvaise adaptation d'impédance entre le câble coaxial et l'électrode. Les performances de ce système sont assez bonnes. On obtient une impulsion de tension d'une durée de quelques microsecondes, plus longue en tous cas que le temps de transit des atomes dans le mode de la cavité, d'amplitude variable entre 0 et 300 V. Le temps de montée de cette impulsion et l'instabilité de son déclenchement sont inférieurs à /10 ns...

La rampe de tension $F_1(t)$ utilisée pour l'ionisation par champ est,elle aussi,déclenchée par le signal de synchronisation générale, après un délai variable entre 0 et 100 µs (là encore obtenu par comparaison d'une rampe à une tension constante). Ce délai est ajusté à une valeur proche du temps de transit des atomes entre la cavité et le condensateur de détection en maximisant simplement le signal électronique détecté. Il est ensuite maintenu fixe pendant toute la durée de l'expérience. $F_1(t)$ est obtenu par un circuit à thyratron dont le schéma et le principe de fonctionnement sont exposés dans la référence (¹⁴⁷). La valeur maximum de la tension peut être ajustée continuement entre 300 V et 2 kV. Elle permet donc, compte tenu de l'écartement des plaques du condensateur (4 mm), de détecter des niveaux aussi peu excités que n = 20. Le temps de montée de cette tension doit être soigneusement ajusté pour permettre la meilleure résolution temporelle possible des signaux provenant de niveaux adjacents. Nous avons utilisé en général un temps de montée de l'ordre de 20 µs.

Nous verrons par la suite qu'il est critique d'assurer une bonne stabilité temporelle du signal d'ionisation par champ par rapport au déclenche-

ment du digitaliseur de transitoires. Utiliser le signal d'amorçage de la rampe de champ $F_1(t)$ pour déclencher le digitaliseur de transitoires ne conduit pas à de bons résultats. Les atomes sont en effet ionisés vers la fin de la rampe de champ, c'est-à-dire 10 μ s après ce signal. Les instabilités intrinsèques au thyratron et les petites variations de l'alimentation haute tension (non régulée) provoqueraient alors une instabilité temporelle du signal d'ionisation de l'ordre de 50 à 100 ns. Il est donc beaucoup plus sûr de déclencher le digitaliseur de transitoires quand la rampe de tension $F_1(t)$ atteint une valeur donnée, proche du seuil d'ionisation des niveaux considérés. Pour cela, il suffit de comparer une tension continue réglable à $F_1(t)$, préalablement divisée par 100. La stabilité temporelle du signal d'ionisation par rapport à ce déclenchement est alors excellente.

Ą

Les électrons produits par ionisation des états de Rydberg sont accélérés par le champ électrique, puis détectés et amplifiés dans un multiplicateur d'électrons. Nous utilisons principalement des multiplicateurs RTC (PM16F) à 17 dynodes qui fournissent un gain de 10^6 à 10^7 pour une tension d'alimentation de 2000 V. Il s'agit là d'un gain optimum, à la livraison du multiplicateur. Il se dégrade en fait assez rapidement, par contamination des dyncdes (vapeur de sodium, dépôts d'huile de pompe secondaire et, surtout, vapeur d'eau lors des remises à l'air). Le multiplicateur doit donc être remplacé assez fréquemment. Pour éviter de perturber les atomes par un champ électrique parasite, la fenêtre d'entrée du multiplicateur, qui est la partie la plus proche de la cavité, est maintenue à la masse. Le signal électronique se trouve donc superposé à la haute tension d'alimentation du pont de polarisation. Il en est découplé par un réseau de capacités, suivi d'un limiteur de tension à diodes rapides dont le but est de protéger la chaîne d'amplification contre des transitoires rapides de forte amplitude (dus, par exemple, à un claquage entre la haute tension et la masse). Le signal est alors amplifié et légèrement intégré, avec un gain en tension de 10 à 100. L'intégration est rendue nécessaire par la durée du signal correspondant à un électron unique (\sim 10 ns), très brève devant la durée totale du signal d'ionisation (\sim 500 ns au moins). Elle permet d'obtenir un signal lentement variable au lieu d'une forêt de pics très étroits, beaucoup plus difficile à exploiter. Pour les expériences nécessitant un comptage d'électrons (voir § III), nous utilisons également un amplificateur discriminateur à seuil qui fournit, avec le signal d'un électron

unique, une impulsion carrée, d'amplitude et de durée fixées.

Pour déduire des signaux observés les populations absolues dans l'échantillon d'atomes de Rydberg, il est indispensable de calibrer précisément le gain de la chaîne de détection. Nous utilisons pour cela deux méthodes différentes qui ne s'appliquent bien sûr que quand le gain du multiplicateur est suffisant pour permettre un comptage d'électrons. La première consiste à déterminer, à tension d'alimentation donnée, l'aire moyenne des impulsions du bruit d'obscurité du multiplicateur. Ces impulsions correspondent en effet à la détection d'électrons isolés, provenant surtout dans notre expérience de la jauge à ionisation utilisée pour contrôler la pression dans l'enceinte à vide. Le principal inconvénient de cette méthode est que, à moins que la jauge à ionisation ne soit très près du détecteur, ces électrons ont une énergie moyenne très inférieure à celle des électrons provenant de l'ionisation. Or le gain du multiplicateur décroît assez rapidement quand l'énergie des électrons incidents passe en-dessous de 200 e.V. Le gain mesuré ici est donc en général un peu inférieur au gain réel. La différence est particulièrement dramatique dans les expériences à basse température où les électrons parasites doivent suivre un long trajet pour être détectés : elle atteint un facteur 10 ! Il est donc, dans certains cas, préférable de calibrer le gain sur un signal réel provenant d'atomes de Rydberg. Pour cela, on réduit l'intensité des lasers à colorant jusqu'à ne plus observer qu'un atome par trace environ. On calcule alors l'aire moyenne des impulsions électroniques. Cette méthode est plus fiable que la précédente, mais plus lourde à mettre en oeuvre, et d'exploitation plus longue.

Par ces deux méthodes, on calibre le gain du multiplicateur dans la gamme des tensions d'alimentation permettant le comptage d'électrons. Quand nous avons à travailler avec des signaux relativement importants (quelques milliers d'électrons détectés), il nous faut réduire cette tension, pour éviter les saturations de l'électronique, à des valeurs où le comptage n'est plus possible. Le gain est alors obtenu par comparaisons successives de signaux, correspondant à la même population détectée (l'excitation laser ne varie pratique: ent pas en quelques secondes), pour deux valeurs légèrement différentes de la tension d'alimentation. On peut ainsi relier tous les gains à ceux mesurés directement par comptage. Nous estimons à 20% environ l'incertitude absolue sur la détermination des gains. Cette incertitude est liée essentiellement à la forte dispersion des signaux correspondant à des électrons uniques, une caractéristique générale des multiplicateurs d'électrons.

Le signal d'ionisation résolu en temps est envoyé sur un digitaliseur de transitoires rapides (Tektronix R7912). Il n'est peut-être pas inutile de rappeler ici brièvement le principe de cet appareil. Il s'agit d'un oscilloscope très rapide (500 MHz, la bande passante étant limitée par les amplificateurs d'entrée) où l'écriture, au lieu de se produire sur un écran fluorescent, se fait sur une matrice semi-conductrice de 512 × 512 points. Cette matrice est relue, à un rythme beaucoup plus lent, par un autre faisceau électronique. On a donc en fait l'association dans un même tube d'un oscilloscope rapide et d'un système analogue à un tube vidicon. L'appareil fournit deux modes possibles de relecture du signal. Dans le premier, on obtient un signal vidéo standard (625 lignes) permettant une visualisation directe de la trace sur un moniteur. Dans le second, l'information est extraite sous forme digitale. On dispose en fait, pour chaque valeur de l'abscisse (c'est-à-dire du temps), des ordonnées de tous les points éclairés par le faisceau d'écriture (1 à 7 points, ce nombre étant lié à la focalisation et à l'intensité du faisceau).

La voie la plus naturelle pour interfacer le R7912 à un ordinateur semble être l'exploitation de la sortie digitale. Le fait qu'on n'obtienne pas directement la position de la trace, mais plutôt un ensemble de valeurs pour chaque abscisse introduit toutefois une complication sérieuse. Il faut en effet que l'interface (ou l'ordinateur) se livre à une opération de moyennage sur les valeurs fournies. B. LEGAUT a réalisé au Laboratoire un interface pour notre calculateur réalisant cette fonction. L'utilisation pratique de cet interface est très simple : l'ordinateur demande l'acquisition d'un signal. On attend alors le prochain déclenchement de la base de temps du R7912. Le signal digital est ensuite extrait, moyenné, et envoyé au calculateur. L'inconvénient principal de ce système est la durée du traitement, liée en grande partie à la lenteur de l'interface digital du R7912. Le rythme maximum d'acquisition est en effet de 2 ou 3 courbes par seconde. Un effet de vernier entre la récurrence du laser et le temps de traitement rend de plus le taux d'acquisition très sensible à ce dernier. Si cet interface est

Ŋ

d'utilisation extrêmement simple (c'est là ce qu'on appelle un périphérique "intelligent"), il ne convient pas pour l'acquisition de signaux quand la stabilité dans le temps des paramètres de l'expérience est critique (l'observation de l'émission spontanée accélérée, par exemple, doit se faire en un temps de l'ordre de la minute, l'accord de la cavité dérivant notablement sur des temps plus longs; voir § III.B.3 et appendice 2).

M. GROSS a donc mis au point un interface plus rapide, mais plus complexe à utiliser, permettant de digitaliser les signaux d'ionisation à un rythme maximum de l'ordre de 10 Hz. Nous utilisons pour ce faire le signal vidéo fourni par le R7912. En utilisation normale, la digitalisation en temps réel de ce signal vidéo pose un problème pratiquement insurmontable. Le balayage de l'écran se fait en effet parallèlement à l'axe des temps. Il peut donc y avoir plus d'une intersection entre une ligne donnée et la trace (généralement un signal en forme de "cloche"), ce qui rend très difficile la reconstruction du signal en fonction du temps. Pour contourner cette difficulté, nous avons tiré parti de la parfaite symétrie entre les voies horizontale et verticale du tube du R7912 : en échangeant les rôles de la base de temps et de l'amplificateur du signal, nous rendons l'axe des temps perpendiculaire aux lignes du balayage video. Il n'y a plus alors qu'une intersection possible entre une ligne de balayage et le signal. Le principe de l'interface consiste alors simplement à digitaliser la position de cette intersection. Pour cela, l'interface doit décoder les signaux de synchronisation vidéo et attendre le début de l'image suivant immédiatement le déclenchement du R7912 (les taux de répétition du laser et de la trame vidéo étant indépendants, cette image est la première sur laquelle la trace est complète). Chaque signal de synchronisation ligne déclenche alors un compteur. Le comptage est arrêté par la détection d'une impulsion sur le signal vidéo correspondant à l'intersection entre la trace et la ligne considéré . Pour pointer avec précision le centre de cette impulsion, assez longue quand la trace est très lumineuse, nous ralentissons le rythme de comptage par un facteur deux dès que le signal vidéo passe au-dessus d'un certain seuil, et nous arrêtons le compteur quand le signal repasse au-dessous du seuil. La sortie du compteur est alors précisément proportionnelle à la position du milieu de l'impulsion. Elle est ensuite envoyée au calculateur avant le début de la ligne suivante.

Nous avons dû ajouter un petit raffinement à cette technique. Le temps de persistance de "l'écran" du 7912 est en effet de l'ordre de l'intervalle de temps séparant deux impulsions laser (110 ms). On a donc en fait dans une même image deux traces superposées. L'une, très intense, correspond au signal le plus récent; l'autre, environ deux à dix fois plus faible, au signal précédent. Il se pose donc un problème si le compteur est arrêté par la première impulsion sur le signal vidéo, et si celle-ci appartient à la trace rémanente : on risque d'obtenir un mélange inexploitable des deux traces. Pour éviter cela, nous faisons en sorte que le seuil de détection du signal vidéo dans une ligne soit environ la moitié de la valeur crête de ce même signal dans la ligne précédente. Cet ajustement automatique du seuil de déclenchement permet, en quelque sorte, de suivre par continuité la trace la plus éclairée. Bien sûr, le succès de cette méthode suppose que, pour les premières lignes du balayage, la trace normale et la trace rémanente soient toujours confondues. Il suffit pour cela de faire en sorte que le signal d'ionisation soit toujours nul en début de trace ce qui est bien entendu souhaitable pour d'autres raisons.

Cet interface, extrêmement simple, ne possède aucune mémoire. Il ne présente le contenu du compteur au calculateur que pendant quelques microsecondes à la fin d'une ligne. Il est donc nécessaire que le calculateur puisse acquérir les données au rythme du balayage vidéo (64 µs par ligne). De plus, pour ne perdre aucune trace, même si le temps de traitement du signal par le programme d'acquisition de données est plus long que 100 ms, le traitement doit pouvoir être interrompu quand un nouveau jeu de données arrive.

L'interface interrompt donc le déroulement du programme de traitement quand commence l'exploitation d'une nouvelle image. Le calculateur entre alors dans un programme d'acquisition dont le seul but est de stocker les données fournies par l'interface. Un temps de l'ordre de 400 µs s'écoulant entre le début de la trame vidéo et le moment où la première valeur est disponible, le calculateur dispose de tout le temps nécessaire pour ce changement de contexte. Le temps maximum nécessaire est en effet de l'ordre de 300 µs -cas où l'interruption arrive au début de l'exécution d'une opération complexe, division flottante par exemple. Le calculateur acquiert alors les

données, au fur et à mesure qu'elles sont prêtes, c'est-à-dire toutes les 64 µs. Le signal vidéo consistant en deux groupes de 300 lignes environ, espacés de près d'une milliseconde (balayage entrelacé), le temps d'acquisition de l'image complète est de l'ordre de 40 ms. Pour gagner un peu de temps, sans perdre trop sur la résolution temporelle, nous n'utilisons que les 256 lignes centrales du premier groupe. L'ordinateur profite alors de la durée du second balayage pour passer le contrôle à un sous-programme dont le but est de modifier éventuellement les conditions expérimentales entre deux impulsions du laser (par exemple modification du délai d'application de la tension sur l'électrode de trempe). Ces modifications doivent bien entendu être synchrones avec la récurrence du laser. A la fin de l'exécution de ce sous-programme, le calculateur attend éventuellement la fin de l'exploitation de l'image, se prépare à être à nouveau interrompu, et repasse le contrôle au programme de traitement, dans l'attente d'un nouveau signal. Si le temps de traitement est très long, les données reçues ainsi doivent être stockées en mémoire. La taille de la mémoire centrale de notre ordinateur étant extrêmement limitée -on ne peut y stocker plus de 90 signaux- nous utilisons une mémoire annexe (1 million d'octets, c'est-à-dire une capacité de 2048 signaux), se comportant comme un périphérique rapide (temps d'accès de l'ordre de 1 µs par mot). Cet appareil extrêmement performant a été conçu au Laboratoire par A. CLOUQUEUR.

L'ensemble du dispositif décrit ici est assez complexe, surtout du point de vue de la structure des programmes, mais il permet de ne perdre aucun signal jusqu'à des taux de répétition supérieurs à 13 Hz, et ce quelle que soit la durée du traitement ultérieur.

Le calculateur utilisé dans ces expériences est un Heathkit, modèle H11-A. Il s'agit en fait, au boîtier près, d'un LSI 11/03 de Digital Equipement. C'est une machine dont la conception est assez ancienne (1975) et qui présente donc un certain nombre de défauts : mémoire centrale restreinte (64 koctets), calculs assez lents bien que le processeur opère sur des mots de 16 bits (une multiplication flottante requiert typiquement 200 μ s !). Un des principaux intérêts de cette machine est sa structure très simple, qui permet de réaliser des traitements efficaces d'interruptions, sans avoir à se préoccuper des interactions entre le programme et le système d'exploitation.



Figure 40 : Signaux d'ionisation des niveaux 23S $\frac{1}{1/2}$ et 22P $\frac{1}{1/2}$

A ce calculateur, nous avons adjoint quelques périphériques, dont plusieurs furent réalisés au Laboratoire : un lecteur de disquettes magnétiques (2 × 256 koctets), un ensemble de huit convertisseurs analogiques/digitaux et de huit convertisseurs digitaux/analogiques, un interface pour un oscilloscpe X-Y à mémoire permettant une représentation graphique des résultats, un interface pour table traçante, une imprimante, la mémoire rapide déjà mentionnée, et enfin, bien entendu, un terminal (souvent aussi d'ailleurs un programmeur). Nous avons bien sûr employé le Fortran pour tous les aspects des programmes nécessitant un calcul sur variables flottantes et l'assembleur quand la vitesse d'exécution est critique (acquisition des données en particulier). Malgré ses très médiocres qualités de rapidité, cet ordinateur nous a aussi rendu quelques services pour des calculs simples.

Nous allons maintenant décrire plus en détail la partie traitement des programmes d'acquisition de données et, en particulier, la manière de déduire, à partir des populations détectées, les populations des niveaux |e > et |g > à la fin de l'interaction avec le mode de la cavité (voir § II.D).

Le premier problème qui se pose est de déterminer les populations des niveaux | e > et | g > au moment de la détection. Les signaux d'ionisation par champ ne sont pas en effet toujours aussi bien résolus en temps qu'on pourrait l'espérer. La figure 40 présente par exemple les signaux moyens d'ionisation des niveaux $|e\rangle = 23S_{1/2}$ et $|g\rangle = 22P_{1/2}$. On voit qu'une fraction non négligeable des atomes dans le niveau |g > s'ionisent au moment du maximum du signal d'ionisation du niveau | e >, et réciproquement d'ailleurs. Pour déterminer les populations N_e^d et N_g^d de |e > et |g > dans un signal, nousavons besoin de deux quantités. L'utilisateur définit donc sur le signal deux portes temporelles P et P, représentées sur la figure 40. L'ordinateur calcule, pour chaque trace, le nombre de charges C et C détectées pendant les portes P et P respectivement. Il suffit pour cela d'intégrer le signal dans les portes et de tenir compte du gain de la chaîne de détection et des calibres du R7912. Si tous les atomes sont dans le niveau |e >, on a, d'après la forme des signaux, C = αC_e ($\alpha < 1$). En préparant, par effet maser (voir chap. IV) ou par impulsion π de micro-onde résonnante (voir chap. III.D) les atomes dans le niveau $|g\rangle$, on obtient C = βC_g ($\beta < 1$). Pour un signal quelconque, N_e^d et N_a^d sont déterminés par la résolution -évidente- du système :

$$\begin{cases} C_e = N_e^d (1 - \alpha) + \beta N_g^d \\ C_g = N_g^d (1 - \beta) + \alpha N_e^d \end{cases}$$

Les coefficients α et β dépendent, bien entendu, de la position des portes P_e et P_g par rapport au signal d'ionisation (c'est ce qui fait que la stabilité du déclenchement du R7912 est si critique). Ils sont donc déterminés expérimentalement au début de chaque acquisition de données. Pour cela, on moyenne 200 signaux correspondant à des atomes dans le niveau |e > et, alternativement pour une impulsion laser sur deux, 200 signaux pour des atomes dans le niveau |g >, préparés par une des méthodes citées plus haut. Les coefficients α et β sont alors déduits des rapports C_e/C_g pour ces deux types de signaux.

Ainsi que nous l'avons déjà mentionné dans le paragraphe II.D, les populations détectées ne sont pas égales aux populations existant dans la cavité. Les atomes évoluent en effet, principalement par émission spontanée, pendant le temps de transit entre la cavité et le condensateur. De plus, si la distance parcourue par les atomes est supérieure à la largeur de la fenêtre d'entrée du multiplicateur d'électrons, l'étalement de l'échantillon atomique dû à la dispersion des vitesses thermiques dans le jet fait que tous les atomes ne sont pas détectés (cet effet fait perdre un facteur deux environ pour un temps de transit cavité - condensateur de 30 µs). Les populations vraies (c'est-à-dire dans la cavité, à la fin du couplage cohérent avec le champ), N_e et N_g, sont donc reliées à N_e^d et N_g^d par : N_e = k_e N_e^d, N_g = k_g N_g^d (les facteurs k et k, supérieurs à un, sont a priori différents, la durée de vie radiative des niveaux P étant beaucoup plus longue que celle des niveaux S). Le rapport k_q/k_q est déterminé expérimentalement, en même temps que les coefficients α et β . Il suffit pour cela de remarquer que la population total reque dans le niveau | e > pendant l'acquisition des 400 courbes doit étre égale à la population totale dans le niveau |g > (les fluctuations à long terme de l'intensité laser ne peuvent jouer ici aucun rôle).

Il est à noter que la valeur de ce rapport est un excellent test du bon fonctionnement de l'expérience. k_e/k_g peut en effet être déduit directement des durées de vie spontanées, bien connues par ailleurs. La valeur mesurée s'écarte très fortement de la prédiction théorique en cas de problèmes
expérimentaux. Par exemple, si le vide est localement mauvais dans la cavité, les collisions avec le gaz résiduel diminuent fortement les durées de vie qui deviennent égales pour les niveaux S et P. Le rapport k_e/k_g tend alors vers 1. C'est cet aspect qui explique que nous préférions déterminer le rapport k_e/k_g pour chaque expérience, plutôt que de supposer sa valeur connue a priori.

Dans la plupart des cas, k_g est pratiquement égal à 1 et la mesure de k_e/k_g suffit à déterminer les populations N_e et N_g en fonction de C_e et C_g . Quand k_g n'est pas égal à un, par exemple dans le cas d'un niveau peu excité de courte durée de vie, ou dans le cas d'un long trajet entre cavité et condensateur, nous déterminons directement le rapport k_e . Pour cela, nous préparons, avec un laser dont l'intensité doit être aussi stable que possible, les atomes dans la cavité d'une part et directement sous le condensateur d'autre part. Le rapport des aires des signaux obtenus est évidemment égal à k_p qui est utilisé comme donnée dans le programme d'acquisition.

L'ensemble de cette procédure nous permet donc de déterminer les populations des niveaux $|e\rangle$ et $|g\rangle$ à la fin de l'interaction avec la cavité. Les incertitudes sur la détermination expérimentale des différents facteurs α , β , k_e et k_g provoquent une incertitude sur la population totale qui n'est certainement pas supérieure à 10%. Il faut bien entendu lui ajouter l'incertitude de 20% sur la calibration du gain de la chaîne de détection. Bien sûr, les déterminations relatives de population sont beaucoup plus précises.

Mentionnons pour terminer une petite difficulté d'ordre pratique. L'intégration des signaux, pour obtenir C_e et C_g , nécessite la connaissance de la position de la "ligne de base", c'est-à-dire de la trace quand le signal est nul. L'âge des amplificateurs de notre R7912 fait que la position de cette ligne n'est pas fixe : il lui arrive de varier, d'un coup à l'autre, d'une fraction notable de la hauteur de l'écran. Nous ne pouvons donc la considérer comme une donnée a priori du programme d'acquisition. Elle est déterminée en fait à <u>chaque</u> impulsion laser. Pour cela, on calcule simplement les valeurs moyennes de la position de la trace au tout début et à l'extrême fin du balayage, là où le signal d'ionisation est toujours nul. Cela permet de plus d'élimi-



Figure 41 : Appareillage micro-onde

ner certains signaux aberrants quand par exemple une forte saturation de l'électronique (claquage sur la haute tension du multiplicateur) crée une différence entre ces valeurs moyennes.

Quand l'expérience doit être réalisée avec une population totale fixe (voir par exemple les expériences sur l'effet maser dans le chapitre IV), le calculateur sélectionne les seules impulsions laser donnant une population totale comprise dans un intervalle étroit (± 5% ou ± 10% en général) autour d'une valeur moyenne définie par l'utilisateur. Pour nous permettre de corriger les dérives lentes des lasers par le réglage du délai d'ouverture de la cellule de Pockels (voir plus haut), le calculateur fournit en permanence une tension analogique proportionnelle au rapport entre la population désirée et la population moyenne effectivement observée sur les quelques dernières impulsions. Ce signal pourrait d'ailleurs parfaitement être utilisé pour un asservissement de l'intensité du laser.

Il serait tout à fait fastidieux de décrire ici plus en détail les programmes d'acquisition de données que nous avons utilisés (programme de moyennage simple, évolution temporelle des populations moyennes, statistique des taux de transfert à temps d'interaction fixé, etc...). Ces programmes sont en effet généralement assez longs (jusqu'à 1000 instructions Fortran).

2. Quelques aspects du dispositif micro-onde

L'ensemble du dispositif micro-onde est représenté sur la figure 41. Ainsi que nous l'avons déjà mentionné dans le paragraphe II.E, nous avons utilisé principalement deux sortes de sources : un générateur d'harmoniques alimenté par un klystron centimétrique (partie du haut de la figure 41) et un ensemble de carcinotrons stabilisés (partie du bas de la figure 41). Nous allons maintenant décrire le fonctionnement et les performances de ces deux types de sources.

L'intérêt d'utiliser la micro-onde produite à partir d'une source centimétrique dans un générateur harmonique est économiquement évident, l'investissement pour l'ensemble du dispositif étant dix fois inférieur à celui pour une source micro-onde plus conventionnelle.

Le générateur harmonique utilisé ici a été conçu et mis au point par P. GOY (^{76 -78}). La pièce essentielle de ce type de dispositif est sans doute l'élément non-linéaire. Il s'agit ici d'une diode Schottky encapsulée (Thomson CSF, D.C.M.). Une réalisation particulièrement soignée -en particulier pour la réduction des capacités parasites dues au boîtier- donne à cette diode des caractéristiques remarquables : résistance résiduelle R_S = 1.8 Ω , capacité de la jonction et du boîtier C₀ \sim 160 f.F (à polarisation nulle). La fréquence de coupure de cette diode, f_{C0} = $(2\pi R_S C_0)^{-1}$, est donc extrêmement élevée : 550 GHz. De plus, la caractéristique de cet élément est presque idéalement non-linéaire : dans la gamme des courants de 1 μ A à 1 mA, on a :

 $i = i_{S} \exp (V/\eta V_{O}),$

avec $V_0 = \frac{kT}{e} = 25 \text{ mV}$ à la température ambiante, $i_s = 0.15 \text{ fA}$. N est un facteur sans dimensions, égal à un pour une diode idéale. Il est ici de 1.12. Pour des intensités plus grandes que 1 mA, la caractéristique s'écarte de cette loi simple à cause de la résistance série des contacts R_c .

La diode, de dimensions extrêmement réduites (diamètre 630 µm, longueur 1.12 mm), est placée directement dans un guide d'ondes millimétriques. Une de ses extrémités est reliée à la masse par l'intermédiaire d'une pointe fine, traversant le guide d'onde et jouant le rôle d'antenne pour le rayonnement millimétrique. L'autre extrémité est fixée directement sur l'âme d'un connecteur coaxial haute fréquence (S.M.A.) permettant d'appliquer sur la diode la puissance centimétrique et la polarisation continue nécessaire à l'optimisation de la non-linéarité. Cette polarisation (courant de l'ordre de 10 mA) est superposée à l'onde centimétrique par un té de polarisation. Un piston d'accord est inséré dans le guide millimétrique près de la diode et permet d'optimiser le couplage de l'antenne avec la micro-onde. Cette configuration ne présentant (à part ce piston dont le réglage n'est pas très critique) aucun élément résonnant, tous les harmoniques dont la fréquence est supérieure à la fréquence de coupure du guide peuvent être obtenus.

Les performances de ce générateur harmonique sont excellentes. En lui appliquant une puissance maximale de 100 mW provenant d'un klystron X13 (bande de 8.2 à 12.4 GHz), on obtient une fraction de mW à 60 GHz, une

dizaine de microwatts à 100 GHz, et quelques dizaines de nanowatts à 300 GHz. Ces puissances sont, comme nous l'avons vu (chapitre I), largement suffisantes pour induire -et même saturer- les transitions $nS \rightarrow nP$ et $nS \rightarrow n-1P$, dans la gamme de 50 à 300 GHz. Plus précisément, on peut relier la puissance de sortie P_S sur l'harmonique de rang n à la puissance centimétrique injectée P_i par :

$$10 \log_{10} P_{s} = 10 \log_{10} P_{i} - (20 + 2.1 n) dB \pm 10 dB$$
(A1-1)

La dispersion de ± 10 dB sur les puissances de sortie correspond à la dispersion des caractéristiques de la diode d'un exemplaire à l'autre et à la dispersion des conditions mécaniques du montage. Les puissances optimales sont donc obtenues avec des éléments soigneusement triés. Le point important indiqué par la relation (A1-1) est que la décroissance moyenne en puissance d'un harmonique au suivant est plus lente qu'une chute de moitié.

Ces performances sont tout à fait comparables à celles des meilleurs générateurs harmoniques existant sur le marché. De plus, on utilise ici une diode encapsulée relativement robuste (sa destruction ne peut guère se produire que par un excès de micro-onde appliquée ou par décharge électrostatique, si la diode n'est pas court-circuitée par une faible résistance quand elle n'est pas utilisée), beaucoup moins fragile en tous cas que les diodes Schottky à contact à pointe utilisées dans la plupart des générateurs commerciaux (ces diodes sont en particulier très sensibles aux chocs).

Le klystron centimétrique est alimenté par une source de tension très bien stabilisée. Pour éviter une modulation de fréquence à 50 Hz, nous utilisons bien entendu un courant continu pour le chauffage du filament (batteries 6 V). Pour réduire encore la largeur de raie, nous utilisons de plus une stabilisation commerciale (Microwave Systems MOS-5 ou MOS-3106). Cet appareil asservit la fréquence d'émission du klystron sur celle d'un oscillateur à quartz très stable et accordable. La comparaison entre ces deux signaux de fréquences très différentes (10 GHz et 15 MHz) se fait par une technique de mélange harmonique : un élément non-linéaire (varactor) produit tous les harmoniques de l'oscillateur à quartz et les mélange au signal centimétrique. L'harmonique de fréquence la plus proche de celle du klystron produit

alors un signal de battement basse fréquence qui est amplifié et comparé, en phase, à une référence. Le signal d'erreur résultant est alors amplifié et ajouté à la tension réflecteur du klystron. La largeur de la raie d'émission du klystron est réduite, par ce dispositif, à quelques Hertz. La largeur en fréquence de l'harmonique n à la sortie du générateur est n fois plus grande, c'est-à-dire de l'ordre de quelques dizaines de Hertz au pire.

Pour mesurer de façon précise la fréquence du klystron, nous utilisons un compteur susceptible de fonctionner directement jusqu'à 20 GHz. L'oscillateur à quartz servant à la référence de ce compteur n'étant pas très stable à long terme (dérives thermiques), nous utilisons comme référence le signal provenant d'un étalon de fréquence. Celui-ci est en fait un récepteur grandes ondes, dans ce cas accordé sur France-Inter (163.84 kHz), émetteur dont la porteuse est asservie sur une horloge à césium (stabilité en fréquence de l'ordre de 10⁻¹³ à l'émission). Des problèmes liés à la propagation atmosphérique du signal et à la modulation d'amplitude -intéressante pour certains, mais bien gênante pour nous- limitent gravement la stabilité à court terme de la fréquence reçue. Le signal est donc utilisé en fait pour asservir un oscillateur à quartz intrinsèquement très stable, avec une constante de temps très longue (64000 s, c'est-à-dire près d'une journée). Cet appareil fournit en définitive un signal carré à 1 MHz, avec une stabilité et une justesse en fréquence meilleures que 10⁻¹⁰. Nous pouvons donc déterminer les fréquences millimétriques avec une précision de l'ordre de 10⁻¹⁰ (c'est-à-dire de l'ordre de la largeur de raie de l'émission).

Un des intérêts principaux de ce système est que, pour un très faible coût (le seul élément vraiment coûteux est le compteur de fréquences centimétriques), il permet de couvrir continuement la gamme de 16.4 à 300 GHz avec une excellente stabilité spectrale. En effet, les gammes sur lesquelles on peut accorder les harmoniques n et n+1 se recouvrent dès que $n \ge 2$ et on peut produire n'importe quelle fréquence supérieure à la fréquence de coupure du guide en choisissant la fréquence du klystron et le rang harmonique (ce sont, en pratique, les atomes qui se chargent de choisir le rang harmonique).

Bien sûr, les puissances obtenues ne sont pas très élevées. Si elles sont plus que suffisantes pour observer des transitions nS - nP, surtout dans une cavité résonnante, elles ne permettent pas, par exemple, d'observer des transitions à deux photons de très haute fréquence. Elles ne sont pas non plus calibrables absolument par un détecteur bolométrique.

Quand des puissances élevées sont nécessaires, nous utilisons directement un oscillateur millimétrique et en pratique un tube carcinotron (ou "Back-Wave Oscillator"). Le principe de l'émission de ce type de tube est très simple (152). Un faisceau d'électrons, très bien focalisé, d'une énergie de quelques keV, passe très près d'une structure métallique périodique, la "ligne", consistant en une série de créneaux, espacés d'un dixième de millimètre environ et profonds d'autant. Chaque électron du faisceau possède une image électrique dans cette structure qui oscille à une fréquence égale à la vitesse des électrons divisée par le pas de la ligne. Une onde millimétrique est rayonnée par ces charges oscillantes. Elle possède la propriété remarquable de se propager dans la direction opposée à celle du faisceau d'électrons, ce qui explique la dénomination de ce type de tubes. Bien sûr, ce que nous venons de donner ici n'est qu'une image extrêmement simplifiée du fonctionnement de cet oscillateur. L'intérêt principal de ce dispositif est qu'il n'existe, en théorie du moins, aucune structure résonnante dans le tube (au contraire d'un klystron par exemple). On peut donc faire varier la fréquence d'émission dans une large gamme en faisant simplement varier la vitesse des électrons, c'està-dire la tension d'accélération. En pratique, la gamme d'émission est limitée, dans les carcinotrons Thomson-CSF, à environ 20% au maximum de la fréquence centrale (c'est-à-dire à ± 10 GHz autour de 100 GHz). La variation de la fréquence avec la tension d'alimentation est très rapide : de 1 MHz/V à 10 MHz/V. La puissance émise par un carcinotron est assez importante : elle peut atteindre quelques watts à 80 GHz pour un de nos tubes et une dizaine de milliwatts à 600 GHz. La puissance d'émission d'un tube donné est cependant, peut-être à cause de phénomènes d'ondes stationnaires parasites, très rapidement variable avec la fréquence : elle peut varier de quelques mW à quelques watts en une centaine de MHz. Il peut même parfois exister, à l'intérieur de la gamme d'accord, des "trous" (plutôt des sauts de modes), c'est-à-dire des fréquences que le tube n'émet pas du tout.

Nous avons la grande chance de pouvoir disposer d'un ensemble d'une dizaine de tels tubes, ce qui représente un capital non négligeable, couvrant partiellement la gamme de 50 à 500 GHz.

L'alimentation haute tension d'un carcinotron est un élément très critique. C'est essentiellement elle, en effet, qui détermine la fréquence d'oscillation et la largeur spectrale de la source. Nous utilisons une alimentation Siemel, à tubes, réglable de 0 à 12 kV et régulée à 0.1 V près à court terme (quelques minutes). La présence d'une petite ondulation résiduelle à 50 Hz sur cette alimentation (\sim 50 mV), liée à un filtrage nécessairement imparfait, limite la finesse de la raie d'émission du carcinotron à 1 MHz environ. La largeur des raies atomiques qui nous intéressent étant aussi de l'ordre du MHz, il est nécessaire de stabiliser la fréquence d'émission. Pour cela, nous utilisons le dispositif générateur harmonique, déjà décrit, mais cette fois en tant que mélangeur harmonique. Le dispositif d'asservissement est représenté dans la partie inférieure de la figure 41. On mélange dans la diode Schottky une petite partie du signal millimétrique avec les harmoniques du klystron produits par la même diode. En choisissant convenablement la fréquence du klystron, on peut obtenir un signal de battement basse fréquence qui est découplé du signal centimétrique par un système de filtres. Ce signal de battement permet la mesure de la fréquence du carcinotron et peut servir à l'asservissement en phase ou en fréquence du carcinotron.

Pour l'asservissement en fréquence, le signal de battement convenablement amplifié est envoyé dans un convertisseur fréquence-tension (linéaire de 0 à 15 MHz : Laboratoire LPTF de l'Observatoire de Paris). A la sortie de ce convertisseur, on retranche une tension continue réglable permettant de balayer continuement la fréquence d'émission sur une quinzaine de MHz. Le signal d'erreur résultant est amplifié et appliqué entre la masse de l'alimentation haute tension et la masse du carcinotron, reliées par une résistance faible (7 Ω). On évite ainsi les difficultés liées à la sommation d'un petit signal d'erreur (quelques volts) avec la haute tension. La seule précaution à prendre est, bien sûr, d'isoler la masse du carcinotron par rapport à la masse du Laboratoire, ce qui impose en particulier d'utiliser une petite section isolante sur les guides d'onde. Pour l'asservissement en phase, on compare la phase du signal de battement avec celle du signal issu d'un synthétiseur de fréquence (O à 60 MHz) dans un multiplicateur à mélangeur en anneau ("double-balanced mixer"). Le signal obtenu, proportionnel à la différence de ces phases, est utilisé comme signal d'asservissement selon la technique décrite plus haut. La raie obtenue par asservissement de phase est plus fine que celle obtenue en asservissement de fréquence, du moins si la fréquence du carcinotron est plus petite que 150 GHz. Au-delà, en effet, le bruit de phase du klystron asservi, dont l'amplitude croît avec le rang harmonique, vient perturber le fonctionnement de cet asservissement. De plus, l'asservissement en phase décroche beaucoup plus facilement qu'un asservissement de fréquence.

Pour déterminer les largeurs de raie du carcinotron ainsi stabilisé, nous analysons spectralement le battement harmonique avec un autre klystron asservi (analyseur de spectre HP - 8552). Les largeurs de raie sont toujours inférieures à 1 kHz. La bonne qualité de nos mélangeurs harmoniques permet d'observer des battements harmoniques de rang très élevé , par exemple avec des carcinotrons jusqu'à 900 GHz (⁷⁸). La fréquence de l'émission peut être déterminée simplement d'après la fréquence du klystron centimétrique et d'après la fréquence du battement comptée par un fréquencemètre "ordinaire" (500 MHz).

L'ensemble de ces générateurs de micro-onde nous rend bien entendu de grands services quand il est nécessaire d'appliquer un champ cohérent sur les atomes de Rydberg. Ce n'est toutefois pas là sa seule utilité.

Il nous permet également de mesurer précisément la finesse des cavités. Pour cela, on mesure la transmission de la cavité en fonction de la fréquence. On couple donc, par l'intermédiaire d'un trou percé dans un des miroirs, un carcinotron au mode de la cavité. Ce carcinotron, loin d'être asservi, est modulé en fréquence, sur une dizaine de Mégahertz, à un rythme de l'ordre du kilohertz. Cette modulation est obtenue en envoyant, à la place du signal d'erreur de la boucle d'asservissement, un signal basse fréquence sur la masse du carcinotron. La micro-onde transmise par la cavité, couplée à l'extérieur par un trou percé dans l'autre miroir, est détectée par un mélangeur harmonique alimenté par un klystron de fréquence fixe. Le signal de bat-



Figure 42 : Mesure de la finesse d'une cavité par transmission d'une micro-onde modulée en fréquence

tement, dont la fréquence est modulée de la même manière que celle du carcinotron, est envoyé sur l'analyseur de spectre. On y obtient alors une représentation de la courbe de transmission de la cavité en fonction de la fréquence dont l'analyse permet de déterminer la finesse et,par là,le facteur de qualité de la cavité. La figure 42 présente un exemple d'une telle courbe. (les amplitudes sont ici exprimées en coordonnées logarithmiques). Cette méthode, très simple et précise, permet également de s'assurer, indépendamment d'un signal atomique, de l'accord de la cavité sur la transition étudiée. Elle n'est malheureusement applicable qu'aux cavités à miroirs percés, délicats à réaliser, optimisés seulement pour une bande de fréquence et présentant -du fait des trous de couplage- des pertes limitant la surtension.

Les sources micro-onde nous permettent également, en observant des transitions micro-ondes entre niveaux de Rydberg, de tester de manièré fine la propreté des conditions expérimentales. La fréquence de ces transitions et leur largeur sont en effet directement reliées à la valeur des champs électriques parasites susceptibles de perturber facilement le fonctionnement de l'expérience. La vérification de "l'Officialité" en fréquence des transitions permet un test de ces champs par les atomes eux-mêmes. Nous avons souvent constaté en effet des "empoisonnements" dramatiques de l'expérience se traduisant par l'impossibilité d'observer aucun effet maser et s'accompagnant de déplacements de raies de l'ordre de la dizaine de MHz. Ces déplacements disparaissent après une remise à l'air, même brève, de l'enceinte à vide. Nous les interprétons donc comme liés à un dépôt de sodium sur les enceintes en cuivre entourant la cavité. Ce dépôt crée un champ électrique par l'intermédiaire du potentiel de contact sodium-cuivre (quelques volts) et disparaît bien sûr immédiatement après une remise à l'air par oxydation.

...

APPENDICE 2

QUELQUES DETAILS SUR L'EXPERIENCE D'OBSERVATION DE L'ACCELERATION DE L'EMISSION SPONTANEE POUR UN ATOME UNIQUE DANS UNE CAVITE RESONNANTE

. 6 .

:



Figure 43 : Partie cryogénique de l'appareil pour l'observation de l'émission spontanée accélérée.

APPENDICE 2

QUELQUES DETAILS SUR L'EXPERIENCE D'OBSERVATION DE L'ACCELERATION DE L'EMISSION SPONTANEE POUR UN ATOME UNIQUE DANS UNE CAVITE RESONNANTE

Nous donnerons ici les quelques détails pratiques sur l'expérience d'accélération de l'émission spontanée qui n'ont pas trouvé place dans le paragraphe III.B.3.

La figure 43 représente la partie cryogénique du dispositif expérimental. On reconnaît les deux composantes essentielles du schéma expérimental type que nous avons introduit dans le chapitre II : la cavité microonde, qui est ici du type Fabry-Perot confocal, et le condensateur utilisé pour la détection par ionisation par champ.

L'ensemble de cette partie du dispositif est refroidi à des températures cryogéniques par contact avec un bain d'hélium liquide, représenté dans la partie supérieure de la figure 43. (Nous n'avons pas, bien entendu, représenté ici l'ensemble du cryostat, qui fut réalisé au Laboratoire.) Les expériences de cryogénie où la partie essentielle du dispositif n'est pas complètement immergée dans l'hélium ne sont pas sans poser quelques problèmes. Il est difficile, en particulier, d'assurer un contact thermique bien reproductible et de bonne qualité avec le bain d'hélium. Nous avons essayé plusieurs solutions (contact direct cuivre - cuivre, contact cuivre - indium cuivre et enfin cuivre - graisse silicone - cuivre). mais aucune ne s'est révélée parfaitement adaptée. En fait, les températures limites que nous avons atteintes sont de l'ordre de 8 K, avec un bain d'hélium à pression atmosphérique (4.2 K), et de 6 K en réduisant la pression sur le bain d'hélium à

10 torr environ (température du liquide 2 K). Nous n'avons d'ailleurs observé, à notre grande surprise, aucune amélioration du contact hélium - cuivre au passage de la transition superfluide. Ces températures furent mesurées en différents points de l'expérience au moyen de bolomètres en carbone (résistances Allen-Bradley convenablement amincies et collées sur les surfaces métalliques). L'un de ces bolomètres est d'ailleurs représenté sur la figure 43. Un étalonnage de ces bolomètres en trois points (température ambiante, azote liquide et hélium liquide à pression atmosphérique) permet de déduire la température de la mesure de leur résistance avec une précision absolue meilleure que 0.5 K. La seule précaution d'emploi à prendre est d'utiliser un ohm-mètre donnant un très faible courant (< 1 µA) ,la puissance dissipée dans le bolomètre risquant, dans le cas contraire, de fausser complètement la mesure. Nous pensons que les résultats cryogéniques relativement mauvais que nous avons obtenus sont dus principalement aux problèmes de contact thermique aggravés par la quantité de chaleur importante arrivant par les connexions électriques (estimée à 200 mW environ, les pertes totales du cryostat correspondant à 300 ou 400 mW; le multiplicateur d'électrons, qui dissipe 1 W, n'est bien entendu en contact thermique qu'avec l'écran à l'azote).

La cavité est, comme nous l'avons déjà mentionné, constituée de deux miroirs sphériques en niobium proches de la position confocale. Ces miroirs ont un diamètre utile de 20 mm et un rayon de courbure de 26 mm, la distance entre eux étant de l'ordre de L = 25 mm. Cette longueur peut être ajustée au moyen de la vis micrométrique représentée sur la figure 43, ce qui permet d'amener la cavité à résonance sur la fréquence atomique. Afin de minimiser les problèmes d'instabilités mécaniques de la longueur de la cavité, la vis micrométrique (pas 0.5 mm, diamètre 25 mm) est placée le plus près possible du miroir qu'elle supporte. Elle est donc également refroidie. Ceci ne va pas sans quelques difficultés : il est impossible d'utiliser un lubrifiant et, bien que la vis soit réalisée en laiton, elle possède parfois une certaine tendance au coinçage.

Les miroirs sont d'abord usinés dans un lingot de niobium très pur (nême dans l'état supraconducteur, la conductivité surfacique dépend assez fortement du libre parcours moyen des électrons non appariés c'est-à-dire de la concentration en impuretés et dislocations). Ils sont ensuite polis sur

une lentille sphérique ayant le rayon de courbure désiré au moyen de pâtes diamantées de grain de plus en plus fin. On obtient alors un bon état de surface apparent (imperfections inférieures à 1 µm) mais l'usinage et le polissage ont en fait créé des dislocations dans une épaisseur de quelques microns sous la surface. Les miroirs sont alors recuits à 1900°C pendant quatre heures dans un four sous ultra-vide. On obtient ainsi une recristallisation en masse du matériau. La taille typique des cristaux est, après le recuit, de l'ordre de 100 mm³. On procède alors à une dernière opération de polissage chimique pour parfaire l'état de surface : on plonge les miroirs dans une solution (96) de HF, HNO₃ et H, SO₄ (rapports de concentration 1:1:2), on les rince sous un courant d'eau désionisée et on les nettoie par ultrasons dans un bain de méthanol spectroscopiquement pur et dépoussiéré, où ils sont gardés jusqu'au moment du montage (les dernières opérations de recuit et de polissage ont été effectuées par V. NGUYEN TUONG et L. WARTSKI, de l'Institut d'Electronique Fondamentale à Orsay). Les miroirs de niobium ainsi traités sont assez fragiles : ils sont en particulier assez sensibles à l'oxydation par l'oxygène atmosphérique et doivent donc être conservés dans le bain de méthanol ou sous vide. Ils ne sont mis à l'air que pendant le montage dont la durée, avec un peu d'entraînement, peut être réduite à deux heures.

En prenant un ordre de grandeur raisonnable pour le libre parcours moyen des électrons non appariés (0.1 $\mu m)\,,$ la théorie B.C.S. de la supraconductivité permet de calculer la résistivité de surface des miroirs (96) donc le facteur de qualité de la cavité. On s'attend à Q \sim 7 10⁶ à 6 K et à 340 GHz (transition $23S_{1/2} \rightarrow 22P_{1/2}$). Cette valeur décroît assez rapidement avec le champ magnétique appliqué sur les miroirs. L'influence du champ terrestre n'étant pas négligeable a priori, nous avons réduit ses composantes au niveau des miroirs au moyen d'un jeu de trois paires de bobines en position de Helmholtz (non représentées sur la figure 43). La valeur du champ magnétique obtenu est alors de l'ordre de 100 mG et ne semble pas pouvoir avoir une influence notable sur la finesse de la cavité. La réduction du champ magnétique présente également l'avantage de ramener les deux composantes Zeeman de la transition atomique à l'intérieur de la largeur de la cavité. Si tel n'était pas le cas, on obtiendrait des effets d'accélération de l'émission spontanée radicalement différents pour les atomes initialement préparés dans les sous-niveaux magnétiques $m_T = +1/2$ et $m_T = -1/2$.

Nous avons souligné, dans le paragraphe III.B.3, l'importance de la thermalisation du mode de la cavité à basse température pour éviter d'observer des transferts induits par le rayonnement thermique dans ce mode. Il est important aussi de réduire la température des autres modes pour que le signal utile ne soit pas masqué par des transferts thermiques qui n'ont pas de comportement résonnant en fonction de la fréquence d'accord de la cavité. Pour empêcher le rayonnement thermique provenant de l'extérieur de pénétrer dans l'enceinte entourant la cavité, nous avons réduit au maximum le diamètre des ouvertures (4 mm pour le jet atomique, 10 mm pour les lasers, 15 mm pour la fenêtre du multiplicateur d'électrons) et nous les avons recouvertes d'une grille métallique fine (pas 500 μ , épaisseur des "barreaux" 100 μ) qui, si elle n'atténue pas sensiblement le jet ou les lasers, atténue de 90% une micro-onde incidente à 300 GHz. De plus, pour piéger les photons qui pourraient encore pénétrer dans l'enceinte, nous avons recouvert toutes les parties métalliques (sauf les miroirs) d'un absorbeur micro-onde. Nous avons utilisé à cette fin une suspension de graphite colloïdal dans l'eau ammoniacale (Aquadag) qui s'utilise comme une peinture tout à fait ordinaire. On crée ainsi une mince couche de graphite qui ne présente aucun dégazage sensible (elle agit même plutôt comme une cryo-pompe à 6 K) et qui est, de plus, conductrice. On évite ainsi le dépôt de charges électriques (de telles charges sont toujours produites dans une expérience de ce type, par exemple par le laser bleu) susceptibles de créer des champs électriques parasites. Pour une telle couche, la réflectivité dans le domaine micro-onde n'est que de l'ordre de 0.1. La température de la radiation dans l'enceinte, qui est la moyenne des températures des différentes sources, pondéréespar leur surface et leur pouvoir émissif, doit alors être très proche de la température de l'enceinte (7 K). Nous avons vérifié cette supposition en essayant de détecter les transferts thermiques sur un certain nombre de transitions montantes (nS \rightarrow nP), que ce soit les transferts dans le mode de la cavité (voir chapitre IV) ou les transferts pendant le temps de transit (30 µs) entre cavité et condensateur. Les valeurs très faibles observées sont compatibles avec une température de rayonnement plus petite que 10 K.

Une des principales difficultés de l'expérience est d'accorder la cavité sur la transition atomique. Avec les finesses que nous désirons

obtenir, il est préférable de ne pas coupler la cavité à l'extérieur (par des trous de couplage percés au centre des miroirs). On ne peut plus alors réaliser une expérience de transmission micro-onde pour déterminer la position d'accord. Il est exclu également de se servir du signal d'accélération de l'émission spontanée qui n'apparaît qu'après un moyennage assez long. Nous procédons donc de la façon suivante : nous irradions le jet atomique par un laser intense, préparant quelques centaines d'atomes dans la cavité dans le niveau initial $|e > (23S_{1/2})$. Nous cherchons alors à accorder la cavité de manière à observer un transfert de population total vers le niveau final de la transition $|g \rangle (22P_{1/2})$ dû à l'émission spontanée collective (effet maser) décrite dans le chapitre IV. Comme nous travaillons avec des signaux importants, ce transfert est très facilement détectable. Il se pose toutefois un problème important : outre les modes propres gaussiens de la cavité, il existe un grand nombre de modes parasites, avec une structure de champ plus ou moins compliquée, qui peuvent même faire intervenir des réflexions sur le tube supportant la cavité ! La réflectivité de tout métal étant excellente à 6 K, ces modes ont une finesse non négligeable et conduisent eux aussi à un effet maser mais ne permettraient pas, bien sûr, d'observer l'accélération de l'émission spontanée. Il nous faut donc déterminer quel est le "bon" mode parmi quelques dizaines. Pour cela, nous nous appuyons sur une mesure mécanique directe de la longueur de la cavité réalisée au cours du montage qui permet de dégrossir un peu le travail. Nous essayons ensuite de réduire autant que possible le nombre d'atomes pour que, sur les modes de faible finesse, on n'atteigne pas le seuil de superradiance. Enfin, nous pouvons faire passer le miroir du bas de la cavité à l'état normal ce qui affecte beaucoup les modes parasites. Pour cela, nous utilisons un élément chauffant (résistance au carbone de faible coefficient de température) collé sur le miroir. L'injection d'une puissance de quelques dizaines de milliwatts permet d'atteindre une température d'environ 12 K (température de transition supraconductrice 9.2 K), ce qui est encore une indication des mauvais contacts thermiques. L'ensemble de cette procédure est également répété à différentes fréquences de transitions pour essayer d'éliminer, par une détermination précise de la longueur de la cavité en fonction de la position de la vis d'accord, les derniers modes parasites. Après ce travail, il ne reste que quelques positions de "bon" accord possibles dont la meilleure sera finalement déterminée par l'obtention du signal à un atome. Tout ceci doit bien entendu être recommencé après chaque démontage de la cavité.

La procédure d'accord par effet maser présente un autre inconvénient : les masers observés étant en général très au-dessus du seuil d'émission (qui n'est que de 4 ou 5 atomes), ils tolèrent un désaccord assez important entre la fréquence atomique et celle de la cavité (²⁸). Il est impossible d'être sûr, quand on observe l'effet maser, que l'accord est parfait. L'accord n'étant bien réalisé que sur une plage de distance entre miroirs de l'ordre de 200 Å (correspondant à une rotation de 10⁻⁴ rd de la vis micrométrique !), seule une longue série d'essais infructueux peut conduire à l'observations de l'effet à un atome.

Après avoir accordé (ou tenté d'accorder) ainsi la cavité, nous réduisons l'intensité des lasers (par interposition de filtres) jusqu'à ce que le signal détecté corresponde à un atome en moyenne dans la cavité. Le niveau $23S_{1/2}$ n'ayant qu'une durée de vie spontanée totale de 14 µs et la durée de transit entre la cavité et la détection étant de l'ordre de 30 µs, nous ne détectons alors qu'un atome tous les quelques coups de laser (il existe une autre cause de pertes liée à la dispersion des vitesses dans le jet : tous les atomes survivants ne sont pas en face du multiplicateur d'électrons à l'instant de la détection. On perd ainsi environ un atome sur deux).

Nous procédons alors au moyennage des signaux d'ionisation, pour une cavité résonnante (200 coups) et une cavité non résonnante (200 coups). La condition de résonance n'est évidemment pas modifiée de façon mécanique mais en utilisant, après une impulsion laser sur deux, l'électrode de trempe (voir § II.D.). L'effet attendu se manifeste alors par une différence dans la forme des signaux d'ionisation.

Afin de déterminer de façon précise la population atomique moyenne, nous nous appuyons sur la calibration du gain du multiplicateur d'électrons. Nous enregistrons aussi, pendant la prise de données, le signal vidéo, fourni par le digitaliseur de transitoires, sur un magnétoscope. En cas de résultat positif, nous relisons cette bande et comptons directement les impulsions détectées. Nous pouvons ainsi contrôler la calibration du gain et vérifier que deux électrons ne sont détectés pour la même impulsion que dans une très faible minorité des traces.

Nous répétons successivement plusieurs fois le moyennage, pour nous assurer de la reproductibilité et de la signification statistique du signal. La longueur de la cavité dérivant lentement (en particulier à cause de la variation du poids du bain d'hélium dans le cryostat), il est rarement possible d'obtenir successivement plus de deux ou trois signaux positifs. Il faut alors réaliser à nouveau l'accord de la cavité par effet maser.

Nous procédons enfin, sur les signaux obtenus, à la détermination du taux de transfert dû à l'émission spontanée accélérée. Nous profitons pour cela du fait que l'émission maser, correspondant à un transfert total de population, prépare le niveau final $|g\rangle$ de façon pure. Nous disposons donc des signatures temporelles $\pi_e(t)$ et $\pi_g(t)$ des signaux d'ionisation moyens des niveaux $|e\rangle$ et $|g\rangle$. Nous analysons alors le signal obtenu avec un atome environ dans la cavité résonnante en termes de superposition linéaire de ces deux formes : $\pi(t) = (1 - \alpha_{eg}) \pi_e(t) + \alpha_{eg} \pi_g(t)$. L'ajustement de $\pi(t)$ avec le signal permet ainsi de déterminer le taux de transfert lié à la cavité : α_{eg}

La principale difficulté expérimentale est liée à la mauvaise stabilité de la cavité et à la procédure de "pêche à la ligne" de la résonance dans la gamme assez large d'accord de l'effet maser. Il nous a fallu quelques dizaines d'heures pour obtenir quelques signaux significatifs !

Quelques améliorations techniques s'imposent donc sur ce montage. Il nous faudra d'abord résoudre les problèmes de cryogénie. Cela ne devrait pas poser trop de problèmes : il nous faut améliorer les contacts thermiques, la conductivité des pièces, l'échange thermique avec l'hélium en redessinant le fond du cryostat. Il nous faut enfin et surtout diminuer les pertes en soignant la thermalisation et en minimisant la conductivité thermique des amenées de signal. Avec un optimisme raisonnable, on pourrait penser obtenir ainsi une température limite de l'ordre de 2.5K au niveau des miroirs. A cette température, le facteur de qualité de la cavité devrait être environ 10 fois meilleur qu'à 6 K, c'est-à-dire de l'ordre de $10^7 - 10^8$. Le problème de la stabilité et même de l'obtention, de l'accord de la cavité se posera alors de façon critique (le déplacement relatif des miroirs pour sortir de l'accord sera de 10 Å, correspondant à une rotation de 10^{-5} radians au niveau de la vis micrométrique). Il nous faut donc trouver un moyen de déplacer les miroirs

de façon très précise (il est malheureusement bien difficile d'employer des cales piézo-électriques quand on veut éviter les champs électriques parasites). Mais il nous faudra surtout un signal d'erreur pour asservir la longueur de la cavité. Le plus simple pourrait être de réaliser, sur le même support, une cavité optique de bonne finesse et d'asservir celle-ci par transmission d'un laser monomode (dicde laser). Pour atteindre et surtout conserver de telles finesses, des précautions sur la propreté du vide résiduel s'imposent. Nous avons en effet cru constater un effet systématique de dégradation des miroirs. avec une constante de temps d'une quinzaine de jours. Cela peut être dû soit à un dépôt de sodium, soit à un dépôt d'huile de pompe secondaire. L'utilisation de pompes plus propres sera sans doute à envisager. Il sera peut-être possible alors d'observer l'émission spontanée oscillante (à condition toutefois que la raie atomique ne soit pas perturbée par un effet Stark résiduel dû, entre autres, aux potentiels de contact entre métaux différents -qu'on peutéliminer facilement- ou même entre orientations cristallines différentes, importants surtout au niveau des miroirs, où les cristaux sont nécessairement de grande taille dans les conditions actuelles).

APPENDICE 3

•

EMISSION SPONTANEE D'UN ATOME DE RYDBERG DANS UNE CAVITE AMORTIE A TEMPERATURE NON NULLE

1÷1

APPENDICE 3

EMISSION SPONTANEE D'UN ATOME DE RYDBERG DANS UNE CAVITE AMORTIE A TEMPERATURE NON NULLE

Nous présentons dans cet appendice le calcul complet de l'évolution d'un atome de Rydberg unique, initialement préparé dans le niveau supérieur |e > de la transition résonnante avec une cavité micro-onde de surtension finie, initialement en équilibre thermique à la température T. Nous supposerons la cavité exactement résonnante à la fréquence atomique.

A la différence de l'émission spontanée dans une cavité à température nulle, l'évolution du système n'est pas restreinte a priori aux seuls états $|\pm 0\rangle$ et $|g 0\rangle$. Il nous faudra tenir compte de toutes les multiplicités des états de l'atome habillé.

L'évolution du système est décrite, dans le point de vue de Schrödinger, par l'équation pilote (III.28) développée sur les états habillés. La principale complication provient, dans cette équation, du couplage entre populations et cohérences.

Si nous nous restreignons au cas où la condition $\frac{\omega}{Q} < 4\Omega$ d'observation de l'émission spontanée oscillante est bien remplie, nous pouvons toutefois, à l'instar du raisonnement effectué dans le paragraphe III.B.2, négliger ce couplage entre populations et cohérences, c'est-à-dire appliquer

....

une approximation séculaire à l'équation pilote. On obtient alors deux systèmes d'équations indépendants décrivant respectivement l'évolution des populations et des cohérences.

Les équations d'évolution des populations s'obtiennent très aisément; en notant

$$\langle \overline{\epsilon n} | \rho | \overline{\epsilon n} \rangle = \pi_{\epsilon n}$$
 et $\langle g 0 | \rho | g 0 \rangle = \pi_{g0}$ (A3-1)
($\epsilon = \pm 1$),

on obtient

$$\frac{d}{dt} \pi_{\varepsilon n} = -\Gamma_{n} \rightarrow n-1 \pi_{\varepsilon n} - \Gamma'_{n} \rightarrow n-1 \pi_{\varepsilon n}$$

$$+ \Gamma_{n+1} \rightarrow n \pi_{\varepsilon,n+1} + \Gamma'_{n+1} \rightarrow n \pi_{-\varepsilon,n+1}$$

$$- \Gamma_{n+1} \rightarrow n \frac{\overline{n}}{\overline{n+1}} \pi_{\varepsilon n} - \Gamma'_{n+1} \rightarrow n \frac{\overline{n}}{\overline{n+1}} \pi_{\varepsilon n}$$

$$+ \Gamma_{n} \rightarrow n-1 \frac{\overline{n}}{\overline{n+1}} \pi_{\varepsilon,n-1} + \Gamma'_{n} \rightarrow n-1 \frac{\overline{n}}{1+\overline{n}} \pi_{-\varepsilon,n-1}$$
(A3-2)

Cette forme générale n'est bien entendu pas valable pour la dernière multiplicité et le niveau fondamental de l'échelle des niveaux habillés. On a alors en effet :

$$\frac{d}{dt} \pi_{\varepsilon 0} = -\Gamma_{0} + g_{0} \pi_{\varepsilon 0}$$

$$+ \Gamma_{1} \rightarrow 0 \pi_{\varepsilon 1} + \Gamma'_{1} \rightarrow 0 \pi_{-\varepsilon, 1}$$

$$-\Gamma_{1} \rightarrow 0 \frac{\overline{n}}{\overline{n+1}} \pi_{\varepsilon 0} - \Gamma'_{1} \rightarrow 0 \frac{\overline{n}}{\overline{n+1}} \pi_{\varepsilon 0}$$

$$+\Gamma_{0} \rightarrow g_{0} \frac{\overline{n}}{\overline{n+1}} \pi_{g 0}$$
(A3.3)

. et

$$\frac{d}{dt} \pi_{g0} = \Gamma_{0} \rightarrow g0 \pi_{+0} + \Gamma_{0} \rightarrow g0 \pi_{-0}$$
$$- 2\Gamma_{0} \rightarrow g0 \frac{\overline{n}}{\overline{n+1}} \pi_{g0} \qquad (A3-4)$$

Les coefficients apparaissant dans ces différentes équations sont définis par :

$$\Gamma_{n \rightarrow n-1} = \frac{\omega}{4Q} \left[\sqrt{n+1} + \sqrt{n} \right]^{2}$$

$$(A3-5)$$

$$\Gamma_{n \rightarrow n-1} = \frac{\omega}{4Q} \left[\sqrt{n+1} - \sqrt{n} \right]^{2}$$

$$(A3-6)$$

pour $n \neq 0$, et par :

$$\Gamma_{0 \to g0} = -\frac{\omega}{2Q}$$
 (A3-7)

L'interprétation physique de l'équation (A3-2) est particulièrement claire. Les deux premières lignes représentent l'effet de processus où le système "atome + champ" perd de l'énergie qui est récupérée par le réservoir. La première ligne décrit la perte de population de la multiplicité n vers la multiplicité n-1, alors que la seconde décrit la repopulation de la multiplicité n par cascade depuis la multiplicité n+1. Ces transferts incluent l'émission spontanée et les transferts induits par le rayonnement thermique (rappelons que Q est une quantité dépendant de la température).

Les deux dernières lignes décrivent au contraire des processus où le système "atome + champ" absorbe de l'énergie thermique fournie par le réservoir.

Si elle se prête bien à une résolution numérique, l'équation (A3-2) n'a pas de solution analytique simple. La principale difficulté provient en effet des couplages entre niveaux de & différents, décrits par les termes en Γ' . On peut toutefois remarquer que ces couplages sont très petits devant ceux des niveaux de même ε . En effet, si $\Gamma_{n \to n-1}$ est de l'ordre de n $\frac{\omega}{Q}$, $\Gamma'_{n \to n-1}$ n'est que de l'ordre de $\frac{\omega}{Q} \frac{1}{n}$. On obtient donc une relativement bonne approximation du système (A3-2) en écrivant :

$$\Gamma_{n \rightarrow n-1} = \frac{\omega}{Q} \left[n + \frac{1}{2} \right]$$
(A3-8)
$$\Gamma_{n \rightarrow n-1} = 0$$
(A3-9)

(il est à remarquer que l'expression (A3-8) est une excellente approximation de l'expression (A3-5), même pour des très petites valeurs de n; elles coincident en fait exactement pour n = 0).

On obtient alors, en utilisant ces approximations dans (A3-2), un nouveau système d'équations décrivant l'évolution de deux ensembles de variables, π_{+n} et π_{-n} , qui ne sont couplées que par l'interaction de $\pi_{\pm 0}$ avec la population du niveau fondamental commun π_{g0} . Les équations d'évolution de π_{+n} et π_{-n} sont évidemment identiques. De plus, le système étant préparé initialement dans un mélange statistique d'états de la forme $|e,n \rangle$, superpositions avec des poids égaux des niveaux $|+n\rangle$ et $|-n\rangle$ (à résonance), les conditions initiales sont les mêmes pour π_{+n} et π_{-n} . On a donc, tout au long de l'évolution :

 $\pi_{+n}(t) = \pi_{-n}(t)$ (A3-10)

Nous pouvons donc oublier l'indice ε et écrire :

$$\frac{d}{dt} \pi_{n} = -\frac{\omega}{Q} (n + \frac{1}{2}) \pi_{n} + \frac{\omega}{Q} (n + \frac{3}{2}) \pi_{n+1}$$

$$-\frac{\omega}{Q} \frac{\overline{n}}{\overline{n+1}} (n + \frac{3}{2}) \pi_{n} + \frac{\omega}{Q} \frac{\overline{n}}{\overline{n+1}} (n + \frac{1}{2}) \pi_{n-1}$$
(A3-11)

$$\frac{d}{dt} \pi_0 = -\frac{\omega}{2Q} \pi_0 + \frac{3}{2} \frac{\omega}{Q} \pi_1 + \frac{\omega}{2Q} \frac{n}{n+1} \pi_{g0}$$
(A3-12)

et

$$\frac{d}{dt} \pi_{g0} = -\frac{\omega}{Q} \frac{\overline{n}}{\overline{n+1}} \pi_{g0} + \frac{\omega}{Q} \pi_{0}$$
(A3-13)

Les conditions initiales pour ce système sont données par la matrice densité à t = 0 :

$$\rho_{A+F}(0) = |e\rangle \langle e| \otimes \rho_{F}^{equ}$$
(A3-14)

où $\rho_{\rm F}^{~~{\rm equ}}$ est la matrice densité du champ en équilibre thermique à la température T. On a donc :

$$< n \left| \rho_{\mathbf{F}}^{\text{equ}} \right| n > = (1 - \beta) \beta^{n}$$
 (A3-15)

(distribution de Bose-Einstein).

On trouve donc, après quelques calculs élémentaires :

$$\pi_{n}(0) = \frac{1}{2} (1 - \beta) \beta^{n}$$
(A3-16)
$$\pi_{g0}(0) = 0$$

L'état initial et l'état final (t = 0 et t = ∞) du système correspondent tous deux à un état d'équilibre thermique pour le champ. On a dans ce cas :

 $\pi_n = \beta^n \pi_0 \tag{A3-17}$

Nous supposerons, pour résoudre les équations (A3-11), (A3-12) et (A3-13), que cette propriété reste <u>toujours</u> vraie. En d'autres termes, nous supposerons que l'évolution de l'atome ne modifie pas de façon sensible l'état d'équilibre thermique du champ. Les conditions de validité d'une telle approximation sont assez difficiles à préciser. On peut penser a priori qu'elle est valable soit si le temps d'amortissement de la cavité est relativement court -c'est-à-dire si le réservoir peut réagir rapidement à une modification du champ-, soit si le nombre moyen de photons thermiques à l'équilibre est notablement supérieur à 1. En fait, la seule confirmation probante de la validité de cette approximation est le bon accord entre la solution analytique que nous allons obtenir et le résultat d'une intégration numérique directe de l'équation pilote (A3-2).

La conservation de la trace de la matrice densité implique :

$$\pi_{g0} = 1 - 2(\pi_0 + \pi_1 + \dots + \pi_n + \dots)$$
 (A3-18)

ce qui, combiné avec l'approximation (A3-17), donne :

$$\pi_{g0} = 1 - \frac{2\pi_0}{1 - \beta}$$
(A3-19)

avec

$$\beta = e^{-\frac{1}{M}\omega/k_{B}T} = \frac{\overline{n}}{\overline{n+1}}$$
(A3-20)

En remplaçant π_{g0} par cette valeur dans l'équation (A3-13), nous obtenons une équation ne portant que sur la population de la première multiplicité :

$$\frac{2}{1-\beta} \frac{d\pi_0}{dt} = -\frac{\omega}{Q} \beta \left[1 - \frac{2\pi_0}{1-\beta} \right] + \frac{\omega}{Q} \pi_0$$
(A3-21)

Cette équation s'intègre immédiatement, en tenant compte de la condition initiale (A3-16) pour donner :

$$\pi_{0}(t) = \frac{(1-\beta)^{2}}{2(1+\beta)} e^{-\frac{\omega}{2Q}(1+\beta)t} + \frac{\beta(1-\beta)}{1+\beta}$$
(A3-22)

c'est-à-dire :

$$\pi_{g0}(t) = \frac{1-\beta}{1+\beta} \left[1 - e^{-\frac{\omega}{2Q} (1+\beta)t} \right]$$
(A3-23)

Les populations $\pi_n(t)$ se déduisent de $\pi_0(t)$ par la relation (A3-13).

Il nous faut maintenant étudier l'évolution des cohérences $\rho_{+n, -n}$ à l'intérieur des multiplicités de l'atome habillé. Si l'approximation séculaire est valable, ces quantités ne sont pas couplées aux populations π_n . En revanche, les cohérences entre multiplicités adjacentes sont a priori couplées entre elles. Ce couplage est dû à des termes de relaxation dont l'amplitude caractéristique pour la n^{ième} multiplicité est n ω /Q. En revanche, la différence entre les fréquences d'évolution de deux cohérences adjacentes est : $2\Omega (\sqrt{n+1} - \sqrt{n}) \sim 2\Omega/\sqrt{n}$.

Si on a donc :

$$\frac{2\Omega}{\sqrt{n}} >> n\omega/Q, \qquad (A3-24)$$

on peut faire une nouvelle approximation séculaire en négligeant le couplage entre cohérences adjacentes. Nous verrons plus loin la signification précise de la condition (A3-24). On obtient donc finalement :

$$\frac{d}{dt} \rho_{+n}, -n = -2i\Omega \sqrt{n+1} \rho_{+n}, -n$$

$$-\frac{\omega}{2Q} (n + \frac{1}{2}) \rho_{+n}, -n - \frac{\omega}{2Q} \beta(n + \frac{3}{2}) \rho_{+n}, -n \qquad (A3-25)$$

La première ligne décrit la précession libre de la cohérence. La seconde en revanche décrit la destruction de celle-ci sous l'influence des transferts d'origine spontanée ou thermique, à partir de -ou vers- la multiplicité considérée.

Avec la condition initiale :

. . .

$$\rho_{+n} = \frac{1}{2} (1 - \beta) \beta^n$$
 (A3-26)

la solution de l'équation (A3-25) s'écrit :

$$\rho_{+n,-n}(t) = \rho_{+n,-n}(0) e^{-2i\Omega \sqrt{n+1} t} e^{-\Gamma(n)t}$$
(A3-27)

où le coefficient d'amortissement $\Gamma\left(n\right)$ est défini par :

$$\Gamma(n) = \frac{\omega}{Q} \left[n + \frac{1}{2} + \beta (n + \frac{3}{2}) \right]$$
 (A3-28)

Nous pouvons maintenant calculer $P_e(t)$, probabilité pour que l'atome se trouve à l'instant t dans le niveau |e>:

$$P_{e}(t) = \sum_{n} \langle e | \rho | e | n \rangle = \sum_{n \in \mathcal{E}'} \langle e | \overline{\epsilon | n \rangle} \rho_{\overline{\epsilon | n}, \overline{\epsilon' | n \rangle}} \langle \overline{\epsilon' | n | e | n \rangle}$$
(A3-29)

qui s'écrit, en tenant compte de l'expression des états habillés à résonance :

$$P_{e}(t) = \frac{1}{2} \sum_{n} \left[\pi_{+n} + \pi_{-n} \right] - \frac{1}{2} \sum_{n} \left[\rho_{+n}, -n + \rho_{-n}, +n \right]$$
$$= \frac{1}{2} \left[1 - \pi_{g0}(t) - 2 \sum_{n} \mathcal{R}_{e} \rho_{+n}, -n(t) \right]$$

Nous obtenons donc enfin, à partir des solutions (A3-22) et (A3-27), l'expression explicite de $P_e(t)$:

$$P_{e}(t) = \frac{\overline{n}}{1+2\overline{n}} + \frac{1}{2} \frac{1}{1+2\overline{n}} e^{-\frac{\omega}{2Q}} (\frac{1+2\overline{n}}{1+\overline{n}})t$$

ł.

$$+\frac{1}{2}\sum_{n}\frac{\overline{n}^{n}}{(1+\overline{n})^{n+1}}\cos\left(2\Omega\sqrt{n+1}t\right)\exp\left\{-\frac{\omega}{Q}\left[(n+\frac{1}{2})+\frac{\overline{n}}{1+\overline{n}}(n+\frac{3}{2})\right]t\right\}$$

(A3-30)

Cette expression n'est certainement pas exacte. Son obtention repose en effet sur les approximations séculaires (III-33) et (A3-24) et sur l'approximation de quasi-équilibre thermique (A3-27) ainsi que sur les expressions simplifiées des coefficients de l'équation pilote (A3-8)/(A3-9). Cependant, l'excellent accord entre les prédictions de cette équation et les résultats de résolutions numériques exactes de l'équation pilote (A3-2) nous laissent penser que ces approximations sont bien valides, au moi s pour $\Omega \gg \omega/Q$ et $\overline{n} \sim 1$.

La dépendance temporelle de $P_e(t)$ pour différentes valeurs de n est représentée sur la figure 7 et discutée en détail dans le paragraphe III.C.

Nous nous contenterons, pour conclure cet appendice, de préciser la signification de la condition (A3-24) de découplage des cohérences adjacentes.

Cette condition peut s'écrire $\frac{\Omega Q}{\omega} >> n^{3/2}$ soit encore, puisque les seuls niveaux peuplés correspondent à n $\sqrt[6]{n}$:

$$\overline{n} \ll \left(\frac{\Omega Q}{\omega}\right)^{2/3}$$
 (A3-31)

Quand l'émission spontanée oscillante doit être observée, on a $\frac{\Omega Q}{\omega} >> 1. \text{ Cette condition exprime donc simplement que la température ne doit$ $pas être trop élevée (<math>\overline{n} \sim 1$). En d'autres termes, l'expression (A3-30) est une bonne approximation de P_e(t) si cette fonction présente un caractère oscillant (on voit bien sur la figure 7 que les oscillations disparaissent dès que $\overline{n} > 1$).

On peut vérifier aussi très aisément que, dans le cas d'une cavité sans amortissement,l'expression (A3 - 30) se réduit à :

$$P_{e}(t) = \frac{1}{2} \left[1 + \sum_{n} \frac{\overline{n}^{n}}{(1+n)^{n+1}} \cos 2\Omega \sqrt{n+1} t \right]$$
(A3-32)

que nous avions obtenue par d'autres arguments dans le paragraphe III.C. Dans ce cas, en effet, toutes les simplifications effectuées ici ne sont pas des approximations ($\Gamma_n \rightarrow n-1$, $\Gamma'_n n-1 = 0$, découplage des cohérences).

APPENDICE 4

UTILISATION POSSIBLE DES ETATS DE RYDBERG EN CAVITE <u>COMME DETECTEURS MILLIMETRIQUES</u> (148)(149)(150)

La plupart des expériences que nous avons exposées dans ce mémoire montrent bien l'extrême sensibilité des atomes de Rydberg au rayonnement millimétrique. Nous avons vu en particulier, dans le paragraphe IV.D, qu'un champ thermique à une température aussi faible que 85K induit, entre deux niveaux de Rydberg, des transferts très facilement mesurables (voir figure 29). Tout champ provenant d'une source extérieure couplée à la cavité doit, si son amplitude est au moins de l'ordre de celle du champ thermique dans le mode, modifier de manière sensible l'évolution d'un système de N atomes de Rydberg que ce soit du point de vue de l'émission de rayonnement ("superradiance déclenchée") ou de celui de l'absorption.

Si la source à détecter est incohérente, le champ produit dans la cavité possède en général essentiellement les mêmes propriétés statistiques que le champ thermique. Le nombre de photons injectés par la source dans le mode obéit à une statistique de Bose-Einstein avec une valeur moyenne $\overline{n_s}$. Le comportement du système atomique est donc décrit par la théorie exposée en détail au chapitre IV, avec un nombre moyen initial de photons dans le mode $\overline{n} + \overline{n_s}$. La source sera donc détectable dès que $\overline{n_s}$ est de l'ordre de \overline{n} . En d'autres termes, la température de bruit du détecteur ainsi constitué est égale à celle du mode, c'est-à-dire à celle des miroirs de la cavité. Nous avons vu qu'il était facile de la réduire à une valeur de quelques Kelvins (voir en particulier l'appendice 2). Le phénomène d'absorption collective permettrait de réaliser ainsi un thermomètre absolu pour la "température d'antenne".

Le problème de l'analyse des performances d'un détecteur à états de Rydberg pour un champ cohérent est un peu plus complexe et nous allons l'aborder plus longuement.

1. <u>Détectivité</u>, pour un champ cohérent, d'un échantillon d'états de Rydberg dans une expérience d'absorption

Si le nombre N d'atomes est assez grand et si le champ à détecter est faible -ce qui est évidemment le cas qui nous intéresse ici-, l'approximation linéaire, consistant à négliger la variation de l'inversion de population dans les équations d'évolution, est parfaitement légitime.

Les équations d'évolution étant alors linéaires, les effets sur le vecteur de Bloch de l'absorption du rayonnement thermique et du champ cohérent provenant de la source s'ajoutent simplement. Le mouvement du vecteur de Bloch est donc décrit par la superposition d'un mouvement aléatoire de type brownien et d'une évolution déterministe.

Le mouvement dû au champ cohérent est décrit par l'équation de Bloch-Maxwell linéarisée qui s'écrit, dans le régime surcritique :

$$\frac{d\theta'}{dt} - \frac{1}{2T_{\rm R}} \sin \theta' = \frac{d \mathcal{E}}{\not h}$$
(A4-1)

avec $\theta' = \pi - \theta$ (voir § IV.D.1), la condition initiale étant donc $\theta' = 0$.

Nous avons ici représenté le champ cohérent par un champ classique d'amplitude \mathcal{E} ce qui n'est valable a priori que si le nombre moyen n de photons "cohérents" dans le mode de la cavité est significativement plus grand que 1.

$$\mathcal{E}$$
 est relié à n_o par :
 $n_o = \varepsilon_o \frac{\mathcal{E}^2}{\chi_{\omega}}$ (A4-2)

On peut aussi le relier au nombre de photons incidents sur la

cavité par unité de temps, n est en effet égal au produit de n par le temps de confinement de l'énergie électromagnétique dans la cavité, Q/ω . (Cette relation n'est exacte que si la finesse de la cavité est essentiellement limitée par le couplage à la source).

On a donc :

$$n_{inc} = \varepsilon_{o} \frac{\xi^{2}}{kQ}$$
(A4-3)

L'équation (A4-1) suppose explicitement que les atomes interagissent avec un couplage constant au champ pendant le temps Δt et qu'on néglige la dispersion maxwellienne des vitesses thermiques. Son intégration est immédiate et donne l'angle du vecteur de Bloch à la fin de l'interaction avec le champ cohérent :

$$\theta'_{c}(\Delta t) = \frac{2d \mathcal{E}}{n} T_{R} \left[1 - e^{-\Delta t/2T_{R}} \right]$$
 (A4-4)

Pour décrire la polarisation atomique due au mouvement brownien dans le champ thermique, il est nécessaire de faire intervenir les deux angles polaires θ'_{th} et ϕ_{th} du vecteur de Bloch. En effet, la phase du champ thermique est aléatoire par rapport à celle du champ cohérent. ϕ_{th} est une variable aléatoire dont les valeurs sont équiréparties entre 0 et 2π . θ'_{th} à la fin de l'interaction avec le mode obéit à une statistique gaussienne dont la valeur moyenne est :

$$\overline{\theta'_{\text{th}}(\Delta t)} = \sqrt{\frac{2n}{N}} \left[1 - e^{-\Delta t/T_R} \right]^{1/2}$$
 (A4-5)

(voir équation (IV.76) donnant le nombre moyen de photons thermiques absorbés).

Le nombre moyen de photons absorbés dans la cavité est donc :

$$\overline{\Delta N} = \frac{N}{2} \left[\frac{\theta'_{c}(\Delta t) + \theta_{th}(\Delta t) e^{i\phi_{th}}}{c} \right]^{2}$$

La valeur moyenne de e^{i¢th} étant nulle, on peut écrire :



Figure 44 : Rendement quantique d'un détecteur à états de Rydberg en fonction du nombre d'atomes N (courbe en traits pleins : variation théorique)

. С.

$$\overline{\Delta N} = \overline{\Delta N}_{th} + \Delta N_{c} \qquad (A4-6)$$

avec

$$\overline{\Delta N_{th}} = \overline{n} \left[1 - e^{-\Delta t/T_R} \right]$$

$$\Delta N_c = \frac{N}{2} \left(\frac{2d}{N} \left(\frac{2d}{N} \right)^2 T_R^2 \left[1 - e^{-\Delta t/T_R} \right]^2$$
(A4-8)

En d'autres termes, les nombres de photons absorbés dans le champ thermique et dans le champ cohérent s'ajoutent indépendamment.

 ξ^2 étant proportionnel au nombre de photons cohérents incidents, on peut définir un <u>rendement quantique</u> ξ pour ce détecteur (¹⁺⁹), rapport du nombre de photons absorbés dans le champ cohérent au nombre de photons incidents pendant Δt :

$$\xi = \frac{\Delta N_{c}}{n_{inc} \Delta t} = \frac{T_{R}}{\Delta t} \left[e^{-\Delta t/2T_{R}} - 1 \right]^{2}$$
(A4-9)

La ligne continue sur la figure 44 représente les variations de ξ en fonction de N. On constate qu'après une croissance linéaire pour $T_R^{-1} << \Delta t^{-1}$ ξ sature, passe par un maximum de l'ordre de 20% pour $T_R^{-\infty}$ $\Delta t/2.3$, puis décroft à nouveau. Dans le régime où ξ est une fonction linéaire de N on a $\xi \cong \frac{d^2 Q}{2M} \Delta tN$, ce qui, comme on peut le vérifier aisément, est le résultat attendu pour N atomes interagissant indépendamment les

uns des autres avec le champ. Comme dans le cas de l'absorption de rayonnement thermique décrite au paragraphe IV.D.2, la saturation du rendement quantique pour les fortes valeurs de N est due à l'amortissement radiatif collectif des dipôles atomiques avec la constante de temps caractéristique T_R.

Les points sur la figure 44 représentent le résultat de mesures expérimentales du rendement quantique sur la transition $30S_{1/2} \rightarrow 30P_{1/2}$ à 134 GHz. Pour ne mesurer que le nombre d'atomes transférés à cause du champ cohérent, on compare ici les signaux d'ionisation obtenus quand une micro-

ι.
onde est injectée et quand les atomes n'interagissent qu'avec le champ thermique, la cavité restant toujours à résonance. La puissance micro-onde émise par le multiplicateur harmonique (voir § II.E) peut être rendue aussi petite que nécessaire très facilement en modifiant la polarisation continue de la diode Schottky ou la puissance centimétrique injectée. Pour travailler avec une puissance micro-onde très faible mais néanmoins très bien contrôlée nous disposons, entre le mélangeur et la cavité, une série d'atténuateurs. En les réglant au minimum d'atténuation, nous obtenons assez de puissance pour observer des oscillations de Rabi ce qui permet de calibrer de façon absolue le champ dans la cavité (les atténuateurs sont bien entendu soigneusement calibrés).

La dépendance générale en fonction de N du rendement quantique expérimental et sa valeur maximale (\sim 10%) sont en bon accord qualitatif avec les prévisions du modèle simple exposé plus haut. Le désaccord est sans doute lié à deux causes principales : notre modèle ne tient compte que de façon très imparfaite du mouvement des atomes et les calibrations de populations ne sont pas très précises.

Outre le rendement quantique, l'autre quantité caractérisant un détecteur micro-onde est l'amplitude du bruit. Le nombre moyen de photons thermiques absorbés est, au voisinage de l'optimum du rendement quantique, de l'ordre de n, avec une dispersion de n autour de cette valeur moyenne. Le signal minimum détectable en une réalisation de l'expérience est donc tel que $\Delta N_c > n$, c'est-à-dire $n_{inc} > \frac{n}{\xi \Delta t}$. Si on utilise p impulsions du laser, ce seuil de détection se réduit à $n_{inc} > \frac{n}{\xi \Delta t} - \frac{1}{\sqrt{p}}$.

En réduisant la température du mode de la cavité à environ 6K (c'est-à-dire n < 1 à 100 GHz), nous avons pu détecter sur la transition $30S_{1/2}$ $\rightarrow 30P_{1/2}$ à 134 GHz et $24S_{1/2} \rightarrow 24P_{1/2}$ à 270 GHZ une puissance incidente de l'ordre de $0.5 \ 10^{-15}$ w. Le très faible transfert induit (1 atome sur 1000) est facilement discernable du bruit de fond thermique en moyennant un millier de signaux. La bande passante du détecteur étant déterminée par la largeur de la raie atomique, de l'ordre de 1 MHz, ces chiffres correspondent à une détectivité de l'ordre de 10^{-18} w/ \sqrt{Hz} qui est, comme nous l'avons déjà

souligné, comparable à la détectivité des meilleurs détecteurs à l'état solide. Il est toutefois important de remarquer que la valeur théorique maximale du rendement quantique est indépendante des paramètres atomiques : seule la valeur de N pour laquelle elle est atteinte en dépend. La détectivité doit donc être essentiellement indépendante de la fréquence, ce qui est loin d'être le cas pour des détecteurs plus conventionnels.

L'amortissement radiatif collectif des dipôles limite, comme nous l'avons vu, le rendement quantique à environ 20%. On peut se poser alors le problème de l'intérêt d'une cavité pour la réalisation d'un détecteur. Si nous considérons en effet N atomes interagissant indépendamment avec le champ dans l'espace libre, le rendement quantique est donné par :

$$\xi = \frac{\pi d^2 N}{\varepsilon_0 \varkappa c} \frac{\omega}{\Delta \omega} \frac{1}{S}$$
(A4-10)

Dans cette formule S est la surface occupée par le champ incident au niveau des atomes (de l'ordre de 0.3 cm² au foyer d'une lentille millimétrique par exemple) et $\Delta \omega$ est proportionnel à l'inverse du temps de transit des atomes dans le champ (si telle est la principale limitation à la durée du couplage cohérent d'un atome avec le champ). Ce rendement est de l'ordre de 50% avec N = 10⁵ sur une transition typique, avec $\Delta \omega \sim 1$ MHz et S ~ 0.3 cm². Il est donc très supérieur à la valeur optimale obtenue dans une cavité. Cependant il existe, pour des nombres d'atomes aussi élevés, un bruit de fond dù aux collisions entre atomes très excités (voir chapitre V). La section efficace σ_{coll} de transfert par collision étant de l'ordre de 10⁻⁸ cm² pour n = 30 à 40, le nombre moyen d'atomes transférés par collision pendant le temps $\Delta t = 1/\Delta \omega$ est :

$$\delta N_{coll} = N V_{th} \rho \sigma_{coll} / \Delta \omega$$
 (A4-11)

où ρ = N/Se est la densité du milieu. En prenant e \sim 1 mm, on trouve $\delta N_{coll} \sim 500$. En d'autres termes, le signal d'obscurité attendu correspond à celui que produiraient un millier de photons incidents ! L'intérêt de la cavité est donc de permettre la réalisation d'un milieu optiquement dense avec un faible nombre d'atomes : en termes imagés, un photon "passe f fois dans l'échantillon", si f est la finesse de la cavité. Le bruit de fond lié aux collisions devient alors tout à fait négligeable.

2. Détection d'un champ cohérent au moyen de masers à états de Rydberg

L'application d'un petit champ cohérent dans la cavité modifie aussi la dynamique de l'émission superradiante. Si le champ micro-onde injecté est relativement faible, il ne joue de rôle important, comme le champ thermique, que pendant la phase linéaire du démarrage de l'évolution (voir § IV.B.1). On peut montrer alors (²⁹), par un raisonnement très similaire à celui que nous venons d'exposer, que la condition initiale $\theta(0) e^{i\phi(0)}$ pour la polarisation atomique, qui modélise cette phase de démarrage, est la somme d'une quantité certaine θ_c ($\phi_c = 0$ par convention) et d'une quantité aléatoire $\theta_{th} e^{i\phi_{th}}$ où ϕ_{th} est équirépartie entre 0 et 2 π et où θ_{th} obéit à la statistique gaussienne définie par l'équation (IV-47).

Il est alors utile de définir le "facteur de déclenchement" β par :

$$\beta = \left| \frac{\theta_{c}}{\overline{\theta_{0}}} \right| \qquad \left(\overline{\theta_{0}} = 2 \sqrt{\frac{n+1}{N}} \right)$$

qui se trouve être égal, dans le régime surcritique, à :

$$\beta = \sqrt{\frac{n_{\text{inc}} T_{\text{R}}}{\overline{n} + 1}}$$
(A4-12)

c'est-à-dire à la racine carrée du rapport du nombre de photons incidents pendant le temps caractéristique T_R de l'émission maser au nombre de photons thermiques "et spontanés" dans la cavité. Les caractéristiques de l'émission seront d'autant plus modifiées que le facteur β est plus grand. Ces modifications portent sur plusieurs aspects de l'évolution :

* Modification du délai

La taille moyenne de $\theta(0)$ est :



Figure 45 : Propriétés statistiques de l'évolution d'un maser déclenché par un faible champ micro-onde cohérent. Les histogrammes sont obtenus dans les mêmes conditions, que ceux de la Figure 22.

 $\overline{\theta(0)} = \overline{\theta}_0 (1 + \beta^2)^{1/2}$. Le délai moyen T_D de l'émission maser est donc maintenant :

$$T_{D} = T_{R} Log \left(\frac{N}{(1+n)(1+\beta^{2})} \right)$$
(A4-13)

Cet effet, faisant intervenir le logarithme de β , est très peu sensible : l'injection d'un champ cohérent modifie peu le délai de l'émission superradiante.

* Modification des propriétés statistiques

En revanche, les propriétés statistiques de l'émission sont dramatiquement modifiées. Les fluctuations relatives de $\theta(0)$ sont en effet réduites par la présence d'une composante certaine et, si β est grand, ces fluctuations disparaissent pratiquement de façon complète.

La figure 45 présente par exemple les histogrammes de la distribution du nombre de photons émis par un maser en fonction du temps. Les conditions sont exactement similaires à celles utilisées pour la figure 22 à l'injection près d'un petit champ microonde dans la cavité. Si les valeurs moyennes des histogrammes évoluent sensiblement de la même manière dans ces deux figures, les fluctuations ont ici presque complètement disparu (la dispersion restante est liée essentiellement à la résolution du dispositif expérimental).

* Modifications de la phase du champ émis

Si β est supérieur à 1, la phase initiale de la polarisation atomique n'est pas également répartie entre 0 et 2π . Elle est concentrée dans un intervalle d'autant plus petit que β est plus grand. La phase du champ émis par le maser est donc le réflet de la phase du champ incident. On peut détecter très simplement cet effet au moyen de la détection hétérodyne du rayonnement émis par le maser qui est sensible bien sûr à la phase du champ. Ces expériences ont déjà été décrites en détail dans (²⁹) (¹²⁵) et dans les thèses de M. GROSS (²²) et C. FABRE (³⁶). Nous ne nous y attarderons donc pas davantage.

*Modifications de la polarisation du rayonnement émis

Si on n'applique pas de champ magnétique sur la cavité, l'émission se fait simultanément sur les deux transitions atomiques (polarisations σ^+ et σ^-) initialement également peuplées. Le délai de l'émission étant une quantité faiblement fluctuante ces émissions sont presque simultanées et de phase respective aléatoire. La micro-onde émise est donc, pendant la plus grande partie de l'évolution, polarisée linéairement selon une direction aléatoire. Si on injecte une micro-onde polarisée, les phases relatives des deux masers s'ajustent à la phase de cette micro-onde et la polarisation émise reflète, si β est grand devant un, la polarisation incidente. Là encore cet effet a pu être mis en évidence au moyen de la détection hétérodyne (le guide d'onde rectangulaire couplant la cavité au détecteur agissant comme polariseur d'analyse), et nous renverrons aussi le lecteur à d'autres publications (²⁹) pour une description plus détaillée de ces expériences.

Si les modifications de la statistique de l'émission peuvent être détectées par les techniques décrites au chapitre II (détection des populations), la détection des deux derniers effets ne peut se faire qu'avec un récepteur micro-onde. Dans le premier cas le maser fonctionne comme un détecteur et dans le second comme un préamplificateur devant être suivi d'un détecteur dont la qualité n'est pas très critique.

Comme nous l'avons vu, la modification de l'émission maser est liée au nombre de photons incidents pendant le temps T_R : le signal n'est véritablement détecté que pendant le temps T_R en général court devant Δt . Ce système est donc intrinsèquement moins performant qu'un échantillon d'atomes de Rydberg fonctionnant comme absorbeur. Dans ce dernier cas en effet, le signal micro-onde est utile pendant <u>tout</u> le temps du couplage cohérent entre les atomes et la cavité.

Plusieurs améliorations peuvent être apportées à ces détecteurs. Tout d'abord, on peut songer à accorder la fréquence atomique par effet Stark. En profitant du grand nombre de transitions possibles entre niveaux de Rydberg, il devrait être possible de couvrir continuement tout le spectre millimétrique et submillimétrique. Enfin, les détecteurs réalisés jusqu'ici n'échantillonnent

le signal que pendant un temps de l'ordre de la microseconde tous les dizièmes de seconde (taux de répétition du laser). Il faut donc des temps d'acquisition très longs pour obtenir une réduction significative du bruit de fond. Ces détecteurs à atomes de Rydberg ne seront donc véritablement concurrentiels vis-à-vis des autres dispositifs (mélangeurs hétérodynes à faible bruit) que quand nous pourrons les faire fonctionner à très haut taux de répétition ou, mieux encore, avec une excitation continue. L'excitation continue stable et efficace de niveaux de Rydberg du sodium a d'ores et déjà été réalisée au Laboratoire par C. FABRE (¹⁵¹). La structure des niveaux atteints (nf, très sensibles à l'effet Stark) n'a pas encore permis d'atteindre les valeurs attendues de la détectivité.

REFERENCES

....

.

•

•

REFERENCES

(1) W. WOLLASTON Phil. Trans. Roy. Soc. 2, <u>11</u> , 365 (1802)
(2) J. FRAUNHOFER Gilbert's Ann. <u>56</u> , 264(1817)
(3) H.A. ROWLAND Phil. Mag. <u>13</u> , 469 (1882)
(4) E.T. JAYNES, F.W. CUMMINGS Proc. IEEE <u>51</u> , 89 (1963)
(5) M. TAVIS, F.W. CUMMINGS Phys. Rev. <u>170</u> , 379 (1968)
(6) M. TAVIS, F.W. CUMMINGS Phys. Rev. <u>188</u> , 692 (1969)
(7) R. BONIFACIO, G. PREPARATA Phys. Rev. <u>A2</u> , 336 (1970)
(8) G. SCHARF Helv. Phys. Acta. <u>43</u> , 806 (1970)
(9) L. ALLEN, J.H. EBERLY "Optical resonance and two levels atoms", Wiley N.Y. (1975)
(10) P.L. KNIGHT, P.W. MILONI Phys. Rep. <u>66C</u> , 21 (1980)
(11) E.M. PURCELL Phys. Rev. <u>69</u> , 681 (1946)
(12) P. GOY, J.M. RAIMOND, M. GROSS, S. HAROCHE Phys. Rev. Lett. <u>50</u> , 1903 (1983)
(13) D. KLEPPNER Phys. Rev. Lett. <u>47</u> , 233 (1981)
(14) F.W. CUMMINGS Phys. Rev. <u>140</u> , A1051 (1965)
(15) T. Von FOERSTER J. Phys. <u>A8</u> , 95 (1975)
(16) P.L. KNIGHT, P.M. RADMORE à paraître
<pre>(17) A. FAIST, E. GENEUX, P. MEYSTRE, A. QUATTROPANI Helv. Phys. Acta <u>45</u>, 956 (1972)</pre>
(18) J.H. EBERLY, N.B. NAROZHNY, J.J. SANCHEZ-MONDRAGON Phys. Rev. Lett. 44 1323 (1980)
(19) P.L. KNIGHT, P.M. RADMORE Phys. Rev. <u>A26</u> , 676 (1982)
(20) R.H. DICKE Phys. Rev. <u>93</u> , 99 (1954)
(21) G.S. AGARWAL "Quantum statistical theories of spontaneous emission and their relation to other approaches" in "Springer Tracts in Modern Physics", Vol. 70, Springer (1970)
(22) M. GROSS Thèse d'Etat, Paris VI, 1980, non publiée
(23) M. GROSS, S. HAROCHE Phys. Rep. <u>93</u> , 302 (1982)

- (24) F. HAAKE, J. HAUS, R.J. GLAUBER Phys. Rev. A23, 3255 (1981)
- (25) J.M. RAIMOND, P. GOY, M. GROSS, C. FABRE, S. HAROCHE Phys. Rev. Lett. 49, 1924 (1982)
- (26) Y. KALUZNY, P. GOY, M. GROSS, J.M. RAIMOND, S. HAROCHE Phys. Rev. Lett. 51, 1175 (1983)
- (27) Y. KALUZNY, P. GOY, M. GROSS, J.M. RAIMOND, S. HAROCHE à paraître (1984)
- (28) L. MOI, P. GOY, M. GROSS, J.M. RAIMOND, C. FABRE, S. HAROCHE Phys. Rev. A27, 2043 (1983)
- (29) P. GOY, L. MOI, M. GROSS, J.M. RAIMOND, C. FABRE, S. HAROCHE Phys. Rev. A27, 2065 (1983)
- (30) J.M. RAIMOND, P. GOY, M. GROSS, C. FABRE, S. HAROCHE Phys. Rev. Lett. 49, 117 (1982)
- (31) G. VITRANT Thèse de 3ème Cycle, Paris VI, non publiée
- (32) C. FABRE, M. GROSS, J.M. RAIMOND, S. HAROCHE J. Phys. B16, L671 (1983)
- (33) S. HAROCHE, G. VITRANT, J.M. RAIMOND in "Laser spectroscopy V", A.R.W. MCKELLAR, T. OKA, B.P. STOICHEFF ed. p. 290, Springer (1981)
- (34) J.M. RAIMOND, G. VITRANT, S. HAROCHE J. Phys. B21, L655 (1981)
- (35) G. VITRANT, J.M. RAIMOND, M. GROSS, S. HAROCHE J. Phys. <u>B15</u>, L49 (1982)
- (36) C. FABRE Thèse d'Etat, Paris VI (1980) non publiée
- (37) C. FABRE Ann. Phys. Fr. 7, 5 (1982), 4, 247 (1982)
- (38) B. HOGLUND, P.B. MEZGER Science 150, 339 (1965)
- (39) A. DALGARNO in "Rydberg states of Atoms and Molecules", R.F. STEBBINGS et F.B. DUNNING ed, Cambridge University Press, N.Y. (1983)
- (40) M.J. SEATON Mon. Not. R. Astron. Soc. A118, 501 (1958)
- (41) A. BETHE, E. SALPETER "Quantum mechanics of one and two-electrons atoms" Springer N.Y. (1957)
- (42) J. PICART, A. EDMONDS, TRANH-MINH, R. PULLEN J. Phys. B <u>12</u>, 2781 (1979)
- (43) V.A. DAVYDKIN, B.A. ZON Opt. Spect. (URSS) 51, 13 (1981)
- (44) S. HAROCHE in "Atomic Physics 7", D. KLEPPNER et F.H. PIPKIN ed. Plenum Press, N.Y. (1981)

- (45) W.P. SPENCER, A. GANESH VAIDYANATHAN, D. KLEPPNER Phys. Rev. <u>A25</u>, 380 (1982)
- (46) M. HUGON, F. GOUNAND, P.R. FOURNIER J. Phys. B. 11, L605 (1978)
- (47) T.F. GALLAGHER, W.E. COOKE Phys. Rev. A20, 670 (1979)
- (43) W.P. SPENCER, A. GANESH VAIDYANANTHAN, D. KLEPPNER Phys. Rev. <u>A24</u> 2513 (1981)
- (49) E.J. BEITING, G.F. HILDEBRANDT, F.G. KELLERT, G.W. FOLTZ, K.A. SMITH, F.B. DUNNING, R.F. STEBBINGS J. Chem. Phys. 70, 3551 (1979)
- (50) P. KOCH, H. HIERONYMUS, A. Van RAAN, W. RAITH Phys. Lett. <u>75A</u>, 273 (1980)
- (51) H. FIGGER, G. LEUCHS, R. STRAUBINGER, H. WALTHER Opt. Comm. <u>33</u>, 37 (1980)
- (52) T.F. GALLAGHER in "Rydberg states of atoms and molecules", R.F. STEBBINGS et F.B. DUNNING ed., Cambridge University Press, N.Y. (1983)
- (53) T.F. GALLAGHER, W.E. COOKE Phys. Rev. Lett. 42, 835 (1979)
- (54) G. BARTON Phys. Rev. A5, 469 (1972)
- (55) P. KNIGHT J. Phys. A5, 417 (1972)
- (56) L. HOLLBERG, J.L. HALL in "Laser Spectroscopy VI", P. WEBER et W. LÜTHY ed. Springer (1983)
- (57) M. GROSS, P. GOY, C. FABRE, S. HAROCHE, J.M. RAIMOND Phys. Rev. Lett. 43, 343 (1979)
- (58) F.P. MATTAR, H.M. GIBBS, S.L. MCCALL, M.S. FELD Phys. Rev. Lett. <u>46</u>, 1123 (1981)
- (59) S. LIBERMAN, J. PINARD Phys. Rev. A20, 507 (1979)
- (60) K. FREDERIKSSON, H. LUNDBERG, S. SVANBERG Phys. Rev. A21, 241 (1980)
- (61) L. PENDRILL, D. DELANDE, J.C. GAY J. Phys. B 12, L603 (1979)
- (62) B.P. STOICHEFF, E. WEINBERGER in "Laser Spectroscopy IV" p. 264,H. WALTHER et K.W. ROTHE ed., Springer (1979)
- (63) C. HARPER, S. WHEATLEY, M. LEVENSON J. Opt. Soc. Am. 67, 579 (1977)
- (64) S. LEE, J. HELMCKE, J.L. HALL in "Laser Spectroscopy IV", p. 130,H. WALTHER, K.W. ROTHE ed. Springer (1979)
- (65) C.J. LORENZEN, K.H. WEBER, K. NIEMAX Opt. Comm. 33, 271 (1980)
- (66) C.J. LORENZEN, K. NIEMAX J. Quant. Spectr. Radiat. Transf. <u>22</u>, 247 (1979)

- (67) C. FABRE, S. HAROCHE, P. GOY Phys. Rev. A18, 229 (1978)
- (68) P. GOY, C. FABRE, M. GROSS, S. HAROCHE J. Phys. B13, L83 (1980)
- (69) C. FABRE, S. HAROCHE, P. GOY Phys. Rev. A22, 778 (1980)
- (70) P. GOY, J.M. RAIMOND, G. VITRANT, S. HAROCHE Phys. Rev. <u>A26</u>, 2733 (1982)
- (71) R.G. HULET, D. KLEPPNER Phys. Rev. Lett. 51, 1430 (1983)
- (72) T.W. DUCAS, M.G. LITTMAN, R.R. FREEMAN, D. KLEPPNER Phys. Rev. Lett. 21, 279 (1975)
- (73) T.F. GALLAGHER, L. HUMPHREY, W.E. COOKE, R. HILL, S. EDELSTEIN Phys. Rev. A16, 1098 (1977)
- (74) J.L. VIALLE, H. DUONG J. Phys. B 12, 1407 (1979)
- (75) M.L. ZIMMERMAN, M.G. LITTMAN, M.M. KASH, D. KLEPPNER Phys. Rev. A 20 2251 (1980)
- (76) P. GOY Int. Journ. Infrared and millimeter waves 3, 221 (1982)
- (77) P. GOY "Infrared and millimeter waves" p. 341, K.J. BUTTON ed., Vol. 8 , Academic Press N.Y. (1983)
- (78) P. GOY, L. TEYSSIER, B. LE DINH, C. MAUC "L'onde électrique", à paraître (Mars 1984)
- (79) S. HAROCHE in "Les Houches Summer School lecture notes, session XXXVIII" à paraître, North Holland
- (80) J.M. RAIMOND, S. HAROCHE in "Advances in Atomic and Molecular Physics" Vol. 20, D.R. BATES et B. BEDERSON ed. Academic Press N.Y. à paraître
- (81) A.E. SIEGMAN "An introduction to lasers and masers", Mc Graw-Hill, N.Y. (1971)
- (82) W.H. LOUISELL, J.H. MARBURGER, IEEE Journal of Quantum Electronics <u>3</u>, 348 (1967)
- (83) C. COHEN-TANNOUDJI "Les Houches lecture notes session XXVII",
 R. BALIAN, S. HAROCHE, S. LIBERMAN ed. North Holland (1976)
- (84) C. COHEN-TANNOUDJI Cours au Collège de France 1977-1979, non publiés
- (85) I.R. SENITZKY Phys. Rev. 124, 642 (1961)
- (86) R.W. ZWANZIG in "Lectures in theoretical physics" Vol. III, W.E. BRITTIN ed., Wiley (1961)
- (87) W.H. LOUISELL "Quantum statistical properties of radiation", Wiley
 N.Y. (1961)

- M. LAX "Fluctuations and coherence phenomena in classical and quantum physics", "Brandeis University Summer institute lectures", Vol. II,
 M. CHRETIEN, E.P. GROSS, S. DESER ed. Gordon and Breach (1966)
- (89) C. COHEN-TANNOUDJI, P. AVAN Colloque International du CNRS n° 273, éditions du CNRS, Paris (1977)
- (90) S. HAROCHE Annales de Physique 6, 189 (1971)
- (91) S. HAROCHE Annales de Physique 6, 327 (1971)
- (92) C. COHEN-TANNOUDJI, S. REYNAUD J. Phys. B10, 345 (1977)
- (93) C. COHEN-TANNOUDJI, S. REYNAUD in "Multiphoton processes", J.H. EBERLY et P. LAMBRO POULOS ed. Wiley, N.Y. (1978)
- (94) S. HAROCHE in "High Resolution Laser Spectroscopy", K. SHIMODA ed. Springer N.Y. (1976)
- (95) M. GROSS Thèse de 3ème cycle, Paris VI (1976) non publiée
- (96) V. NGUYEN-TUONG, L. WARTSKI, P. GOY, J.M. RAIMOND, M. GROSS, S. HAROCHE à paraître
- (97) C. COHEN-TANNOUDJI Cours du Collège de France 1982-1984 (non publiés)
- (98) H. WALTHER, D. MESCHEDE Communication privée
- (99) D. KLEPPNER Communication privée
- (100) S. SACHDEV à paraître
- (101) R.J. GLAUBER "Optical coherence and photon statistics" in "Les Houches Summer School proceedings", C. de WITT, A. BLONDIN, C. COHEN-TANNOUDJI ed. Gordon and Breach N.Y. (1965)
- (102) Y. KALUZNY Thèse de 3ème cycle, Paris VI (1984) non publiée
- (103) A. ABRAGAM "Principles of Nuclear Magnetism", Oxford University Press, N.Y. (1961)
- (104) S.H. AUTLER, C.H. TOWNES Phys. Rev. 100, 703 (1955)
- (105) J. DUPONT-ROC Thèse d'Etat, Paris (1962) non publiée
- (106) D. GRISCHKOWSKY, M.M.T. LOY, P.F. LIAO Phys. Rev. A12, 2514 (1975)
- (107) R.G. BREWER, F.L. HAHN Phys. Rev. A11, 1641 (1975)
- (108) D. GRISCHKOWSKY, R.G. BREWER Phys. Rev. A15, 1789 (1977)
- (109) M.M.T. LOY Phys. Rev. Lett. 36, 1454 (1976)
- (110) F. HAAKE, H. KING, G. SCHRÖDER, J. HAUS, R.J. GLAUBER Phys. Rev. <u>A20</u> 2047 (1979)

- (111) R. BONIFACIO, P. SCHWENDIMAN, F. HAAKE Phys. Rev. A4, 302 (1971)
- (112) R. BONIFACIO, P. SCHWENDIMAN, F. HAAKE Phys. Rev. A4, 854 (1971)
- (113) F. HAAKE, R.J. GLAUBER Phys. Rev. A5, 1457 (1972)
- (114) R.J. GLAUBER Série de quatre conférences au Collège de France (1983) non publiées
- (115) R. BONIFACIO, L.A. LUGIATO Phys. Rev. A11, 1507 (1974)
- (116) R. BONIFACIO, L.A. LUGIATO Phys. Rev. A12, 587 (1975)
- (117) V. de GIORGIO Optics Comm. 2, 262 (1971)
- (118) D. POLDER, M. SCHUURMANS, Q. VREHEN Phys. Rev. A19, 1192 (1972)
- (119) J. DALIBARD, J. DUPONT-ROC, C. COHEN-TANNOUDJI J. de Phys. <u>43</u>, 1617 (1982)
- (120) A. CRUBELLIER, S. LIBERMAN, P. PILLET Opt. Comm. 33, 143 (1980)
- (121) C. FABRE, S. HAROCHE in "Rydberg states of atoms and molecules" R.F. STEBBINGS, F.B. DUNNING ed. Cambridge University Press, N.Y. (1983)
- (122) S. HAROCHE, P. GOY, J.M. RAIMOND, C. FABRE, M. GROSS Phil. Trans. Roy. Soc. London <u>A307</u>, 659 (1982)
- (123) S. HAROCHE, C. FABRE, J.M. RAIMOND, P. GOY, M. GROSS, L. MOI J. de Phys. Coll. C2, 43, 265 (1982) (supplément au n° 11)
- (124) C. FABRE, S. HAROCHE, J.M. RAIMOND, P. GOY, M. GROSS, L. MOI J. de Phys. Coll C2, 43 , 275 (1982) (supplément au n° 11)
- (125) L. MOI, C. FABRE, P. GOY, M. GROSS, S. HAROCHE, P. ENCRENAZ,G. BEAUDIN, B. LAZAREFF Opt. Comm. 33, 47 (1980)
- (126) A. GANESH VAIDYANATHAN, W.P. SPENCER, D. KLEPPNER Phys. Rev. Lett. 47, 1592 (1981)
- (127) J. LENNARD-JONES Trans. Faraday Soc. 28, 333 (1932)
- (128) J. BARDEEN Phys. Rev. 58, 727 (1940)
- (129) E. ZAREMBA, W. KOHN Phys. Rev. B13, 2270 (1976)
- (130) L. BRUCH, H. WATANABE Surface Science 66, 619 (1977)
- (131) A. CHAPLIK Sov. Phys. JETP 27, 178 (1968)
- (132) A. SHIH, M. RASKIN, P. KUSCH Phys. Rev. A9, 652 (1974)
- (133) T. JEYS, G. FOLTZ, K. SMITH, E. BEITING, F. KELLERT, F. DUNNING R.F. STEBBINGS Phys. Rev. Lett. <u>44</u>, 390 (1980)

(134) R.E. OLSON Phys. Rev. Lett. 43, 126 (1979)

- (135) K.A. SAFINYA, J.F. DELPECH, F. GOUNAND, W. SANDNER, T.F. GALLAGHER Phys. Rev. Lett. 47, 405 (1981)
- (136) P. PILLET, R. KACHRU, N.H. TRAN, W.W. SMITH, T.F. GALLAGHER Phys. Rev. Lett. 50, 1763 (1983)
- (137) M. BARANGER in "Atomic and Molecular Processes", D.R. BATES ed. Academic Press N.Y. (1962)
- (138) R. FRIEDBERG, S.R. HARTMAN Phys. Rev. A10, 1728 (1974)
- (139) E. FERMI Nuovo Cimento 11, 157 (1934)
- (140) M.A. MAZING, P.P. SERAPINAS Sov. Phys. JETP 33, 294 (1971)
- (141) H.R. GRIEM "Plasma Spectroscopy", McGRAW-HILL N.Y. (1964)
- (142) E.F. WORDEN, J.A. PAISNER, S.G. CONWAY Opt. Lett 3, 156 (1978)
- (143) F.L. DUMAN, I.P. SHMATOV Sov. Phys. JETP 51, 1061 (1980)
- (144) I.C. PERCIVAL, D. RICHARDS in "Advances in Atomic and Molecular Physics", D.R. BATES et B. BEDERSON ed. <u>11</u>, 1, Academic Press N.Y. (1975)
- (145) T.J. MCILRATH, T.B. LUCATORTO Phys. Rev. Lett. 38, 1390 (1977)
 - (146) Sir N.F. MOTT "Metal-insulator transitions" Taylor et Francis (1974)
 - (147) J.M. RAIMOND Thèse de 3ème cycle, Paris VI (1979) non publiée
 - (148) T.W. DUCAS, W. SPENCER, A. GANESH VAIDYANATHAN, W. HAMILTON, D. KLEPPNER Appl. Phys. Lett. 35, 382 (1979)
 - (149) S. HAROCHE, P. GOY, C. FABRE, M. GROSS, J.M. RAIMOND Revue du Céthedec NS83-2, 109 (1983)
 - (150) P. GOY, J.M. RAIMOND, S. HAROCHE, M. GROSS Journal of Appl. Phys. à paraître
 - (151) C. FABRE, Y. KALUZNY, R. CALABRESE, LIANG JUN, P. GOY, S. HAROCHE à paraître

...

(152) P. GOY Thèse d'Etat, Paris, non publiée (1970)