



HAL
open science

Blocage dipolaire de l'excitation d'atomes froids vers des états de Rydberg : Contrôle par champ électrique et par résonance de Förster

Thibault Vogt

► **To cite this version:**

Thibault Vogt. Blocage dipolaire de l'excitation d'atomes froids vers des états de Rydberg : Contrôle par champ électrique et par résonance de Förster. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Paris Sud - Paris XI, 2006. Français. NNT: . tel-00135180

HAL Id: tel-00135180

<https://theses.hal.science/tel-00135180>

Submitted on 6 Mar 2007

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.

UNIVERSITE PARIS 11 - ORSAY

THÈSE

Pour obtenir le grade de
Docteur de l'Université Paris XI
École doctorale : Ondes et Matière

présentée par

Thibault VOGT

**Blocage dipolaire de l'excitation d'atomes froids vers
des états de Rydberg :**

Contrôle par champ électrique et résonance de Förster

Soutenue le 21 décembre 2006 devant le jury composé de :

M. Philippe GRANGIER	: Examineur
M. Robin KAISER	: Examineur
M. Frédéric MERKT	: Rapporteur
M. Pierre PILLET	: Directeur de Thèse
M. Jean-Michel RAIMOND	: Rapporteur

Laboratoire Aimé Cotton - Campus d'Orsay
bât 505, 91405 Orsay

Remerciements

J'ai réalisé mon travail de thèse au Laboratoire Aimé Cotton dans le groupe expérimental Atomes et Molécules froids alors animé par Pierre Pillet, mon directeur de thèse et Daniel Comparat, chargé de recherche dans l'équipe.

J'ai travaillé sur une expérience qui avait déjà connu de grandes heures de gloire, sous l'impulsion de nombreux thésards, dont Daniel Comparat, Igor Mourachko, Cyril Drag, Bruno Laburthe-Tolra, Nicolas Vanhecke, Nassim Zahzam... Les travaux présentés dans cette thèse s'inscrivent dans la continuité des thèmes déjà abordés auparavant, à savoir la formation de molécules froides, les gaz d'atomes de Rydberg ou encore les plasmas ultra-froids. Ce travail est bien sûr la réalisation de toute une équipe, à qui je veux exprimer maintenant mes plus sincères remerciements.

J'ai à coeur de t'exprimer, Pierre, ma profonde gratitude pour la confiance que tu m'as témoignée tout au long de ma thèse, pour ton soutien et ton optimisme extrêmement stimulants. Je te dois d'avoir pu vivre une aventure passionnante et vraiment enrichissante par la diversité des sujets scientifiques qui ont été abordés et d'avoir pu découvrir le monde de la recherche et son esprit de rigueur dans la quête de la vérité. Encore merci !

Mes remerciements très chaleureux te sont également adressés, Daniel. Je te remercie pour m'avoir enseigné la physique des atomes froids à mon arrivée au Laboratoire Aimé Cotton, avec cet enthousiasme toujours formidable qui t'est si caractéristique. Je te remercie pour ton aide très précieuse tout au long de ma thèse, tant expérimentale (sans oublier les commandes ou les séances de rangement !) que théorique.

Je ne vous remercierai jamais assez, mes camarades d'expérience et amis, Nassim Zahzam, Matthieu Viteau, Amodsen Chotia et Marcel Mudrich, avec qui j'ai partagé des périodes d'intense travail, beaucoup de beaux moments et aussi, de chaleureuses conversations. J'espère que la recherche saura vous sourire !

Un grand nombre de visiteurs ont permis, par leur séjour dans l'équipe, de stimuler les échanges de savoir et ont pu apporter une contribution certaine au développement des expériences. Je leur transmets ma joie d'avoir pu travailler et collaborer avec eux : Janming Zhao, T. F. Gallagher, D. A. Tate, André Luiz de Oliveira, Ralph, M. Xiao, M. Jia...

Je n'oublie pas ici les autres membres de l'équipe qui m'ont beaucoup apporté, en particulier Emiliya Dimova, Guillaume Stern, Andrea Fioretti et Nicolas Vanhaecke.

J'exprime une grande reconnaissance à tous les théoriciens du laboratoire, Olivier Dulieu pour son aide en physique moléculaire, J. M. Lecomte et V. Akhoulina pour la physique des atomes de Rydberg, Jacques Bauche, Jordi Mur Petit, Anne Crubellier, Maurice Raoux, Eliane Luc-Koenig, Mireille Aymar.... ainsi qu'à tous les autres membres temporaires ou permanents du laboratoire : aux chercheurs, aux thésards, Vincent Crozatier, Guillaume Gorju, Aurélie Lando, Haïkel Jelassi, Walid Chaïbi, Vincent Lavielle..., aux équipes des différents ateliers, aux ingénieurs, Louis Cabaret, Dan Marescaux... et à tous les membres de l'administration, en particulier Amanda Trépagny qui a toujours été là pour résoudre les difficultés administratives.

J'adresse tous mes remerciements à Frédéric Merkt et Jean-Michel Raimond qui ont accepté d'effectuer le travail de rapporteurs, ainsi qu'aux autres membres du jury, Philippe Grangier et Robin Kaiser.

Un grand merci aux relecteurs et correcteurs assidus, Pierre Pillet, Daniel Comparat, Guillaume Stern et Nassim Zahzam.

Je ne saurai conclure sans dédier ma dernière pensée à tous mes amis et à ma famille, à leur indispensable soutien.

Table des matières

Introduction générale	11
1 Atomes de Rydberg : Introduction et exemple d'une application pour l'information quantique via le blocage dipolaire	17
1.1 Introduction	17
1.2 Propriétés générales des atomes de Rydberg	20
1.2.1 Niveaux d'énergie et fonctions d'onde du césium	21
1.2.1.1 Atome hydrogénoïde	21
1.2.1.2 Les atomes alcalins : le Césium	21
Atomes à plusieurs électrons	21
Premiers niveaux d'énergie du césium	22
1.2.2 Les états de Rydberg du césium	23
1.2.2.1 Vision classique	23
1.2.2.2 Théorie du défaut quantique	23
1.2.2.3 Expression des défauts quantiques-Inclusion de la structure fine	24
1.2.2.4 Structure hyperfine des atomes de Rydberg	25
1.2.3 Eléments de matrice dipolaire	26
1.2.3.1 Définition de l'élément de matrice dipolaire réduit	26
1.2.3.2 Réduction des éléments de matrice dipolaire	26
1.2.3.3 Intégrale radiale	27
1.2.3.4 Forces d'oscillateur	27
1.2.4 Durées de vie radiatives	28
1.2.5 Effet Stark sur les atomes alcalins	29
1.2.5.1 Structure Stark des niveaux d'énergie	29
Cas de l'hydrogène	30
Cas des alcalins	30
1.2.5.2 Ionisation par un champ électrique	32
Seuil d'ionisation classique	32
1.2.6 Résumé de quelques propriétés des atomes de Rydberg	35
1.3 Interaction dipôle-dipôle entre atomes de Rydberg	36
1.3.1 Forces de Van der Waals et interaction dipôle-dipôle	36
Développement multipolaire électrique	36
Interaction dipôle-dipôle	38
1.3.2 Interaction dipôle-dipôle en champ électrique statique	40
1.3.2.1 Etude du couplage $np - (n - 1)d$	40
1.3.2.2 Le couplage $np - (n - 1)d$, une configuration modèle de l'interaction dipôle-dipôle	43
Interaction dans une assemblée d'atomes	44

1.3.2.3	Les forces dipolaires en champ électrique	45
1.3.3	Mélange d'atomes dans des états de moments cinétiques l différents . . .	47
1.3.4	Interaction dipôle-dipôle à résonance collisionnelle : le transfert résonant d'excitation ou procédé Förster	48
1.3.4.1	Collisions résonantes	51
1.3.4.2	Transfert résonant d'excitation dans un gaz de Rydberg gelé	54
	Effets à N corps	57
1.4	Implications pour l'information quantique	60
1.4.1	Introduction	60
1.4.2	Porte de phase conditionnelle utilisant des atomes neutres	63
2	Excitation laser haute résolution d'un gaz d'atomes de Rydberg froids	
	71	
2.1	Introduction	71
2.2	Dispositif expérimental	71
2.2.1	La source atomique : le piège magnéto-optique de césium	72
2.2.2	Méthodes d'excitations laser : aspects expérimentaux	73
2.2.2.1	Excitation pulsée	73
2.2.2.2	Excitation pulsée-continue	74
2.2.2.3	Excitation continue	76
2.2.2.4	Asservissement du laser réalisant la transition $6p \rightarrow 7s$	76
2.2.3	Détection	80
2.2.4	Contrôle de la polarisation	80
2.2.5	Conclusion	83
2.3	Analyse théorique de différents schémas d'excitation laser et comparaison avec l'expérience	83
2.3.1	Rappel concernant l'excitation laser pulsée	84
	Exemple de l'excitation pulsée à résonance de Förster	84
	Possibilités d'utilisation d'une excitation pulsée	85
2.3.2	Caractérisation de l'excitation pulsée-continue	86
2.3.2.1	Analyse et simplification du système	86
2.3.2.2	Etude expérimentale des formes de raie	91
2.3.3	Excitation laser continue	94
2.3.3.1	Modèle décrivant l'excitation à trois couleurs	94
2.3.3.2	Simplification du système	95
2.3.3.3	Analyse des formes de raie expérimentales	97
2.3.3.4	Saturation par puissance	100
	Élargissements par puissance et temporels	104
	Description correcte des élargissements par puissance et temporels	104
	Remarque concernant les ions	105
2.3.3.5	Conclusion : possibilité d'une excitation cohérente	105
2.4	Spectroscopie d'états très excités	106
2.4.1	Motivation	106
2.4.2	Compensation des champs électriques parasites	110

3	Suppression de l'excitation Rydberg par charge d'espace	117
3.1	Processus de photoionisation	117
3.1.1	Sections efficaces de photoionisation	117
3.1.2	Photoionisation par l'intermédiaire d'un niveau résonant	118
	Ionisation via le niveau $7p$	118
	Ionisation via un niveau Rydberg résonant	121
3.1.3	Photoionisation par le laser continu Ti:Sa	122
3.2	Suppression de l'excitation Rydberg en présence d'ions	123
3.2.1	Elargissements de raie	123
3.2.2	Spectroscopie Rydberg en présence de champs électriques importants	124
3.2.3	Spectroscopie Rydberg en présence d'un nuage d'ions en expansion	126
3.2.4	Spectroscopie Rydberg en présence d'un plasma	127
3.3	Modélisation de la dynamique des élargissements de raie	129
3.3.1	Calculs des formes de raie	129
	Equations de taux	129
	Distribution des champs électriques en présence d'explosion coulombienne	130
3.3.2	Photoionisation préalable à l'excitation	132
3.3.3	Photoionisation au cours de l'excitation	132
3.4	Conclusion	135
4	Blocage dipolaire de l'excitation d'atomes vers des états de Rydberg :	
	Contrôle par champ électrique et par résonance de Förster	137
4.1	Introduction	137
4.2	Blocage dipolaire du deuxième ordre	139
4.2.1	Expérience du Connecticut	139
	4.2.1.1 Résultats et interprétation de l'expérience	139
	4.2.1.2 Modèle de champ moyen	141
4.2.2	Autres expériences	144
4.3	Blocage dipolaire en champ électrique	145
4.3.1	Blocage dipolaire de l'excitation vers les états $np_{3/2}$	147
	4.3.1.1 Résultats expérimentaux : étude comparée de différents états $np_{3/2}$	147
	4.3.1.2 Interprétation des résultats	148
	Interaction dipôle-dipôle moyenne	148
	Analyse des données expérimentales	151
4.3.2	Etude en fonction de la densité, comparaisons avec l'excitation des états $np_{1/2}$	154
	4.3.2.1 Introduction	154
	4.3.2.2 Excitation de l'état $70p_{3/2}$ en fonction de la densité	155
	Limitation de l'excitation en champ nul	156
	Excitation en champ électrique	158
	Contribution possible des ions	158
	Remarque : Résonances de Förster pour les états de grand n	160
	Conclusion	161
	4.3.2.3 Comparaison avec les états $np_{1/2}$	161
	Contrôle de l'excitation par champ électrique	161
	Comportement de l'excitation en fonction de la densité	162

	Rôle possible des ions	164
4.3.2.4	Conclusion	165
4.3.3	Modélisation du blocage dipolaire de l'excitation Rydberg	166
4.3.3.1	Système de deux atomes à deux niveaux	166
4.3.3.2	Système à N corps	169
	Analyse du système	170
	Hypothèse Hartree-Fock	172
	Approximation du champ tournant	173
	Approximation de champ local moyen	174
	Conclusion : probabilité d'excitation	177
	Remarque : au-delà de Hartree-Fock	178
	Remarque : Le problème de l'interaction Van der Waals	179
4.3.3.3	Premiers résultats	181
	Conclusion	184
4.4	Blocage dipolaire à résonance de Förster	186
4.4.1	Etudes comparées de différents n : Mise en évidence du blocage dipolaire	187
4.4.1.1	Blocage dipolaire pour la résonance de Förster de l'état $38p_{3/2}$	189
4.4.1.2	Décalages spectraux : signature de l'interaction moléculaire . .	190
4.4.1.3	Niveaux moléculaires à résonance de Förster	191
4.4.1.4	Résonances de Förster en champ électrique très faible	192
4.4.1.5	Formes de raie en champ électrique	195
	Elargissements en champ électrique	195
	Asymétrie des raies d'excitation en champ électrique	200
	Conclusion	200
4.4.2	Etudes en densité	201
	Problématique de la saturation par puissance	201
	Etude en densité des élargissements de raie en champ électrique .	204
4.4.3	Conclusion	205
4.4.4	Modélisation du blocage dipolaire à résonance de Förster	206
4.4.4.1	Blocage dipolaire pour l'excitation de deux atomes	206
4.4.5	Interprétation des phénomènes de collisions froides ionisantes à réso-	
	nance de Förster	209
4.4.5.1	Ionisation Penning	209
4.4.5.2	Observations expérimentales : Résonances d'ionisation Penning	210
4.4.5.3	Interprétation des résonances d'ionisation Penning	211
4.4.5.4	Conclusion : blocage de l'ionisation	213
4.4.6	Conclusion : blocage à résonance de Förster et perspectives	214
5	Excitation large bande d'un ensemble d'atomes froids de Rydberg : Analyse	
	par creusement spectral à résonance de Förster	215
5.1	Introduction	215
5.2	Schéma de désexcitation : spectroscopie par creusement spectral . .	218
5.3	Spectroscopie par creusement spectral du croisement évité à réso-	
	nance de Förster	222
5.3.1	Observation du transfert d'excitation à résonance de Förster	222
5.3.2	Décalage spectral observé par spectroscopie de creusement spectral et	
	cohérence de l'interaction dipôle-dipôle	224
5.3.2.1	Mise en évidence du décalage spectral	224

	Etude par creusement spectral après excitation PC	224
	Décalage spectral : étude par creusement spectral après excitation pulsée	226
	Dynamique et cohérence de l'interaction dipôle-dipôle	229
5.3.3	Interprétations : forces et environnement	230
	Détection et suivi adiabatique	230
	Mélange avec des états de n et l différents	233
	Forces dipolaires et migration de l'excitation	234
	Comparaison avec l'excitation continue haute résolution	235
	Remarque concernant la présence d'un décalage à l'excitation	235
5.4	Conclusion	237
6	Frontière entre gaz de Rydberg et Plasmas ultra-froids	239
6.1	Introduction : un nouveau champ d'études	239
6.2	Vers l'obtention d'un régime de fortes corrélations	243
6.2.1	Introduction	243
6.2.2	Mesure expérimentale de la température-Possibilité de refroidir le plasma	244
	Mesure de température	245
	Refroidissement du plasma : le glaçon de Rydberg	248
6.2.3	Conclusion	249
6.3	Evolution spontanée d'un gaz d'atomes froids de césium en un plasma ultra-froid	250
6.3.1	Introduction	250
	Scénario	250
	Rôle des collisions dans la formation de la charge d'espace	252
6.3.2	Collisions froides	254
6.3.2.1	Importance des forces dipolaires	254
6.3.2.2	Evolution temporelle du nombre d'ions	256
	Nombre d'ions à temps courts	256
	Evolution temporelle	258
6.3.2.3	Conclusion : formation du plasma	259
6.4	Conclusion	259
	Conclusion générale	261
A	Interaction dipôle-dipôle	265
A.1	Introduction	265
A.2	Analyse tensorielle de l'interaction dipôle-dipôle	265
A.3	Interaction dipôle-dipôle en champ électrique	267
A.4	Interaction dipôle-dipôle à résonance de Förster	269
B	Distributions spatiales de champ électrique	271
B.1	Introduction	271
B.2	Distribution spatiale du champ électrique après explosion coulombienne	271
B.3	Photoionisation par un laser continu	272

Introduction générale

Les atomes de Rydberg froids permettent de réaliser des systèmes physiques très riches, dont les propriétés proviennent souvent des forces à très longue distance. Ils offrent beaucoup d'espoir pour la réalisation de systèmes quantiques bien contrôlés, avec l'exemple des atomes de Rydberg en cavité [Brune et al., 1996, Rauschenbeutel et al., 1999]. La principale motivation de cette thèse a été l'étude du blocage dipolaire, dont l'application à l'information quantique pour réaliser des portes quantiques à partir d'atomes froids est très prometteuse [Jaksch et al., 2000, Lukin et al., 2001].

La physique de la matière froide a connu un développement rapide après la mise au point des techniques de refroidissement laser et de piégeage d'atomes. Les propriétés collisionnelles des gaz d'atomes froids sont tout à fait originales à très basses températures car les paramètres d'impact et les temps caractéristiques de collision sont considérablement augmentés. On dit souvent que les collisions sont au coeur de la physique des atomes froids. Des études passionnantes ont soulevé leur rôle très important avec des effets parfois "parasites", dans le cas des collisions inélastiques avec changement de structure fine, ou au contraire essentiels avec le rôle joué par les collisions élastiques nécessaires au refroidissement évaporatif qui permet d'atteindre la condensation de Bose-Einstein d'un gaz d'atomes froids.

Cette thèse relève plus généralement du sujet des collisions froides, notamment des collisions et des interactions entre atomes froids à très longue portée correspondant à des interactions de type dipôle-dipôle. Ce type d'interaction est présent dans plusieurs exemples physiques. Un premier exemple est donné par la photoassociation d'atomes froids. Une paire d'atomes en collision, initialement dans l'état fondamental se retrouve après absorption d'un photon dans un état de vibration d'un potentiel électroniquement excité de la molécule formée par les deux atomes. Dans le cas d'une seule espèce d'atomes froids, l'efficacité de la photoassociation est importante car les potentiels atteignables par photoassociation ont un comportement en $-1/R^3$ dû à l'interaction dipôle-dipôle à longue distance. Des niveaux de vibration excités présentent ainsi de grandes élongations (point tournant classique à plus de 100 unités atomiques). La figure 1 présente le cas du césium avec un potentiel fondamental relié à la limite asymptotique $|6s\rangle \otimes |6s\rangle$ et un potentiel moléculaire excité relié à la limite asymptotique $|6s\rangle \otimes |6p\rangle$. L'interaction dipôle-dipôle entre les deux atomes est responsable de l'existence de la variation lente en $1/R^3$ du potentiel moléculaire excité à longue distance internucléaire (R) mais aussi d'une structure de double puits qui apparaît lorsqu'on prend en compte le couplage fin pour les potentiels électroniques 1_u et 0_g^- sous la limite $|6s_{1/2}\rangle \otimes |6p_{3/2}\rangle$. La photoassociation vers les niveaux de vibration du puits externe de ces potentiels a offert la possibilité de former des molécules stables par désexcitation spontanée depuis l'état photoassocié. La partie interne du puits externe varie aussi lentement suivant une loi en $1/R^3$, ce qui a pour conséquence l'existence d'un point de Condon à distance intermédiaire permettant la désexcitation spontanée vers des niveaux liés de l'état fondamental. Cet aspect n'est pas davantage développé, mais l'interaction dipôle-dipôle joue un rôle important dans de nombreuses

configurations de photoassociation et de formation de molécules froides.

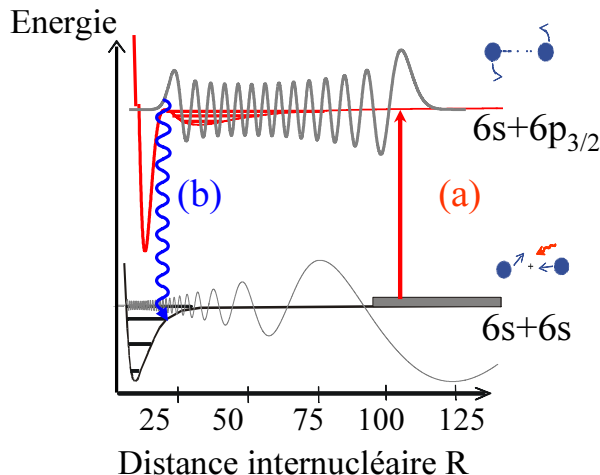
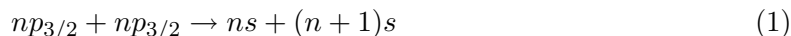


FIG. 1 – Schéma décrivant la photoassociation (a) d'une paire d'atomes de césium en collision formant ainsi une molécule électroniquement excitée. Celle-ci peut se désexciter spontanément (b) vers un état lié stable du potentiel fondamental.

Un deuxième exemple est donné par la physique des atomes de Rydberg où là encore l'interaction dipôle-dipôle joue un rôle primordial. Les états de Rydberg présentent en effet une très forte polarisabilité qui conduit dans certaines configurations à des interactions entre atomes à très longue portée, typiquement plusieurs micromètres. Comme nous le verrons, les propriétés des atomes de Rydberg froids placent la physique des atomes de Rydberg à l'intersection de plusieurs autres disciplines de la physique : physique atomique et moléculaire, physique de l'état solide ou encore physique des plasmas.

Au démarrage de cette thèse, un certain nombre de résultats avaient été obtenus dans la thématique des atomes de Rydberg froids. Au Laboratoire Aimé Cotton par exemple, une première expérience avait concerné l'étude des transferts résonants d'excitation. Pour la plupart des alcalins, le niveau d'énergie d'énergie $|np_{3/2}\rangle$ se situe en énergie très proche de la position médiane entre les niveaux $|ns\rangle$ et $|(n+1)s\rangle$. Dans le cas du césium (cf Fig. 2), l'ajout d'un petit champ électrique permet de positionner le niveau $|np_{3/2}\rangle$ exactement à mi-chemin entre les niveaux $|ns\rangle$ et $|(n+1)s\rangle$ pour $n < 42$. Si on considère deux atomes de Rydberg, le diagramme de la figure 3 montre l'évolution de l'énergie d'une paire d'atomes dans les états $|np_{3/2}\rangle \otimes |np_{3/2}\rangle$ et $|ns\rangle \otimes |(n+1)s\rangle$, dont les niveaux d'énergie se croisent pour une valeur du champ électrique F_0 . Les états de paire $|np_{3/2}\rangle \otimes |np_{3/2}\rangle$ et $|ns\rangle \otimes |(n+1)s\rangle$ sont fortement couplés par l'interaction dipôle-dipôle pour un champ électrique proche de F_0 avec un couplage de la forme $\frac{\mu_{sp}\mu_{s'p}}{R^3}$ où μ_{sp} et $\mu_{s'p}$ sont les moments dipolaires des transitions $ns \rightarrow np_{3/2}$ et $(n+1)s \rightarrow np_{3/2}$ respectivement et R est la distance internucléaire entre les deux atomes. Pour une paire d'atomes initialement dans l'état $|np_{3/2}\rangle \otimes |np_{3/2}\rangle$, on a la réaction :



De telles réactions conduisent à des transferts résonants d'excitation relativement efficaces au cours de collisions binaires dans des jets thermiques [Safinya et al., 1981]. Lorsque l'on considère des atomes de Rydberg froids, on montre qu'à l'échelle temporelle de l'expérience,

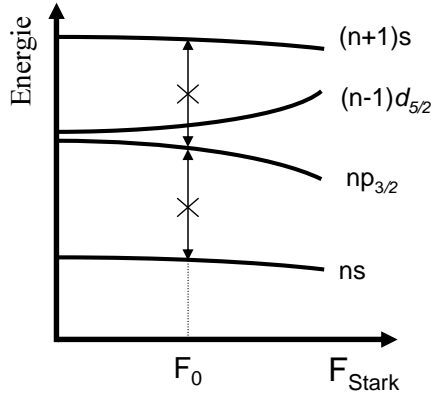


FIG. 2 – Schéma des niveaux d'énergie $np_{3/2}$, $(n-1)d_{5/2}$, ns et $(n+1)s$ en champ électrique. Seules les courbes avec $|m_j| = 1/2$ sont dessinées. La résonance (1) est obtenue pour un champ électrique F_0 tel que le niveau Stark $np_{3/2}$ soit situé exactement à mi-chemin entre les niveaux ns et $(n+1)s$.

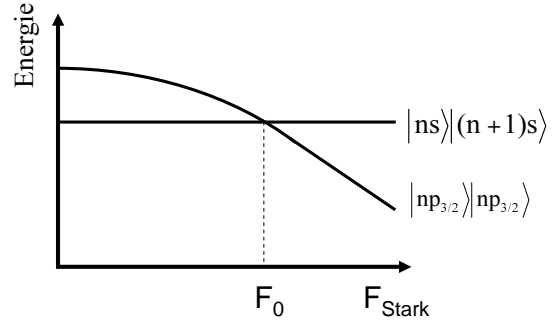


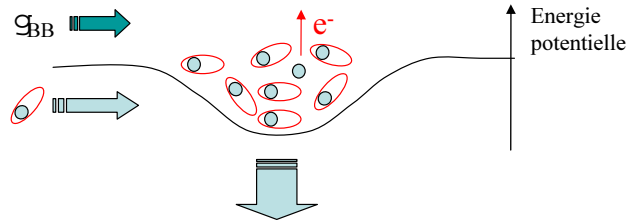
FIG. 3 – Diagramme d'énergie Stark des états moléculaires aux asymptotes $|np\rangle|np\rangle$ et $|ns\rangle|(n+1)s\rangle$. La valeur du champ électrique F_0 permet de mettre à résonance la réaction de transfert d'énergie (1).

limitée à quelques microsecondes par la durée de vie des atomes de Rydberg, les atomes peuvent être considérés comme quasi immobiles. Le déplacement des atomes d'un gaz de Rydberg à une température de quelques $100 \mu\text{K}$ n'est en effet que de l'ordre de 100 nm , à comparer aux distances internucléaires, quelques micromètres. Ce gaz de Rydberg est gelé. Dans ce cas, des transferts relativement importants sont reportés lorsque les deux niveaux $|np_{3/2}\rangle|np_{3/2}\rangle$ et $|ns\rangle|(n+1)s\rangle$ sont résonants [Mourachko et al., 1998, Anderson et al., 1998]. Un résultat intéressant est que le processus de transfert de l'excitation reste efficace pour de larges variations du champ électrique et donc lorsque les deux niveaux $|np_{3/2}\rangle|np_{3/2}\rangle$ et $|ns\rangle|(n+1)s\rangle$ sont fortement hors-résonance. On verra que ce résultat est lié au couplage dipôle-dipôle de chacun des deux atomes en interaction avec l'ensemble des autres atomes de l'environnement. Ces couplages dipôle-dipôle sont entre autres les réactions d'échange d'excitation électronique $|ns\rangle|np_{3/2}\rangle \rightarrow |np_{3/2}\rangle|ns\rangle$ et $|(n+1)s\rangle|np_{3/2}\rangle \rightarrow |np_{3/2}\rangle|(n+1)s\rangle$: les produits de la réaction (1) pour une paire d'atomes proches interagissant fortement et sont rapidement disséminés dans l'environnement des autres atomes $|np_{3/2}\rangle$. Ce processus est typique d'une diffusion et conduit à augmenter rapidement de façon importante le transfert d'excitation vers les états $|ns\rangle$ et $|(n+1)s\rangle$.

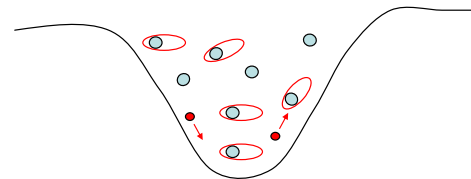
Un autre point intéressant concernait l'interface entre gaz de Rydberg et plasmas ultra-froids. Un plasma ultra-froid peut être réalisé par photoionisation d'un nuage d'atomes froids. Une telle expérience réalisée pour la première fois au NIST a permis de caractériser les propriétés de ce nouveau type de plasma [Killian et al., 1999]. En 2000, il avait été montré, au laboratoire en collaboration avec l'Université de Virginie qu'un gaz dense d'atomes de Rydberg froids peut évoluer spontanément vers un plasma ultra-froid [Robinson et al., 2000]. Le mécanisme de la réaction est complexe et reproduit Fig. 4. Au départ, un certain nombre d'atomes de Rydberg sont ionisés par différents mécanismes tels que la photoionisation par le rayonnement du corps noir, les collisions avec les atomes de Rydberg chauds ou les collisions froides. Le nombre d'ions augmente, et lorsque la charge d'espace devient suffisante pour piéger les électrons libres, ceux-ci collisionnent alors avec les autres atomes de Rydberg,

conduisant à une ionisation rapide en avalanche de l'ensemble du nuage d'atomes de Rydberg et à la formation d'un plasma ultra-froid quasi neutre.

Ionisation spontanée



Piégeage des électrons dans la charge d'espace



Expansion

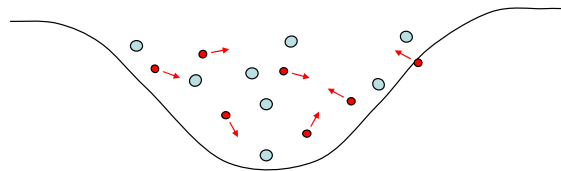


FIG. 4 – Schéma décrivant l'évolution spontanée d'un gaz d'atomes de Rydberg vers un plasma ultra-froid. Trois étapes d'évolution peuvent être distinguées. Dans un premier temps se forme une charge d'espace par photoionisation de quelques atomes par le rayonnement du corps noir, collisions avec les atomes chauds et collisions froides. Lorsque le nombre d'ions devient suffisant pour piéger quelques électrons, un phénomène d'ionisation par avalanche survient, conduisant à la formation d'un plasma quasi-neutre. Enfin, le plasma ainsi formé subit une expansion naturelle en raison de la diffusion et de la répulsion coulombienne initiale.

Lorsque cette thèse a commencé, le montage expérimental sur lequel nous allons travailler avait été modifié de manière à focaliser sur l'échantillon d'atomes froids un laser à CO_2 avec l'objectif de parvenir au piégeage dipolaire d'atomes et molécules froids. Une première partie de cette thèse a ainsi été consacrée à l'étude des molécules froides formées via photoassociation à l'intérieur du piège dipolaire atomique et à leur piégeage. Ce dispositif de piège dipolaire utilisant un laser CO_2 mis en place a permis de piéger un nombre important de molécules. Nous avons pu caractériser des phénomènes de collisions atomes-atomes et atomes-molécules. Bien que la durée de vie du piège, de l'ordre de la seconde pour les molécules, soit un peu limitée, nous avons pu montrer que des collisions molécules-molécules étaient aussi présentes dans ces expériences. Les résultats obtenus ont fait l'objet d'une étude détaillée dans la thèse de Nassim Zahzam. On retrouvera en annexe B.3 la lettre [Zahzam et al., 2006] dans laquelle ils ont été publiés.

Le travail de ma thèse a davantage porté sur l'étude des atomes de Rydberg froids, réalisée

sur le même montage expérimental. Il se situe dans le prolongement des différentes études effectuées sur ce thème au Laboratoire Aimé Cotton, mais avec l'introduction d'une excitation d'atomes de Rydberg à haute résolution avec des lasers continus. Ces expériences ont emprunté deux voies différentes. La première approche concerne l'étude d'une assemblée d'atomes de Rydberg excités de manière impulsionnelle (temps de l'excitation ~ 9 ns) à l'aide d'un laser colorant large bande pompé par un laser Nd:YAG. Avec un champ électrique, on se place dans des conditions où la réaction de transfert d'énergie (1) citée plus haut, est maintenue soit à quasi-résonance soit hors résonance. Le but de l'expérience était de réaliser une spectroscopie des atomes de Rydberg à l'aide d'une technique de désexcitation stimulée ou "dépompage" du niveau de Rydberg $np_{3/2}$ vers le niveau $7s$ en utilisant un laser Ti:Sa continu offrant une résolution de l'ordre de 1 MHz. L'idée initiale était d'analyser la largeur de raie de dépompage ainsi obtenue au voisinage de la résonance. Cette spectroscopie de dépompage s'est avérée mal adaptée à cette étude pour des raisons sur lesquelles nous reviendrons, mais a apporté un résultat inattendu relié aux problèmes de décohérence d'un ensemble mésoscopique d'atomes de Rydberg. En effet, non seulement le dépompage des atomes de Rydberg $np_{3/2}$ a pu être observé mais dans certaines conditions également celui des atomes ns et $(n+1)s$, apportant la preuve de la réversibilité de la réaction (1). Dans le nuage d'atomes froids excités initialement dans l'état $np_{3/2}$, considéré en première approximation comme un ensemble de paires d'atomes proches dans l'état $|np_{3/2}\rangle \otimes |np_{3/2}\rangle$, la probabilité qu'une paire d'atomes retourne dans l'état $|np_{3/2}\rangle \otimes |np_{3/2}\rangle$ après qu'elle est passée dans l'état $|ns\rangle \otimes |(n+1)s\rangle$ a été mesurée en fonction du temps, permettant une mesure de la cohérence du système. Une perte de cohérence rapide a été observée, confirmant d'autres résultats obtenus par interférence de Ramsey [Anderson et al., 2002]. Cette décohérence a pour origine notamment l'interaction de chaque paire d'atomes avec l'ensemble des autres atomes.

La deuxième approche concerne la démonstration du blocage dipolaire de l'excitation. Si on considère deux atomes proches, l'excitation d'un premier atome dans un état de Rydberg empêche l'excitation du second atome dont la résonance est déplacée en énergie par l'interaction dipôle-dipôle entre les atomes de Rydberg : c'est la définition du blocage dipolaire. L'observation du blocage dipolaire nécessite une excitation dont la largeur spectrale $\Delta\nu_L$ est inférieure au déplacement d'énergie dipôle-dipôle V_{dd} . L'interaction dipôle-dipôle permet ainsi un contrôle très fin de l'excitation de deux atomes, qui peut s'avérer très efficace dans la réalisation de portes quantiques. Pour un ensemble d'atomes de Rydberg, l'effet du blocage dipolaire va être de limiter l'excitation à partir du moment où la densité d'atomes de Rydberg excités devient telle que le couplage dipôle-dipôle $V_{dd}(R_d) \propto \frac{1}{R_d^3}$, entre deux atomes séparés par une distance égale à l'espacement internucléaire moyen R_d , vérifie $V_{dd}(R_d) \sim \Delta\nu_L$, i. e. que le décalage dipôle-dipôle devient supérieur à la résolution spectrale de l'excitation. L'interaction dipôle-dipôle permettrait de cette façon le contrôle très fin de l'excitation de systèmes atomiques. Nous l'avons démontré dans deux situations différentes. Dans l'une, nous avons utilisé la possibilité d'obtenir une interaction dipôle-dipôle résonante et forte dans le processus de transfert résonant (1). Dans l'autre, nous avons utilisé la possibilité de polariser les atomes de Rydberg par un champ électrique externe. Ils possèdent alors chacun un moment dipolaire permanent très grand. Dans ces deux cas, le blocage dipolaire a pu être mis en évidence.

Toutes ces études ont été motivées par un souci de compréhension et de contrôle de l'interaction dipôle-dipôle. Elles nous ont aussi amenés à étudier l'effet des forces dipolaires qui apparaissent dans les gaz de Rydberg gelés. Les forces dérivant de l'interaction dipôle-dipôle, dites forces dipolaires, ont été identifiées en 1999 [Fioretti et al., 1999] et contrôlées par excitation de paires d'atomes avec des forces mutuelles attractives ou répulsives. A l'origine de collisions froides entre atomes de Rydberg, elles sont susceptibles de conduire à des processus

d'ionisation Penning pouvant être à l'origine de l'évolution d'un gaz de Rydberg froid en un plasma froid. Dans ce processus, deux atomes s'approchent suffisamment sous l'effet des forces dipolaires pour qu'une transition autoionisante ait lieu, dans laquelle un des atomes est ionisé, l'autre étant porté dans un état de Rydberg profond. L'apparition des ions crée une charge d'espace inhomogène pouvant perturber la forme des raies et pouvant constituer un obstacle pour la mise en évidence du blocage dipolaire. Le rôle des ions dans les formes des raies a aussi été abordé dans ce travail.

Ce mémoire de thèse s'articule comme suit. Le chapitre 1 introduit les propriétés des atomes de Rydberg, leur spécificité dans la physique des atomes froids et leur intérêt pour l'information quantique. Le chapitre 2 décrit le montage expérimental et plus particulièrement l'excitation laser à haute résolution d'atomes froids vers des états de Rydberg. Le chapitre 3 décrit une étude systématique des formes de raie d'excitation d'états de Rydberg en présence d'ions provenant de processus de photoionisation parasite par les différents lasers d'excitation. Le chapitre 4 rapporte deux résultats importants obtenus au cours de cette thèse, à savoir la démonstration du blocage dipolaire de l'excitation en champ électrique et à résonance de Förster. Le chapitre 5 développe l'étude des propriétés de cohérence de l'interaction dipôle-dipôle à résonance de Förster en analysant la possibilité de réversibilité de la réaction de transfert (1). Enfin, le chapitre 6 est dévolu aux études concernant les plasmas ultra-froids. Nous étudierons les processus d'ignition de l'ionisation spontanée d'un gaz de Rydberg en un plasma froid. Nous aborderons également la possibilité du refroidissement d'un plasma en y introduisant des atomes de Rydberg susceptibles de collisionner avec les électrons libres du plasma.

Chapitre 1

Atomes de Rydberg : Introduction et exemple d'une application pour l'information quantique via le blocage dipolaire

1.1 Introduction

Les états de Rydberg d'un atome sont les états excités de grand nombre quantique principal n . Un atome excité dans un état de Rydberg est très souvent dénommé atome de Rydberg [Gallagher, 1994]. Toutes les références historiques ne sont pas toutes données dans cette introduction, elles peuvent être retrouvées dans l'ouvrage [Gallagher, 1994]. La spectroscopie des états de Rydberg à la fin du XIXe siècle a joué un rôle pionnier dans la genèse de la mécanique quantique. Ainsi en est-il de l'observation des séries de Balmer dans le spectre visible de l'atome d'hydrogène en 1885, de l'établissement par Rydberg en 1890 de formules empiriques pour décrire les spectres atomiques et du modèle proposé en 1913 par Niels Bohr pour interpréter le spectre de l'hydrogène.

L'éloignement important de l'électron de valence par rapport au coeur ionique confère aux atomes de Rydberg des propriétés d'interactions et de collisions exagérées et originales. De part leur grande taille $\sim 2n^2a_0$ (point tournant externe pour l'atome d'hydrogène) et leur très grande polarisabilité, les atomes de Rydberg peuvent posséder de très grands dipôles et l'interaction dipôle-dipôle joue ainsi un rôle important dans les collisions entre atomes de Rydberg. Les propriétés intrinsèques des états de Rydberg ont été étudiées à partir des années 70, en jets atomiques notamment, grâce à l'avènement du laser permettant d'exciter sélectivement les différents niveaux Rydberg. On citera les études en champ externe, électrique, magnétique et microonde permettant, par une véritable loi d'échelle, de faire correspondre les propriétés d'atomes de Rydberg placés dans des champs relativement faibles avec les propriétés d'atomes dans leur état fondamental ou peu excités en présence de champs externes extrêmes pouvant exister au voisinage d'une étoile par exemple. Un des intérêts des atomes de Rydberg tient à leur place privilégiée au sein de la physique des plasmas avec des processus comme les recombinaisons ions-électrons avec formation d'atomes de Rydberg ou encore l'ionisation d'atomes de Rydberg, radiative ou par collisions. La composition des plasmas stellaires peut ainsi être déterminée par la présence de raies Rydberg spécifiques, notamment dans le domaine des radiofréquences pour des transitions entre états de Rydberg voisins. Les

élargissements spectraux de raies d'émission dans le domaine du visible provenant de la désexcitation d'atomes de Rydberg plongés dans un plasma sont des indicateurs des densités d'ions et électrons du plasma [Griem, 1974]. L'importance des atomes de Rydberg en astrophysique a motivé en partie les nombreuses études collisionnelles qui ont été développées en parallèle. Un grand nombre d'exemples peuvent être donnés : collisions avec changement de moment cinétique orbital (collisions avec l -mixing) [Chapelet et al., 1982], collisions avec changement de nombre quantique principal n , collisions avec attachement d'un électron provenant d'un atome de Rydberg et formation d'un ion négatif, ionisation associative, ionisation Penning [Barbier and Cheret, 1987], collisions avec transfert d'énergie interne, assistées radiativement [Pillet et al., 1987] ou résonantes [Safinya et al., 1981]. L'interaction dipôle-dipôle joue souvent un rôle important dans ces collisions. Dans des nuages denses d'atomes de Rydberg, elle peut être responsable d'élargissements importants des raies d'excitation à forte puissance [Raimond et al., 1981] : les niveaux d'énergie d'une paire d'atomes dans un état de Rydberg sont déplacés par interaction dipôle-dipôle, ce qui favorise des transitions à deux photons hors résonance depuis l'état fondamental.

Récemment, le refroidissement laser et le piégeage ont ouvert de nouvelles perspectives avec la réalisation d'atomes de Rydberg froids. Les nuages d'atomes de Rydberg sont obtenus après excitation laser d'atomes en piège magnéto-optique. Ils possèdent des densités pouvant approcher $10^7 - 10^{10}$ at/cm⁻³ et la température est celle des atomes avant l'excitation, de l'ordre de 100 μ K. Pendant les quelques microsecondes que dure l'expérience (limitée principalement par la durée de vie des états de Rydberg), les déplacements induits par la distribution thermique des atomes sont au maximum de quelques centaines de nanomètres, petits en comparaison de la distance moyenne entre atomes de Rydberg, typiquement $\sim 3 - 29$ μ m. On peut donc négliger le mouvement des atomes et considérer le gaz d'atomes comme un gaz de Rydberg gelé.

Ces gaz gelés d'atomes en interaction s'apparentent par bien des aspects de leurs propriétés à des solides amorphes. Dans un tel gaz de Rydberg, le couplage dipôle-dipôle peut être de plusieurs MHz pour ces distances internucléaires. Dans l'expérience du transfert résonant d'énergie interne $np + np \rightarrow ns + (n + 1)s$, les réactions de migration des produits ns et $(n + 1)s$ de cette réaction dans l'environnement np des atomes, à savoir les réactions $ns + np \rightarrow np + ns$ et $ns + np \rightarrow np + (n + 1)s$, conduisent à des phénomènes de diffusion de l'excitation proches de la diffusion des spins dans le verre [Anderson et al., 1998, Mourachko et al., 1998, Merkle and Powell, 1979]. L'image d'un gaz figé d'atomes en interaction est cependant limitée par le fait que l'interaction dipôle-dipôle s'accompagne de forces dipolaires importantes [Fioretti et al., 1999] pouvant conduire à un phénomène d'ionisation Penning après plusieurs microsecondes. Nous reviendrons sur leur importance en particulier lors de l'étude de la transition d'un gaz de Rydberg vers un plasma (cf chap. 6).

L'intense activité qui anime le domaine des atomes de Rydberg froids provient aussi de la proposition d'intriquer les états quantiques de deux atomes à 2 niveaux, chacun étant considéré comme un qubit. La possibilité serait donnée à terme de réaliser des portes quantiques à deux qubits, en contrôlant l'interaction dipôle-dipôle entre deux atomes "à travers" une excitation vers un état de Rydberg [Jaksch et al., 2000]. En particulier, l'utilisation du blocage dipolaire de l'excitation doit rendre possible la réalisation expérimentale d'une telle porte [Lukin et al., 2001]. Dans un volume suffisamment petit, l'excitation laser d'un premier atome vers un état de Rydberg peut déplacer le niveau de Rydberg par interaction dipôle-dipôle pour chacun des atomes l'environnant et empêcher l'excitation laser d'un deuxième atome. Dans cette thèse, nous considérons un ensemble plus large d'atomes. L'interaction dipôle-dipôle

amène alors à une limitation du nombre d'atomes excités due à un blocage dipolaire local de l'excitation. Récemment, les expériences [Tong et al., 2004, Liebisch et al., 2005] ont mis en évidence une saturation de l'excitation d'états de Rydberg élevés à cause de l'interaction Van der Waals $\propto -C_6/R^6$, mais aucune expérience n'avait démontré l'effet du blocage dipolaire avant celle que nous avons effectuée à résonance de Förster [Vogt et al., 2006].

Ce chapitre présente d'abord les propriétés physiques des atomes de Rydberg. Il est rappelé que les atomes de Rydberg ont de façon générale des caractéristiques proches de celles des atomes de Rydberg de l'hydrogène du fait du fort éloignement de l'électron de valence par rapport au coeur ionique. Une différence importante et faisant l'attrait des atomes alcalins lourds provient des effets de coeur lorsque le moment cinétique de l'électron est petit, ce qui a conduit au développement de la théorie du défaut quantique. Nous rappelons ensuite les aspects de l'interaction des atomes de Rydberg avec un champ électrique. Puis nous caractérisons l'interaction dipôle-dipôle entre atomes de Rydberg. Différents schémas pouvant permettre ou ayant permis l'observation du blocage dipolaire sont répertoriés : en champ électrique statique, à résonance de Förster ou encore dans des situations où les atomes sont excités dans des états n, l différents. Un accent est mis sur l'historique des études concernant le processus de transfert résonant d'énergie, les analogies fortes existant entre le transfert résonant d'énergie dans les atomes de Rydberg et le procédé Förster dans la physique moléculaire notamment. Enfin, nous présentons les propositions d'utilisation de l'interaction dipôle-dipôle pour faire interagir des atomes excités dans des états de Rydberg pour la réalisation de portes quantiques.

1.2 Propriétés générales des atomes de Rydberg

La description exacte des niveaux d'énergie et des propriétés atomiques est en principe un problème à N électrons, souvent non résolu exactement. Les méthodes d'approximation peinent à décrire des systèmes très excités, notamment s'il est nécessaire de prendre en compte les corrélations électrons-électrons lorsque plus d'un électron est excité. Ceci reste un travail d'actualité comme en témoignent les derniers développements sur la TDDFT (time dependant density functional theory) pour calculer correctement les probabilités de double ionisation de l'atome d'hélium en présence de lasers intenses [Wilken and Bauer, 2006].

Pour retrouver les niveaux d'énergie et fonctions d'onde atomiques, l'électron de valence peut souvent être séparé du reste du système (ceci est très bien vérifié pour les métaux alcalins), les autres électrons écrantant la charge du noyau : le potentiel vu par cet électron est interprété comme un potentiel moyen ou effectif $V_{pot.eff}$, dû aux autres électrons et au noyau. L'établissement du potentiel effectif ne fait pas l'objet de cette introduction à la physique des atomes de Rydberg. Différentes méthodes existent, telle la théorie semi-classique de Thomas-Fermi, la méthode variationnelle d'Hartree-Fock ou encore la théorie de la fonctionnelle de la densité (un résumé de ces différentes méthodes peut être trouvé au chapitre 2 de la référence [Friedrich, 1998]).

Pour un atome de Rydberg (non forcément alcalin), l'électron externe reste essentiellement éloigné des autres particules chargées et voit donc un potentiel très proche d'un potentiel coulombien. En première approximation, les états de Rydberg apparaissent comme de simples états hydrogéniques excités pour lesquels les énergies et les fonctions d'onde sont connues.

La théorie du défaut quantique permet de prendre en compte les effets de coeur, notamment pour les atomes lourds comme le césium [Bates and Daamgard, 1949, Seaton, 1983]. Il est possible pour les atomes de Rydberg alcalins d'effectuer l'approximation de Coulomb [Bates and Daamgard, 1949] consistant à ne considérer dans les calculs de moments dipolaires de transition que les distances supérieures à une distance de coupure r_0 par rapport au coeur ionique, la fonction d'onde électronique à grandes distances étant une combinaison linéaire de fonctions régulières et irrégulières solutions de l'équation de Schrödinger pour le potentiel Coulombien. L'utilisation des données d'énergie expérimentales permet de déterminer complètement cette fonction d'onde à longues distances grâce aux défauts quantiques. Le calcul correct des éléments de matrice dipolaire de transition est important pour décrire l'effet des champs électriques sur les atomes de Rydberg, ces champs électriques étant une composante essentielle à la fois pour l'excitation, la détection par ionisation et la manipulation des niveaux d'énergie par effet Stark.

Dans cette section, nous rappelons d'abord le calcul des fonctions d'onde et niveaux d'énergie pour l'atome de césium. Ensuite, le cas spécifique des états de Rydberg du césium est décrit dans le cadre de la théorie du défaut quantique. Puis nous abordons le calcul des éléments de matrice dipolaire dans l'approximation de Coulomb, essentiels pour décrire les interactions avec les champs électriques, ce qui nous permet notamment de déterminer les durées de vie des niveaux atomiques. Enfin, nous décrivons le comportement des atomes de Rydberg en champs électriques.

1.2.1 Niveaux d'énergie et fonctions d'onde du césium

1.2.1.1 Atome hydrogénoïde

Commençons par la description de l'atome hydrogénoïde, sans corrections relativiste. L'équation de Schrödinger s'écrit, en unités atomiques (u. a.) :

$$\left(-\frac{\nabla_{\vec{r}}^2}{2\mu_e} - \frac{Z}{r}\right)\psi = E\psi \quad (1.1)$$

Dans cette équation, le mouvement du centre de masse a été découplé du mouvement relatif, Z est la charge du coeur ionique, $\mu_e = \frac{m_e m_N}{m_e + m_N}$ est la masse réduite, $\mu_e \approx m_e$ (=1 en u.a.) si on néglige la masse de l'électron m_e par rapport à celle du coeur m_N , $\vec{r} = (r, \theta, \phi)$ est la coordonnée de la particule relative par rapport au centre de masse.

Cette solution admet une infinité d'états propres liés d'énergies $E(n) = \frac{-Z}{2a_{\mu_e} n^2}$ ($a_{\mu_e} = \frac{m_e}{\mu_e}$ est le rayon de Bohr ($a_0 = 1$ en u. a.) modifié, tenant compte de la masse finie du coeur). Les fonctions d'onde associées forment une base $|nlm_l\rangle$ de l'espace des états : n , l et m_l constituent un jeu de "bons" nombres quantiques, ces deux derniers étant associés au moment cinétique orbital de l'électron. Ces fonctions sont le produit d'une solution angulaire et d'une solution radiale :

$$\psi_{nlm}(\vec{r}) = \frac{u_{nl}(r)}{r} Y_{lm}(\theta, \phi) \quad (1.2)$$

Elles peuvent être trouvées par exemple dans l'ouvrage [Bethe and Salpeter, 1957].

1.2.1.2 Les atomes alcalins : le Césium

Atomes à plusieurs électrons

Nous utilisons ici l'image du potentiel d'interaction effectif entre l'électron de valence et l'ensemble des autres charges. Elle est relativement bonne dans le cas des alcalins qui ne possèdent qu'un seul électron de valence et dont les énergies de liaison des autres électrons avec le coeur ionique sont beaucoup plus grandes que pour l'électron de valence.

Le potentiel effectif utilisé $V_{pot.eff.}(r)$ est à symétrie centrale mais il diffère du potentiel coulombien et la dégénérescence des niveaux d'énergie suivant la valeur de l est levée. Des potentiels modèles peuvent être utilisés pour reproduire les valeurs d'énergie expérimentales. Un exemple est le potentiel dont la forme a été proposé par Klapisch [Klapisch, 1971] :

$$V_{pot.eff.}(r) = -\frac{1 + (Z-1)e^{-\alpha_1 r} - r(\alpha_3 + \alpha_4 r)e^{-\alpha_2 r}}{r} - \frac{\alpha_c}{2r^4} [1 - e^{-(\frac{r}{r_c})^6}] \quad (1.3)$$

Les coefficients peuvent être trouvés dans [Marinescu et al., 1994] et peuvent être pris dépendant de l pour une plus grande précision. Nous retrouvons bien que ce potentiel est équivalent au potentiel coulombien à grandes distances. L'équation aux valeurs propres (1.1) devient alors :

$$\left(-\frac{\nabla_{\vec{r}}^2}{2\mu_e} + V_{pot.eff.}(r)\right)\psi = E\psi \quad (1.4)$$

Les nouveaux niveaux d'énergie peuvent être mis sous la forme :

$$E(n, l) = \frac{-1}{2a_{\mu_e}(n - \delta_{nl})^2} \quad (1.5)$$

δ_{nl} s'appelle le défaut quantique par analogie avec la théorie du défaut quantique [Seaton, 1983] que nous abordons dans le paragraphe 1.2.2.2. On note en général $n^* = n - \delta_{nl}$ le nombre quantique principal effectif.

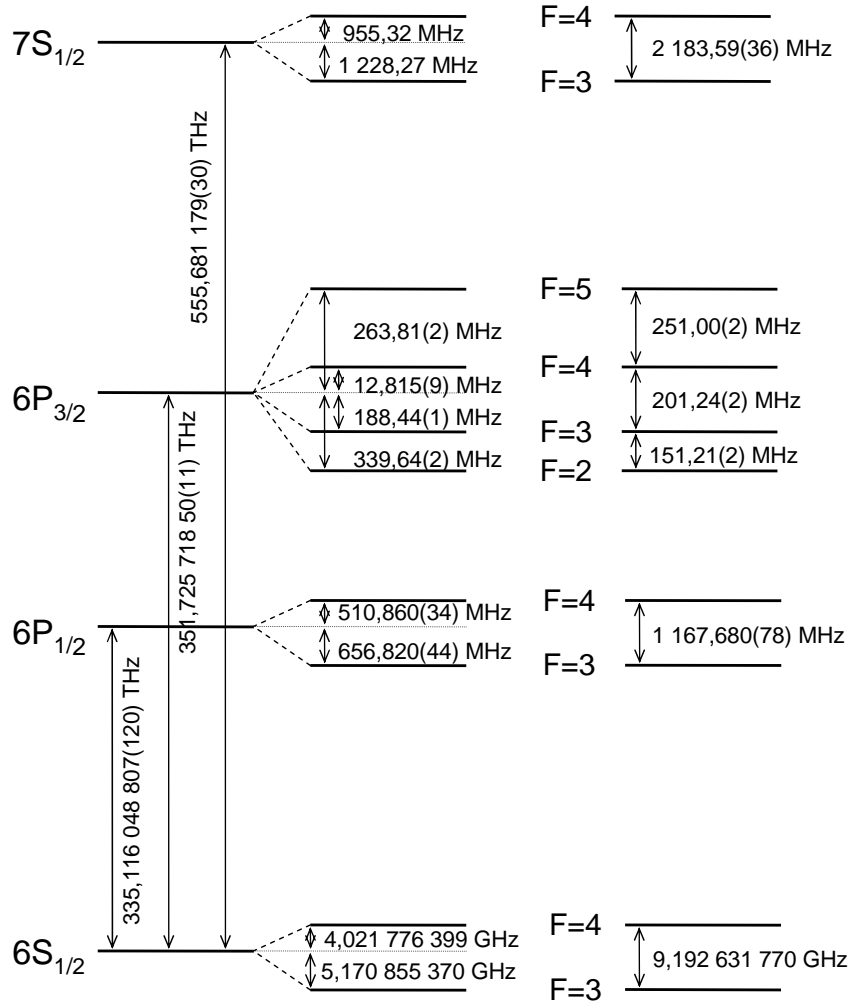


FIG. 1.1 – Schéma des premiers niveaux d'énergie du césium.

Premiers niveaux d'énergie du césium

Le césium est un alcalin lourd, à l'état naturel dans la configuration $^{133}_{55}\text{Cs}$. Il s'agit d'un isotope bosonique (spin électronique total $\vec{s} = 1/2$ et spin nucléaire $\vec{i} = 7/2$) avec 55 électrons dont un électron de valence sur l'orbitale 6s.

Dans l'équation (1.4), il est nécessaire de prendre aussi en compte les corrections relativistes de structure fine et de structure hyperfine. La structure fine provient du couplage spin-orbite, entre le spin électronique \vec{s} et le moment cinétique orbital \vec{l} , alors que la structure hyperfine provient du couplage entre le spin nucléaire du césium \vec{i} et le moment cinétique électronique total $\vec{j} = \vec{l} + \vec{s}$. Une nouvelle base de vecteurs propres est définie pour la structure fine $|nljM_j\rangle$, à partir de l'opérateur moment cinétique électronique total $\vec{j} = \vec{l} + \vec{s}$. On définit de même lorsqu'on rajoute la structure hyperfine une nouvelle base de vecteurs propres du hamiltonien total $|nlji f M_f\rangle$ à partir de l'opérateur moment cinétique total $\vec{f} = \vec{j} + \vec{i}$.

La structure électronique des premiers niveaux du césium est présentée sur la Fig. 1.1. Elle fait apparaître les premiers niveaux définis par l'équation (1.5), auxquels sont rajoutés

les corrections de structure fine puis de structure hyperfine.

On y reconnaît les deux transitions les plus brillantes du césium reliant l'état de structure fine $6s_{1/2}$ aux états $6p_{1/2}$ (raie D1) et $6p_{3/2}$ (raie D2), toutes deux dans l'infrarouge, de longueurs d'onde respectivement $\lambda=894.5930$ et $\lambda=852.3473$ nm. Ces deux transitions sont utilisées pour refroidir le césium. Pour plus de détails concernant ces transitions, on pourra consulter utilement la revue de Daniel Steck [Steck, 2004] et [Gilbert et al., 1983]. L'état $7s_{1/2}$ que nous avons utilisé comme état intermédiaire pour l'excitation Rydberg figure également sur ce schéma. La longueur d'onde de la transition $6p_{3/2}(f=5) \rightarrow 7s_{1/2}(F=4)$ est $\lambda=1469.8918(3)$ nm.

1.2.2 Les états de Rydberg du césium

1.2.2.1 Vision classique

Le mouvement classique de l'électron dans le champ coulombien créé par un noyau de charge Z (atome hydrogénoïde) décrit une ellipse d'excentricité $\sqrt{1 + \frac{2L^2 E}{\mu_e Z^2 e^4}}$. En remplaçant L^2 par $\hbar^2 l(l+1)$ et E par $E_{nl} \approx -\frac{Ze^2}{a_0 n^2}$, on trouve pour l'excentricité $exc \approx \sqrt{1 - \frac{l(l+1)}{n^2}}$. C'est à dire que si l est grand, l'orbite est quasi circulaire, l'électron reste à grande distance du noyau, au contraire du cas où l est faible, auquel cas l'électron décrit une orbite elliptique qui passe proche du coeur ionique. On distingue ainsi orbites pénétrantes et non pénétrantes.

Dans le cas d'un atome de Rydberg quelconque, on peut remplacer Z par Z_{eff} , la charge écrantée vue par l'électron de valence : si l est grand, cet électron voit principalement un potentiel coulombien ($Z_{eff} \approx 1$) : le défaut quantique dans la formule (1.5) est quasi-nul. Par contre, si l'orbitale est pénétrante ($Z_{eff} > 1$), l'électron s'approche du coeur et l'énergie de liaison est plus grande que celle donnée par l'approximation hydrogénoïde.

1.2.2.2 Théorie du défaut quantique

La théorie du défaut quantique permet de déterminer les fonctions d'onde à longues distances pour les états de Rydberg et d'exprimer les niveaux d'énergie simplement à partir des défauts quantiques. Cette méthode est très bien adaptée au problème des métaux alcalins car il n'est pas nécessaire de prendre en compte l'excitation possible d'un deuxième électron. Le cadre de la MQDT (théorie du défaut quantique à plusieurs voies) permet de résoudre le problème d'une deuxième excitation restant cependant faible, dans le cas notamment où l'atome possède plusieurs électrons de valence [Fano, 1970, Boulmer et al., 1987].

Pour un seul électron excité, la théorie du défaut quantique repose sur le fait que le potentiel effectif dans l'expression (1.4) est principalement coulombien pour une distance supérieure à r_0 . Pour $r > r_0$, la fonction d'onde est donc connue, elle est le produit d'une fonction angulaire et d'une fonction radiale, cette dernière pouvant s'exprimer à partir d'une combinaison de deux fonctions coulombiennes régulières et irrégulières f et g [Seaton, 1983, Gallagher, 1994] :

$$\psi_{nlm}(\vec{r}) = Y_{lm}(\theta, \phi) \frac{f_{nl}(r)\cos(\pi\delta_{nl}) - g_{nl}(r)\sin(\pi\delta_{nl})}{r} \quad (1.6)$$

La fonction d'onde doit satisfaire aux conditions de raccord en $r = r_0$ avec la fonction d'onde à courtes distances (continuité de la fonction et de sa dérivée). Ceci permet de déterminer le défaut quantique δ_{nl} . La fonction d'onde à courtes distances peut être évaluée numériquement à partir du potentiel effectif, par exemple par une méthode d'intégration de Numerov [Gallagher, 1994]. En général cependant, la fonction d'onde n'a pas besoin d'être

connue précisément à très courtes distances, et l'expression (1.6) utilisant les défauts quantiques expérimentaux permet de la connaître pour une distance $r > r_0$.

Pour des états relativement excités, une bonne approximation de la fonction d'onde est obtenue par une approche semi-classique WKB (voir le chapitre 3 de la référence [Friedrich, 1998]) :

$$u_{nl}(r) = \sqrt{\frac{2\omega}{\pi} \frac{\mu_e}{p(r)}} \cos\left(\frac{1}{\hbar} \int_{r_{int}}^r p(r') dr' - \frac{\pi}{4}\right) \quad (1.7)$$

où $\frac{1}{\hbar} \int_{r_{int}}^r p(r') dr' = \frac{1}{\hbar} \int_{r_{int}}^r \sqrt{2\mu_e(E - V'(r'))} dr'$ est la phase accumulée entre le point tournant interne r_{int} et r . $V(r')$ contient le potentiel effectif et le terme centrifuge $\frac{l(l+1)}{2\mu_e r'^2}$. On peut écrire $V(r')$ comme somme du potentiel coulombien et d'une correction $\Delta V_l(r')$. L'expression est donnée en unités SI.

δ_{nl} s'interprète ainsi facilement dans le traitement semi-classique comme la différence de phase accumulée entre les positions r et r_0 en présence et en l'absence de la perturbation $\Delta V_l(r')$: à l'extérieur de ce domaine, on a supposé le potentiel purement coulombien, les deux fonctions d'onde oscillent en phase mais sont déphasées de la quantité δ_{nl} :

$$\delta_{nl}(r) = \int_0^{r_0} dr' \frac{2\mu_e}{\pi \hbar} \left(\sqrt{E + \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r'} + \Delta V_l(r')} - \sqrt{E + \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r'}} \right) \quad (1.8)$$

En remarquant que $\Delta V_l(r)$ et E sont très petit devant $\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r}$ pour $r < r_0$ (l'énergie de liaison $-E$ est très faible à courte distance en comparaison de l'énergie cinétique de l'électron de l'ordre de $\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r}$), le défaut quantique est quasiment indépendant de l'énergie, il ne dépend quasiment que du moment cinétique orbital :

$$\delta_{nl}(r) \approx \delta_l(r) \approx \int_0^{r_0} dr' \frac{2\pi\epsilon_0 r' \mu_e}{\hbar e} \Delta V_l(r') \quad (1.9)$$

1.2.2.3 Expression des défauts quantiques-Inclusion de la structure fine

Une première correction sur la fonction d'onde à longue distance a été apportée par la prise en compte du potentiel effectif à courte distance. A cela, il faut rajouter la correction de structure fine.

Le principal terme de structure fine est donné par l'hamiltonien de spin-orbite (en unités atomiques) :

$$H^{(SO)} = \xi(r) \vec{l} \vec{s} = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{r} \frac{dV_{pot,eff}(r)}{dr} \right) \vec{l} \vec{s} \quad (1.10)$$

Pour un potentiel coulombien, le hamiltonien de spin-orbite varie en r^{-3} , il est donc important aux courtes distances (il influe sur le défaut quantique) mais très peu à longue distance, où l'approximation de Coulomb reste valable (pour plus de précision, le potentiel effectif peut être modifié pour dépendre de j . Au hamiltonien de spin-orbite doit aussi être rajouté le terme de Darwin n'affectant que les états s).

Pour l'atome d'hydrogène, l'écart de structure fine varie comme $1/(n^3 l(l+1))$ [Fabre and Haroche, 1983], de même que l'écart entre deux niveaux d'énergie consécutifs. Pour les orbites pénétrantes des atomes alcalins, l'écart de structure fine peut s'exprimer avec une série de termes en $\frac{1}{(n^*)^k}$, $k=3$ étant le terme dominant. Finalement, l'écart de structure fine

suivant approximativement l'écart d'énergie entre deux niveaux consécutifs ($\propto (n^*)^{-3}$ pour n très grand), le défaut quantique d'un état nlj peut être retrouvé par une expression simple, la formule de Ritz [Gallagher, 1994] :

$$\delta_{nlj} = \delta_0(lj) + \frac{\delta_2(lj)}{(n - \delta_0(lj))^2} + \dots \quad (1.11)$$

Les paramètres δ_0 et δ_2 pour l'atome de césium présentés ci-dessous ont été déterminés expérimentalement par spectroscopie microonde par [Goy et al., 1982]. La précision obtenue sur la détermination des énergies de liaison est de l'ordre du MHz (1-2 MHz pour $n \sim 40$).

Série	δ_0	δ_2
ns	4,049 325	0,246 2
$np_{1/2}$	3,591 556	0,371 4
$np_{3/2}$	3,559 058	0,374 0
$nd_{3/2}$	2,475 365	0,555 4
$nd_{5/2}$	2,466 210	0,067 0
$nf_{5/2}$	0,033 392	-0,191
$nf_{7/2}$	0,033 537	-0,191

Une meilleure précision est obtenue dans [Weber and Sansonetti, 1987] spécifiquement pour les états $ns_{1/2}$, $np_{1/2}$, $nd_{5/2}$, $nf_{5/2}$ et $ng_{7/2}$. Les niveaux d'énergie déterminés de cette manière dans [Weber and Sansonetti, 1987] sont valables quel que soit le niveau d'énergie (dès le niveau $6s$).

1.2.2.4 Structure hyperfine des atomes de Rydberg

Pour les niveaux de Rydberg, la structure hyperfine représente une correction faible en énergie, dont nous ne tenons pas compte en général, également décroissante en fonction de n avec une variation en $(n^*)^{-3}$.

Une étude expérimentale de la structure hyperfine du césium peut être trouvée dans [Farley et al., 1977], donnant des résultats en bon accord avec des calculs relativistes [Rosén and Lindgren, 1972]. La constante A_j de l'hamiltonien hyperfin (s'écrivant pour j fixé, $H_{hfs} = A_j \vec{I} \cdot \vec{J}$) est mesurée pour les états ns ($n = 6$ à 17), tandis que les rapports $A_{3/2}/A_{1/2}$ sont mesurés pour les états np . Par ailleurs, des mesures sont disponibles pour les états $np_{1/2}$ pour $n = 11 - 15$ [Weber and Sansonetti, 1987]. [Goy et al., 1982] ont mesuré l'intervalle de structure hyperfine égal à 4.7 MHz pour l'état $28s_{1/2}$ et 1.1 MHz pour l'état $28p_{1/2}$.

D'environ 6 MHz pour le niveau $24s$, l'intervalle de structure hyperfine¹ (entre les états $F = 3$ et $F = 4$) n'est déjà plus que de 1.2 MHz pour le niveau $35s$. Pour les niveaux $np_{1/2}$, cet intervalle est inférieur à 1 MHz pour $n > 28$. Pour les niveaux $np_{3/2}$, il y a 4 niveaux de structure hyperfine (3 d'entre eux seulement sont accessibles à l'excitation depuis un niveau s). Sachant d'après [Farley et al., 1977] que $A_{3/2}/A_{1/2} \sim \frac{1}{5}$, l'intervalle d'énergie² entre les niveaux hyperfins $F = 2$ et $F = 5$ est $\approx \frac{3}{5}$ de l'intervalle calculé pour les niveaux $p_{1/2}$, soit à peine 1 MHz pour l'état $23p_{3/2}$.

¹Les différentes valeurs données sont extrapolées à partir des valeurs expérimentales.

²Pour un état $|nljifM_f\rangle$, la correction hyperfine à l'énergie est $\frac{A_j}{2}(f(f+1) - i(i+1) - j(j+1))$.

1.2.3 Éléments de matrice dipolaire

Les éléments de matrice dipolaire sont des paramètres importants puisqu'ils déterminent les couplages des atomes avec les champs extérieurs : couplage avec les lasers pour l'excitation, effet Stark résultant du couplage avec un champ statique ou interaction dipôle-dipôle lorsque le dipôle d'un atome interagit avec le champ électrique rayonné par le dipôle d'un autre atome.

En pratique, nous utilisons un programme introduit au laboratoire par T.F. Gallagher et modifié par J.M. Lecomte puis A. Bleton au Laboratoire Aimé Cotton pour le calcul des éléments de matrice dipolaire $\langle n, l, j, m_j | R_q | n', l', j', m_{j'} \rangle$. Ce calcul est basé sur les différents résultats et approximations que nous soulevons dans les paragraphes suivants.

1.2.3.1 Définition de l'élément de matrice dipolaire réduit

Nous sommes intéressés par l'opérateur dipôle électrique $\hat{D} = \hat{R}$ (en u.a). L'opérateur \hat{R} est un tenseur irréductible de rang 1 dont les composantes R_0 , R_+ et R_- s'expriment en fonction des harmoniques sphériques (voir par exemple [Sobel'man, 1972], chap. II) : $R_0 = \sqrt{\frac{4\pi}{3}} r Y_{10} = r \cos \theta \equiv Z$, $R_{\pm} = \sqrt{\frac{4\pi}{3}} r Y_{1\pm 1}$. L'intérêt d'utiliser ces composantes est de pouvoir appliquer le théorème de Wigner-Eckart : un élément de matrice dipolaire du type³ $\langle n, l, j, m_j | R_q | n', l', j', m_{j'} \rangle$ s'exprime en fonction de l'élément de matrice dipolaire réduit $\langle n, l, j || r || n', l', j' \rangle$ qui est indépendant de m_j et $m_{j'}$:

$$\langle n, l, j, m_j | R_q | n', l', j', m_{j'} \rangle = (-1)^{j-m_j} \begin{pmatrix} j & 1 & j' \\ -m_j & q & m_{j'} \end{pmatrix} \langle n, l, j || r || n', l', j' \rangle \quad (1.12)$$

Le facteur angulaire est contenu dans le symbole de Wigner $3j \begin{pmatrix} j & 1 & j' \\ -m_j & q & m_{j'} \end{pmatrix}$. Nous empruntons les notations à [Sobel'man, 1972]. Cette définition⁴ de l'élément de matrice dipolaire réduit conduit à la relation fort utile : $|\langle n, l, j || r || n', l', j' \rangle| = |\langle n', l', j' || r || n, l, j \rangle|$.

1.2.3.2 Réduction des éléments de matrice dipolaire

L'élément de matrice dipolaire réduit $\langle n, l, j || r || n', l', j' \rangle$ peut être encore réduit et exprimé en fonction de l'élément de matrice dipolaire réduit par rapport à l'opérateur \vec{L} , $\langle n, l || r || n', l' \rangle$ [Steck, 2004]. L'expression (1.12) devient (avec $s=1/2$) :

$$\langle n, l, j || r || n', l', j' \rangle = (-1)^{j'+l+s+1} \sqrt{(2j+1)(2j'+1)} \begin{Bmatrix} l & l' & 1 \\ j' & j & s \end{Bmatrix} \langle n, l || r || n', l' \rangle \quad (1.14)$$

³Nous utilisons l'exemple des états $|n, l, j, m_j\rangle$ mais ce résultat est tout à fait général et sera appliqué notamment aux états $|n, l, j, f, m_f\rangle$.

⁴Une autre convention est de définir un élément de matrice dipolaire réduit $\langle n, l, j || r || n', l', j' \rangle$ en fonction des coefficients de Clebsch-Gordan $\langle j m_j | j' 1 m_{j'} q \rangle$:

$$\langle n, l, j, m_j | R_q | n', l', j', m_{j'} \rangle = \langle n, l, j || r || n', l', j' \rangle \langle j m_j | j' 1 m_{j'} q \rangle \quad (1.13)$$

Cette convention est utilisée entre autres par [Steck, 2004] (nous ferons référence aux deux notations). En utilisant que $\langle j m_j | j' 1 m_{j'} q \rangle = (-1)^{j-m_j} \sqrt{2j+1} \begin{pmatrix} j & 1 & j' \\ -m_j & q & m_{j'} \end{pmatrix}$, les deux définitions de l'élément de matrice réduit sont reliées via l'expression : $\langle n, l, j || r || n', l', j' \rangle = \sqrt{2j+1} \langle n, l, j || r || n', l', j' \rangle$.

L'élément $(n, l || r || n', l')$ est quant à lui directement relié à l'intégrale radiale $R_{nlj}^{n'l'j'}$:

$$(n, l || r || n', l') = (-1)^l \langle l 0 | l' 0 | 0 \rangle \sqrt{2l' + 1} \times R_{nlj}^{n'l'j'} = (-1)^{\max(l, l') + l} \sqrt{\max(l, l')} \times R_{nlj}^{n'l'j'} \quad (1.15)$$

1.2.3.3 Intégrale radiale

Les intégrales radiales sont données par l'expression suivante :

$$R_{nlj}^{n'l'j'} = \int_0^\infty r^3 \mathcal{U}_{nlj}(r) \mathcal{U}_{n'l'j'}(r) dr \quad (1.16)$$

où $\mathcal{U}_{nlj}(r)$ est la partie radiale de la fonction d'onde de l'état Ψ_{nljm_j} , solution de l'équation de Schrödinger.

En raison du facteur r^3 , elles sont principalement sensibles aux valeurs des fonctions d'onde loin du coeur, où l'hamiltonien de structure fine peut être négligé et le potentiel supposé coulombien. Pour cette raison, l'approche du défaut quantique constitue en général une bonne approximation pour faire le calcul des intégrales radiales. $R_{nlj}^{n'l'j'}$ ne dépend alors de j que via le défaut quantique. Ce calcul d'intégrale radiale avec les fonctions de Coulomb est utilisé dans le programme que nous utilisons. Il est effectué par la méthode dite de Numerov [Gallagher, 1994].

L'intégrale radiale est donnée en très bonne approximation [Fabre and Haroche, 1983] pour des niveaux voisins par $R_{nlj}^{n'l'j'} \approx \frac{3}{2} n^{*2} g_0(\Delta n^*)$, où $\Delta n^* = n^* - n'^*$ et g_0 est une fonction oscillante dont l'amplitude décroît rapidement selon $(\Delta n^*)^{-5/3}$.

1.2.3.4 Forces d'oscillateur

La probabilité de photoabsorption d'un état $|n, l, j\rangle$ vers un état $|n', l', j'\rangle$ est donnée en première approximation⁵ par le coefficient d'absorption d'Einstein $B(nlj, n'l'j')$ qu'il est possible d'exprimer en fonction de la force d'oscillateur $f(nlj, n'l'j')$ et de ω , la fréquence de la transition [Sobel'man, 1972] :

$$B(nlj, n'l'j') = \frac{|f(nlj, n'l'j')|}{4\epsilon_0 m_e q_e^2 \hbar \omega} \quad (1.17)$$

La force d'oscillateur⁶ est une quantité sans dimension reliée à l'élément de matrice dipolaire réduit $(n, l, j || r || n', l', j')$ via l'expression :

$$f(nlj, n'l'j') = \frac{2m\omega}{3\hbar(2j+1)} |(n, l, j || r || n', l', j')|^2 \quad (1.19)$$

Dans le cas où un des niveaux est fortement lié (ce qui est le cas en général pour la photoabsorption), l'intégrale radiale est donnée en première approximation par $R_{nlj}^{n'l'j'} \approx (n^*)^{-3/2}$

⁵Les sous-niveaux Zeeman $|n, l, j, m_j\rangle$ sont supposés équipés au départ

⁶La force d'oscillateur permet de caractériser l'excitation avec une polarisation définie, à partir d'un ensemble de sous-niveaux Zeeman $nljm_j$ équipés vers l'ensemble des sous-niveaux Zeeman $n'l'j'm_{j'}$ d'un niveau excité. L'expression (1.19) est obtenue après réduction de la définition suivante :

$$f(nlj, n'l'j') = \frac{2m\omega}{\hbar(2j+1)} \sum_{m_j, m_{j'}} |\langle (n, l, j, m_j | r_q | n', l', j', m_{j'}) \rangle|^2 \quad (1.18)$$

([Fabre and Haroche, 1983],p. 126). La probabilité de photoabsorption varie donc comme n^{-3} pour les atomes de Rydberg.

Cependant, en excitation depuis un état fortement lié, le recouvrement entre les deux fonctions d'onde dans l'intégrale radiale s'effectue à beaucoup plus courte distance. Cela explique qu'il est observé des rapports complètement anormaux dans l'excitation du doublet de structure fine du césium pour $n \geq 7$. Le rapport de l'intensité des raies $np_{3/2}$ et $np_{1/2}$ en excitation depuis l'état $6s_{1/2}$ déterminé par le rapport des forces d'oscillateur $\rho = \frac{f_{3/2}}{f_{1/2}}$ croît avec n et atteint déjà 1170 pour $n = 30$ [Raimond et al., 1978, Norcross, 1973, Migdalek and Kim, 1998] alors que ce facteur devrait être de l'ordre de 4 (L'excitation des états $np_{1/2}$ diminue anormalement avec n). Pour interpréter de tels résultats, deux effets importants doivent être considérés, la correction de spin-orbite et la polarisation de coeur. Le potentiel effectif doit tenir compte de ces corrections [Migdalek and Kim, 1998], et la correction due à la polarisation de coeur doit aussi être incluse dans l'expression du moment dipolaire électrique⁷.

Cette anomalie n'apparaît pas lorsque l'excitation est effectuée depuis $7s_{1/2}$. Le calcul utilisant les défauts quantiques donne un facteur de l'ordre de 4, et bien que ce calcul soit encore "mauvais" pour $n = 7$ (les termes relativistes et de polarisation de coeur restent non négligeables), cette valeur est proche de la valeur expérimentale. Nous utilisons dans nos modèles les moments de matrice dipolaire calculés dans l'approximation de Coulomb, même si la valeur absolue des probabilités d'excitation n'est pas de cette manière déterminée très précisément.

1.2.4 Durées de vie radiatives

La probabilité de désexcitation depuis un état $|nl\rangle$ vers un état $|n'l'\rangle$ est donnée par le coefficient d'Einstein $A_{n'l',nl}$:

$$A_{n'l',nl} = \frac{4e^2\omega_{nl,n'l'}^3}{3\hbar c^3} \frac{\max(l,l')}{2l+1} (R_{nl}^{n'l'})^2 \quad (1.20)$$

Pour des états de petits l , cette désexcitation s'effectue principalement vers des états fortement liés, la dépendance en n étant donnée par $(R_{nl}^{n'l'})^2$, soit en n^{-3} . La durée de vie radiative d'un état Rydberg est l'inverse de la somme des taux de désexcitation vers les niveaux inférieurs :

$$\tau_{nl} = \left(\sum_{n'l'} A_{nl \rightarrow n'l'} \right)^{-1} \quad (1.21)$$

Un calcul donné par [Gounand, 1979] utilisant la méthode du défaut quantique fournit l'expression approchée :

$$\tau_{nl} = \tau_0 (n^*)^\beta \quad (1.22)$$

Les paramètres τ_0 et β sont donnés pour l'atome de césium dans le tableau suivant [Gallagher, 1994]:

⁷La fonction d'onde totale de l'atome de césium n'est pas une fonction d'onde monoélectronique. Rigoureusement, pour pouvoir utiliser une fonction d'onde monoélectronique mais obtenir les bonnes propriétés physiques de l'atome, la polarisabilité du coeur de l'atome (noyau + électrons de coeur, de charge $+q$) doit être incluse. Explicitement, la correction au potentiel d'interaction est $V_p = -\frac{1}{2}\alpha\vec{E}_v^2$ où $E_v(r)$ est le champ électrique créé par l'électron de valence, et la correction au moment dipolaire est $\vec{d} = \alpha\vec{E}_v$ [Migdalek and Kim, 1998]. Le dernier terme du potentiel de Klapisch en $1/r^4$ prend déjà en compte l'interaction entre l'électron et le dipôle induit du coeur de l'atome (interaction charge-dipôle).

	<i>s</i>	<i>p</i>	<i>d</i>	<i>f</i>
$\tau_0 (\times 10^{-9} \text{ s})$	1,43	4,42	0,96	0,69
β	2,96	2,94	2,93	2,94

L'expression de cette durée de vie doit être néanmoins corrigée pour prendre en compte les effets de relaxation induits par le rayonnement du corps noir [Gallagher and Cooke, 1979]. Son effet est d'induire des transitions entre états de Rydberg directement voisins, les éléments de matrice dipolaire de transition étant alors très grands. La densité d'énergie maximale des photons du corps noir correspond à une fréquence de l'ordre de 500 cm^{-1} à une température du corps noir égal à 300 K [Gallagher, 1983], l'effet du corps noir est donc maximal pour $n \approx 10$, et décroît selon la loi suivante, presque indépendamment de l :

$$\frac{1}{\tau_{nl}^{cn}} \approx \frac{4\alpha^3 k_B T}{3n^*2} \approx 6,79 \times 10^4 \frac{T}{n^*2} \quad (s^{-1}) \quad (1.23)$$

où α est la constante de structure fine et T la température en degrés kelvin.

L'expression globale de la durée de vie d'un atome de Rydberg est alors donnée par :

$$\frac{1}{\tau_{nl}^{tot}} = \frac{1}{\tau_{nl}} + \frac{1}{\tau_{nl}^{cn}} \quad (1.24)$$

Nous donnons dans le tableau suivant un exemple typique de durée de vie d'états de Rydberg :

	23 <i>p</i>	33 <i>p</i>	50 <i>p</i>	100 <i>p</i>
$\tau [\mu\text{s}]$	27	91,8	351	3011
$\tau^{cn} [\mu\text{s}]$	18,5	42,5	106	456
$\tau^{tot} [\mu\text{s}]$	11	29	81	396

La réduction de la durée de vie des états de Rydberg due à la radiation du corps noir est donc dramatique, et même plus encore pour de grands n . La décroissance du taux de relaxation induit par le corps noir avec n est en effet légèrement plus faible que celle du taux d'émission spontanée. Les résultats précédents sont donnés pour des états avec l petit. Pour des états de très grand l , $l = n - 1$, la désexcitation spontanée ne peut avoir lieu que vers le niveau adjacent. Les durées de vie sont considérablement plus longues et peuvent dépasser la milliseconde pour des n relativement bas (30 ms pour $n = 50$).

1.2.5 Effet Stark sur les atomes alcalins

La structure Stark des atomes de Rydberg alcalins a été étudiée en détail par [Zimmerman et al., 1979], expérimentalement et théoriquement. La méthode de calcul consiste simplement à diagonaliser l'hamiltonien Stark après calcul des différents éléments de couplage proportionnels aux éléments de matrice dipolaires, ceci via la technique du défaut quantique. Nous utilisons au laboratoire Aimé Cotton un programme développée par J. M. Lecomte reposant sur cette méthode, dont nous allons donner quelques résultats.

1.2.5.1 Structure Stark des niveaux d'énergie

L'hamiltonien du système en présence du champ électrique statique F s'écrit, en unités atomiques :

$$H = -\frac{1}{2}\nabla^2 + V_{pot.eff}(r) + \xi(r)\vec{L}\cdot\vec{S} + Fz \quad (1.25)$$

Le dernier terme décrit l'interaction avec le champ électrique statique, dirigé suivant l'axe z . Le hamiltonien spin-orbite $\xi(r)\vec{L}\cdot\vec{S}$ est supposé inchangé par le champ électrique statique. Ceci est une assez bonne approximation pour le calcul du diagramme Stark des atomes de Rydberg [Zimmerman et al., 1979].

Cas de l'hydrogène

Dans une première description, nous ne prenons pas en compte l'interaction spin-orbite et nous intéressons simplement au cas de l'hydrogène. Le potentiel est donc purement coulombien et le problème de l'effet Stark est solvable en coordonnées paraboliques à tous les ordres de la théorie des perturbations [Silverstone, 1978]. Ces coordonnées sont en effet plus adaptées lorsque le système possède un axe de symétrie particulier. Le couplage Stark conduit à lever la dégénérescence des niveaux d'énergie relativement aux nombres quantiques l et m . Au deuxième ordre de la théorie des perturbations, les nouvelles valeurs propres d'énergie sont :

$$E = -\frac{1}{2n^2} + \frac{3}{2}n(n_1 - n_2)F + \frac{n^4}{16} [17n^2 - 3(n_1 - n_2)^2 - 9m^2 + 19] F^2 \quad (1.26)$$

où n_1 et n_2 sont les nombres quantiques paraboliques (l n'étant plus un bon nombre quantique), entiers non négatifs, qui sont reliés au nombre quantique principal n et au nombre quantique magnétique m par la relation $n = n_1 + n_2 + |m| + 1$.

Pour des raisons de symétrie, la levée de dégénérescence n'est pas totale suivant m , elle ne s'effectue que suivant $|m|$ (au deuxième ordre). Pour n donné, il y a donc $\frac{n(n+1)}{2}$ niveaux d'énergie dont la dégénérescence est levée en champ électrique. Celle-ci est principalement linéaire, comme on peut le voir avec l'expression (1.26) ou sur le diagramme Stark de la Fig. 1.2. On voit ainsi apparaître une série de multiplets reliés chacun à champ nul à un état d'énergie déterminé uniquement par n .

On appelle états "bleus" les états tels que $(n_1 - n_2) > 0$ car leur énergie augmente en champ électrique, les états tels que $(n_1 - n_2) < 0$ étant appelés états rouges. Une propriété importante est que états bleus et rouges appartenant à des multiplicités différentes se croisent : ceci est une conséquence directe des symétries du potentiel coulombien et notamment de la dégénérescence suivant l (le potentiel d'interaction avec le champ externe ne tient pas compte dans cette description de l'interaction de spin-orbite dépendant très légèrement du champ électrique appliqué). Le croisement entre les multiplicités a lieu typiquement pour un champ de croisement $F_{cr} \approx \frac{1}{3n^5}$, exprimé en unités atomiques.

Cas des alcalins

Il n'existe pas de solution analytique pour décrire le diagramme Stark des niveaux d'énergie des atomes alcalins. La méthode consiste à calculer les éléments de matrice du hamiltonien (1.25) puis à le diagonaliser.

Les éléments de matrice de couplage par le champ Stark peuvent s'écrire de manière générale sous la forme d'un produit d'un facteur radial et d'un facteur angulaire :

$$\langle n, l, j, m_j | Fr \cos \theta | n', l', j', m'_j \rangle = \langle l, j, m_j | \cos \theta | l', j', m'_j \rangle \langle n, l, j | r | n', l', j' \rangle \times F \quad (1.27)$$

L'élément de matrice dipolaire réduit (facteur radial) est évalué numériquement (cf paragraphe 1.2.3). Le facteur angulaire s'exprime simplement de façon analytique, les états couplés par le hamiltonien Stark vérifient forcément $\Delta l = \pm 1$, $\Delta m_j = 0$.

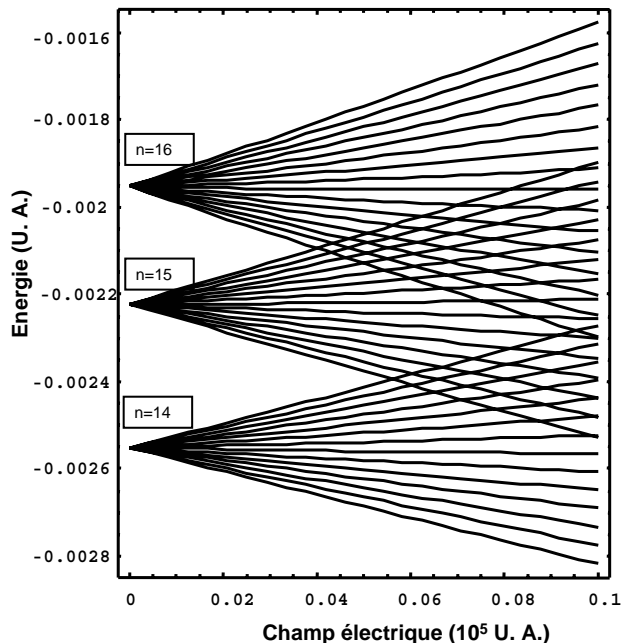


FIG. 1.2 – Diagramme énergétique des états $|m| = 0$ de l'atome d'hydrogène pour les états $n = 14$ à $n = 16$ en fonction du champ électrique \mathcal{E} en unités atomiques. Il apparaît que l'effet Stark sur l'atome d'hydrogène est principalement linéaire.

Les résultats de la diagonalisation sont présentés Fig. 1.3 pour le césium pour différents états entre $n = 36$ et $n = 40$. Comme dans le cas de l'hydrogène, l'effet Stark est linéaire pour la multiplicité d'états dégénérés en champ nul, pour lesquels le défaut quantique est nul ou quasi nul. Pour les états non dégénérés np , nd et nf , l'effet Stark est d'abord quadratique avant de devenir linéaire en champ électrique plus élevé (cf Fig. 1.4). Les niveaux ns traversent les multiplicités et sont très peu modifiés en champ électrique, car ils sont situés quasiment à mi-chemin en énergie entre les niveaux np et $(n + 1)p$ avec lesquels ils sont couplés par le champ électrique. En raison des valeurs importantes des défauts quantiques dans le césium, on voit par exemple que le niveau $41s$ est dans la multiplicité des niveaux $n = 37$ (défaut quantique proche de 4). Les niveaux $|np\rangle$ et $|(n - 1)d\rangle$ se retrouvent être extrêmement proches et se repoussent en champ électrique (exemple des niveaux $|np_{3/2}\rangle$ et $|(n - 1)d_{5/2}\rangle$ sur la Fig. 1.4).

Pour des champs faibles, il est possible de considérer le système $np_{3/2}-(n - 1)d_{5/2}$ comme un système à deux niveaux couplés par effet Stark, de même que le système $np_{1/2}-(n - 1)d_{3/2}$. Le couplage avec les autres états est en effet beaucoup plus faible, le couplage $np_{3/2}-(n - 1)d_{3/2}$ est par exemple environ 10 fois plus faible que le couplage $np_{3/2}-(n - 1)d_{5/2}$. Cette configuration relativement simple de couplage par champ électrique a été utilisée pour étudier l'interaction dipôle-dipôle (voir paragraphe 1.3.2.1). Pour des champs électriques très faibles, on peut également définir des polarisabilités pour les états np , nd (accessoirement ns et nf) qui traduisent la variation quadratique des niveaux d'énergie. L'énergie d'un atome dans un état de moment angulaire total j et de projection m_j en fonction du champ électrique F est ainsi donnée par :

$$\Delta E_{St} = -\frac{1}{2} \left[\alpha_0 + \alpha_2 \frac{3m_j^2 - j(j+1)}{j(2j-1)} \right] F^2 \quad (1.28)$$

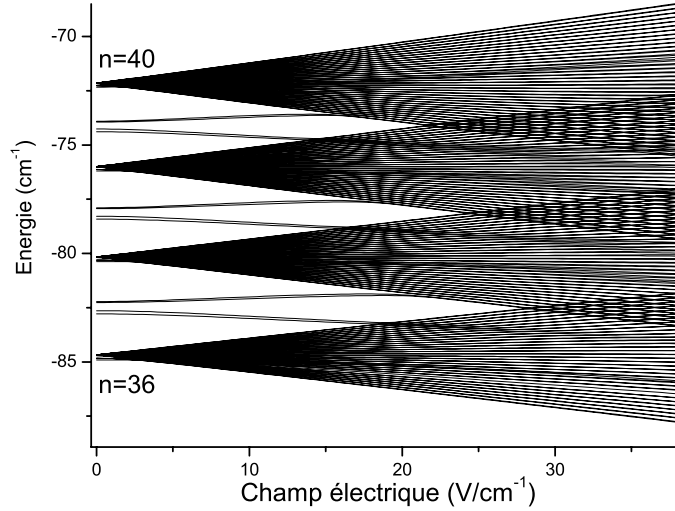


FIG. 1.3 – Diagramme Stark du césium ($|m_j| = 0$) faisant apparaître les multiplicités de niveaux de nombre quantique principal $n=36$ à $n=40$.

où α_0 et α_2 sont respectivement les polarisabilités scalaire et tensorielle, qu'on peut retrouver par exemple dans la référence [Khadjavi et al., 1968].

Cette expression est parfois utile pour déterminer à partir de quel champ électrique les différents sous-niveaux définis en champ électrique par $|m_j|$ sont suffisamment séparés énergétiquement pour être excités de manière individuelle, par laser par exemple.

1.2.5.2 Ionisation par un champ électrique

Un faible champ électrique est suffisant pour ioniser un atome de Rydberg. L'amplitude nécessaire dépend de l'énergie de liaison de l'état de Rydberg à détecter.

Seuil d'ionisation classique

Un calcul simple du seuil d'ionisation est possible en considérant un électron dans un potentiel coulombien, valable à longue distance en présence d'un champ électrique statique F :

$$V(r, z) = \frac{-1}{r} + Fz \quad (1.29)$$

Comme on le voit sur la figure 1.5, V admet un maximum suivant l'axe z , pour une valeur du potentiel égale à $V_S(F) = -2\sqrt{F}$. En appliquant un champ électrique plus élevé, l'électron possède une énergie suffisante pour "sortir" du potentiel $V(r)$: en effet l'atome est ionisé lorsque la condition $V_S(F) < E_{nl}$ est satisfaite. Cela amène au champ classique d'ionisation F_c , en unités atomiques :

$$F_c = \frac{1}{16(n^*)^4} \quad (1.30)$$

Cette estimation ne prend pas en compte l'effet Stark sur les niveaux d'énergie et la manière dont le champ électrique est appliqué. La technique de détection utilise une rampe de champ électrique pulsée, ce qui modifie quelque peu la valeur du champ d'ionisation par rapport au

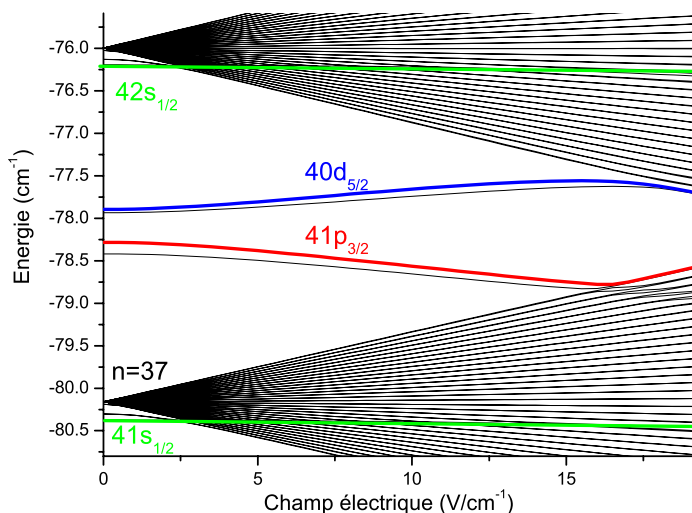


FIG. 1.4 – Diagramme Stark du césium faisant apparaître les multiplicités de niveaux de nombre quantique principal $n=37$ à $n=38$. On distinguera les autres états, s , p , d , f et g ayant des défauts quantiques non nuls (les états f et g de défauts quantiques quasi nuls sont placés juste sous la multiplicité). Les états s croisent les multiplicités en champ électrique très faible. Les états p et d très proches en champ nul se repoussent par effet Stark.

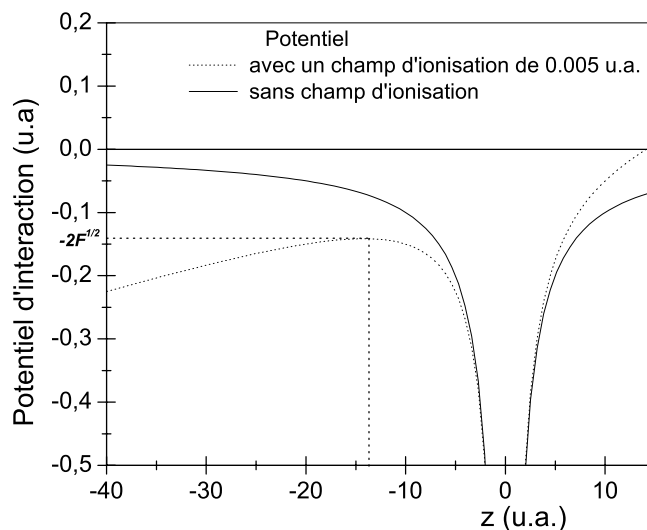


FIG. 1.5 – Représentation schématique du potentiel d'interaction de l'électron avec le champ externe et le champ créé par le noyau atomique. En présence d'un champ externe F dirigé suivant z , ce potentiel présente un minimum $V_S(F) = -2\sqrt{F}$ conduisant à l'ionisation d'un atome d'énergie plus élevée.

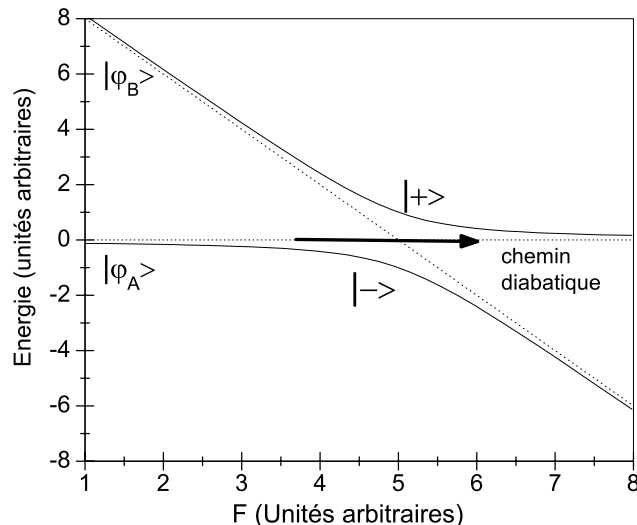


FIG. 1.6 – Représentation d'un croisement évité entre deux niveaux Stark $|\phi_A\rangle$ et $|\phi_B\rangle$.

champ d'ionisation classique. En effet, les états de Rydberg passent continuellement d'un champ électrique nul à un champ électrique élevé jusqu'à ce qu'ils parviennent à un niveau d'énergie E telle que $V_S(F) < E$. Pendant le balayage de cette rampe, les états traversent un grand nombre de croisements évités visibles sur le diagramme Stark 1.4. Suivant la vitesse à laquelle est balayé le champ électrique au niveau des croisements, ceux-ci seront traversés plus ou moins diabatiquement ou adiabatiquement, il existe en conséquence un grand nombre de chemins d'ionisation possibles.

On rappelle que la probabilité de traverser diabatiquement un croisement évité est donnée par la formule de Landau-Zener (considérant que E va de $-\infty$ à $+\infty$ [Rubbmark et al., 1981]) :

$$P_{diab} = \exp\left(-\frac{2\pi(\Delta E)^2}{\hbar dE/dt}\right) \quad (1.31)$$

où ΔE est la séparation énergétique au niveau du croisement évité, dE/dt peut se réécrire sous la forme $dE/dF \times dF/dt$ où dE/dF est la variation du déplacement Stark en fonction du champ électrique entre les deux états et dF/dt la pente de la rampe de champ électrique.

A partir de l'équation (1.31), on comprend que pour des rampes de champ électrique lentes ($dE/dt < \Delta E^2$) le passage du croisement évité sera adiabatique ; par contre, pour des rampes rapides, le passage sera diabatique (voir Fig. 1.6).

Une rampe de champ électrique avec un temps de montée de l'ordre de $1 \mu s$ assure que pour les états s , p et d le chemin d'ionisation est plutôt adiabatique. Autrement dit, lorsque le champ électrique augmente, ces états s , p , d suivent les états Stark $|s(F)\rangle$, $|p(F)\rangle$ et $|d(F)\rangle$ avant qu'ils ne parviennent au point de croisement des multiplicités. Du fait du grand nombre de croisements évités, l'état de Rydberg en champ électrique conserve alors un niveau d'énergie relativement constant (cf Fig. 1.3). Le champ d'ionisation est alors proche du champ d'ionisation classique $\frac{1}{16(n^*)^4}$. On conçoit que si le chemin d'ionisation suivi est plutôt diabatique, les champs d'ionisation pourront être assez différents. Pour l'hydrogène, le champ d'ionisation

classique F_0 de l'état le plus rouge de la multiplicité, d'énergie $E(n, n_1 = 0, n_2 = n - 1, F_0)$, est $\sim \frac{1}{9n^4}$ (ce champ est solution de l'équation $V_S(F_0) = E(n, n_1 = 0, n_2 = n - 1, F_0)$) et $\sim \frac{1}{21.6n^4}$ pour l'état le plus bleu⁸.

1.2.6 Résumé de quelques propriétés des atomes de Rydberg

Ci-dessous sont rappelées les propriétés des atomes de Rydberg que nous allons retrouver dans les paragraphes suivants. Les valeurs ont été calculées pour l'état $40p$ de l'atome de césium⁹.

Propriété	Dépendance avec n^*	40p du Cs
Énergie de liaison	n^{*-2}	82.638 cm^{-1}
Intervalle énergétique entre 2 niveaux consécutifs ($l=1$)	n^{*-3}	$\sim 4.5 \text{ cm}^{-1}$
Rayon orbital	n^{*2}	127 nm
Moment dipolaire électrique	n^{*2}	-971 u. a.
Durée de vie incluant le corps noir		47 μs
Champ d'ionisation classique	n^{*-4}	182.4 V/cm

Les valeurs extrêmes, notamment des rayons, sections efficaces et moments dipolaires électriques que peuvent comporter de tels atomes de Rydberg sont au coeur des études d'interactions et de collisions que nous avons menées et que nous allons introduire dans la section suivante.

⁸Pour les états bleus, ce résultat n'est pas exact et une étude "quantique" du processus d'ionisation montre en fait que les seuils sont plus élevés.

⁹Le moment dipolaire est calculé pour la transition $|40p, j = 3/2, |m_j| = 1/2\rangle \leftrightarrow |39d, j' = 5/2, |m_{j'}| = 1/2\rangle$.

1.3 Interaction dipôle-dipôle entre atomes de Rydberg

Les atomes de Rydberg, atomes très polarisables, sont des candidats idéaux pour étudier les effets des interactions dipôle-dipôle. Leur très grande taille, $\propto n^2 a_0$, permet d'obtenir de très grands dipôles, par exemple lorsqu'ils sont soumis à un champ électrique. Dans de nombreuses situations, le couplage dipôle-dipôle entre les états "moléculaires" de deux atomes de Rydberg est très grand, $\propto \frac{n^4}{R^3}$ où R est la distance internucléaire. Une situation originale est donnée par le transfert résonant d'énergie interne, tirant parti pour les atomes alcalins et notamment le césium, des nombreuses possibilités de résonances telles que :

$$nl + nl \rightarrow n'l' + n''l'' \quad (1.32)$$

obtenues lorsque une paire d'atomes dans un état $|nl\rangle \otimes |nl\rangle$ a même énergie qu'une paire d'atomes dans un état $|n'l'\rangle \otimes |n''l''\rangle$. Un exemple est donné par la réaction $Cs(np_{3/2}) + Cs(np_{3/2}) \rightarrow Cs(ns) + Cs((n+1)s)$. De telles réactions peuvent conduire à des transferts d'excitation relativement efficaces entre atomes de Rydberg : ceci a ainsi été observé dans des jets thermiques d'atomes, le transfert d'excitation intervenant au cours des collisions binaires [Safinya et al., 1981]. Une analogie profonde existe entre cette situation de transfert résonant d'énergie entre deux atomes et les situations de transfert résonant dans des systèmes moléculaires en solution ou plus encore les transferts d'énergie électronique entre dopants au sein d'un solide inorganique. Les transferts résonants d'énergie électronique dus à l'interaction dipôle-dipôle entre molécules en solution ont été expliqués pour la première fois par T. Förster [Förster, 1948]. Ces transferts portent généralement le nom de procédé Förster. L'explication a été ensuite étendue au cas des systèmes solides [Dexter, 1953] et généralisée au cas d'une interaction multipolaire électrique ou magnétique. L'analogie est même encore plus forte dans les gaz d'atomes froids de Rydberg, car le processus de transfert inclut alors un grand nombre d'atomes en interaction, quasi-immobiles à l'échelle des expériences. Des processus de diffusion des produits de la réaction (1.32) très proches de la diffusion des excitations électroniques dans un cristal dopé sont observés [Anderson et al., 1998, Mourachko et al., 1998, Merkle and Powell, 1979]. Pour ces raisons, la réaction de transfert 1.32 est aussi appelée résonance de Förster [Walker and Saffman, 2005, Vogt et al., 2006].

Ce chapitre présente d'abord de manière générale les interactions à longue portée dans les dimères d'alcalins, l'interaction dipôle-dipôle ne constituant que le premier terme du développement multipolaire. Ensuite l'interaction dipôle-dipôle en champ électrique est étudiée notamment en présentant le couplage très particulier entre les états np et $(n-1)d$. Enfin, un rappel historique du transfert résonant d'énergie est développé autour des expériences réalisées en jets thermiques d'atomes puis des expériences réalisées dans des gaz d'atomes froids, en considérant notamment la réaction de transfert $np_{3/2} + np_{3/2} \rightarrow ns + (n+1)s$.

1.3.1 Forces de Van der Waals et interaction dipôle-dipôle

Développement multipolaire électrique

L'hamiltonien d'un système de deux atomes A et B en interaction s'écrit comme la somme des hamiltoniens agissant sur les atomes pris séparément et du hamiltonien d'interaction V_{int} :

$$H = H_{0A} + H_{0B} + V_{int} \quad (1.33)$$

Le terme d'interaction Van der Waals désigne usuellement l'ensemble des termes du développement du potentiel V_{int} entre les deux systèmes atomiques lorsque les deux atomes sont suffisamment éloignés pour qu'il n'y ait pas de recouvrement des distributions de charges [Dalgarno and Davinson, 1966]. Dans ce cas sont négligées les intégrales d'échange et de recouvrement responsables de la liaison chimique, seule est prise en compte la partie asymptotique du potentiel. Les forces de Van der Waals désignent les forces attractives à longue distance [Dalgarno and Davinson, 1966] dérivant du potentiel d'interaction lorsque le terme dominant correspond à une interaction attractive, en général en $-1/R^6$.

Décrivons d'abord le potentiel électrostatique $U_A(\vec{r})$ en \vec{r} créé par la distribution de N charges d'un atome A, positionnées en \vec{r}_n . Il s'écrit sous la forme :

$$U_A(\vec{r}) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \sum_{n=1}^N \frac{q_n}{|\vec{r}_n - \vec{R}_A|} \quad (1.34)$$

Soit \vec{R}_A positionnant le centre de masse de l'atome A et $R = |\vec{r} - \vec{R}_A|$. Si $R \gg |\vec{R}_A - \vec{r}_n|$, la distribution de charges en \vec{r} est quasi nulle, la loi de Poisson donne donc $\Delta U_A(\vec{r}) = 0$. Le potentiel $U_A(\vec{r})$ peut alors s'écrire comme un développement sur les harmoniques sphériques $Y_l^m(\theta, \phi)$ en puissance de $\frac{1}{R}$ (voir [Cohen-Tanoudji et al., 2000], comp. E_X) :

$$U_A(\vec{r}) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^{m=l} \sqrt{\frac{4\pi}{2l+1}} (-1)^m Q_l^{-m}(A) \frac{1}{R^{l+1}} Y_l^m(\theta, \phi) \quad (1.35)$$

où les Q_l^{-m} sont les opérateurs multipolaires électriques :

$Q_l^{-m}(A) = Q_l^{-m}(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_n) = \sum_{n=1}^N (-1)^m \sqrt{\frac{4\pi}{2l+1}} q_n r_n^l Y_l^m(\theta_n, \phi_n)$. Nous retrouvons que $Q_0^0(A) = Q^A$ n'est autre que la charge ici nulle et les $Q_1^m(A) = \mu_m^A$ sont les composantes du dipôle électrique.

Une simplification importante peut être apportée dans le cas d'un alcalin, si on considère un coeur ponctuel (polarisable) de charge $+q$ et un seul électron externe, en \vec{r}_n :

$$Q_l^{-m}(A) \approx Q_l^{-m}(\vec{r}_n) = (-1)^m \sqrt{\frac{4\pi}{2l+1}} q r_n^l Y_l^m(\theta_n, \phi_n) \quad (1.36)$$

Le potentiel d'interaction V_{int} provient de l'interaction des charges de l'atome A et celles de l'atome B situées en \vec{r}_n' et s'écrit en fonction de U_A : $V_{int} = \sum_{n'=1}^{N'} q_{n'} U_A(\vec{r}_n')$ car $q U_A(\vec{r})$ est le potentiel d'interaction d'une charge placée en \vec{r} avec l'ensemble des charges de l'atome A.

Une généralisation du développement multipolaire (1.35) peut être obtenue pour V_{int} . V_{int} s'exprime de la façon suivante avec l'approximation (1.36) [Busserly and Aubert-Frécon, 1985] :

$$V_{int} = \sum_{i=1}^{\infty} \sum_{j=1}^{\infty} \frac{V_{ij}(A, B)}{R^{i+j+1}} \quad (1.37)$$

où $V_{ij}(A, B) = (-1)^j \sum_{-min(i,j)}^{min(i,j)} \frac{(-1)^j (i+j)!}{\sqrt{(i+m)!(i-m)!(j+m)!(j-m)!}} Q_i^m(A) Q_j^{-m}(B)$, R étant la distance internucléaire.

Pour le cas présent de deux atomes neutres, le terme dominant est un terme en $\frac{1}{R^3}$: il correspond formellement au terme d'interaction dipôle-dipôle que nous allons développer au paragraphe suivant.

A partir du développement multipolaire (1.37), l'expression des niveaux d'énergie peut être obtenue par la méthode des perturbations en considérant qu'asymptotiquement, l'énergie du dimère est celle de deux atomes. Les niveaux d'énergie sont ainsi calculés de manière perturbative dans [Singer et al., 2005] pour les états reliés aux asymptotes $ns - ns$, $np - np$ et $nd - nd$. Ces calculs sont effectués dans la base du cas (a) de Hund avec des fonctions d'onde correctement symétrisées, combinaisons linéaires des fonctions de la base atomique. Les états propres de la base atomique sont les états¹⁰ $|n_a, l_a, m_{l_a}, s_a, m_{s_a}\rangle \otimes |n_b, l_b, m_{l_b}, s_b, m_{s_b}\rangle$, produits des états propres des atomes A et B. Cette base d'états ne satisfait pas au postulat de symétrisation. Cependant, les atomes sont suffisamment éloignés pour qu'il ne soit pas besoin de le prendre en compte : l'interaction d'échange provenant de la prise en compte du postulat n'est importante qu'à très courtes distances. Dans la mesure où nous sommes intéressés par le calcul des interactions dans le référentiel du laboratoire, nous utilisons préférentiellement la description dans la base atomique. Cette description permet par ailleurs d'étendre facilement l'étude à des systèmes à plusieurs atomes. Le calcul exact est développé dans l'annexe A.

Interaction dipôle-dipôle

L'approximation (1.36) revient à exprimer V_{int} comme le potentiel d'interaction entre deux atomes d'hydrogène.

$$V_{int} = \frac{e^2}{R} - \frac{e^2}{r_{A2}} - \frac{e^2}{r_{B1}} + \frac{e^2}{r} \quad (1.38)$$

avec les notations suivantes : R distance internucléaire ($\vec{R} = \vec{AB}$), r_{A2} distance de l'atome A à l'électron 2, électron externe de l'atome B, r_{B1} distance de l'atome B à l'électron 1, électron externe de l'atome A, r distance entre les deux électrons.

En remarquant que $r_{A2} = |-\vec{R} + r_{B2}\vec{n}|$, $r_{B1} = |\vec{R} + r_{A1}\vec{n}|$, $r = |\vec{R} + r_{B2}\vec{n} - r_{A1}\vec{n}|$ et en supposant $R \gg r_{B2} + r_{A1}$ un développement limité en $1/R$ de l'expression (1.38) permet de retrouver l'hamiltonien dipôle-dipôle :

$$V_{int} = V_{dd} = \frac{e^2}{R^3} (r_{A1}\vec{n} \cdot r_{B2}\vec{n} - 3(r_{A1}\vec{n} \cdot \vec{n})(r_{B2}\vec{n} \cdot \vec{n})) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0 R^3} (\vec{\mu}_A \cdot \vec{\mu}_B - 3(\vec{\mu}_A \cdot \vec{n})(\vec{\mu}_B \cdot \vec{n})) \quad (1.39)$$

où $\vec{\mu}_A$ et $\vec{\mu}_B$ sont les dipôles atomiques et $\vec{n} = \frac{\vec{R}}{R}$ porte la direction internucléaire.

En prenant l'axe (Oz) parallèle à \vec{n} , l'opérateur dipôle-dipôle s'écrit, en reprenant les notations de (Cohen-Tanoudji, comp. CXI)

$$V_{dd} = \frac{e^2}{R^3} (X_A X_B + Y_A Y_B - 2Z_A Z_B) \quad (1.40)$$

Au premier ordre de la théorie des perturbations, la correction à l'énergie d'un état propre $|\varphi_a, \varphi_b\rangle$ est donnée par la valeur moyenne de cet opérateur dans le cas où cet état d'énergie est non dégénéré :

$$V_{dd}^{(1)} = \langle \varphi_a, \varphi_b | V_{dd} | \varphi_a, \varphi_b \rangle \quad (1.41)$$

¹⁰Cette expression prend pour axe de quantification l'axe du laboratoire.

où $|\varphi_a$ et $|\varphi_b$ sont des états propres relatifs aux atomes A et B. Cette approximation n'est valide que si $(E_{a'} + E_{b'}) - (E_a + E_b) \ll |\langle \varphi_{a'}, \varphi_{b'} | V_{dd} | \varphi_a, \varphi_b \rangle|$ et ceci pour tout couple d'états $\varphi_{a'}$ et $\varphi_{b'}$ d'énergies respectives $E_{a'}$ et $E_{b'}$. Cette correction à l'énergie fait apparaître un terme en $-\frac{C_3}{R^3}$.

On remarquera que l'expression (1.40) de V_{dd} s'exprime comme une somme de produits d'opérateurs impairs agissant indépendamment sur l'atome A et sur l'atome B : il est donc impair et ne couple pas des états de même moment cinétique orbital l .

Le potentiel d'interaction dipôle-dipôle ne couple donc pas a priori des atomes préparés dans des états quantiques de moment cinétique orbital pur au premier ordre de la théorie des perturbations. Ceci correspondrait par exemple à une excitation en champ électrique nul d'atomes de Rydberg dans un même état $|\varphi_a\rangle = |\varphi_b\rangle = |n, l, j, m_j\rangle$. Pour que $V_{dd}^{(1)}$ soit non nul, il faut que les atomes soient dans une superposition d'états de l différents, et par conséquent doivent posséder un moment dipolaire permanent ou induit : on peut penser à une polarisation par champ électrique.

Dans le cas d'un couplage nul au premier ordre, on peut calculer le deuxième ordre de la théorie des perturbations :

$$V_{dd}^{(2)} = \sum_{a', b' \neq a, b} \frac{|\langle \varphi_{a'}, \varphi_{b'} | V_{dd} | \varphi_a, \varphi_b \rangle|^2}{E_a + E_b - (E_{a'} + E_{b'})} \quad (1.42)$$

Cette correction à l'énergie fait apparaître un terme en $\frac{-C_6}{R^6}$, associé aux forces dispersives de London. Cette correction a pour origine une interaction du type dipôle induit-dipôle induit, qui expriment les corrélations entre les fluctuations des deux dipôles autour de leur moyenne. Lorsque les deux atomes sont dans l'état fondamental, $C_6 > 0$, l'interaction est alors forcément attractive. Le terme $\frac{-C_6}{R^6}$ est en général le terme dominant dans l'interaction Van der Waals, nous le désignerons par extension comme étant le terme Van der Waals dans l'interaction à longue distance, en gardant le terme moins courant $\frac{-C_3}{R^3}$ pour désigner l'interaction dipôle-dipôle.

L'expression (1.41) n'est valable que si l'état de départ est non dégénéré, ce qui souvent n'est pas le cas. Dans le cas où l'état de départ est dégénéré, la correction en énergie est donnée à l'ordre 1 par la diagonalisation de la perturbation dipôle-dipôle dans le sous-espace de dégénérescence (voir par exemple le livre [Friedrich, 1998], chap. 1).

Un premier cas est la polarisation par champ électrique d'atomes alcalins excités dans des états p , d (accessoirement s et f) qui ne lève pas totalement la dégénérescence suivant les états m_j , puisque leur niveau d'énergie dépend de $|m_j|$. Il convient dans ces cas de diagonaliser l'hamiltonien d'interaction dipôle-dipôle à l'intérieur du sous-espace de dégénérescence comprenant les 4 états d'énergie $\mathcal{E} : |\mathcal{E}, m_j\rangle \otimes |\mathcal{E}, m_j\rangle, |\mathcal{E}, -m_j\rangle \otimes |\mathcal{E}, -m_j\rangle, |\mathcal{E}, m_j\rangle \otimes |\mathcal{E}, -m_j\rangle$ et $|\mathcal{E}, -m_j\rangle \otimes |\mathcal{E}, m_j\rangle$.

D'autres cas sont donnés par les cas d'interaction dipôle-dipôle résonante. Il est possible par exemple d'exciter les deux atomes dans des états de l différents $|\varphi_a\rangle$ et $|\varphi_b\rangle$. Dans ce cas, l'excitation est perturbée par l'interaction dipôle-dipôle couplant les états $|\varphi_a\rangle|\varphi_b\rangle$ et $|\varphi_b\rangle|\varphi_a\rangle$ dégénérés. Un deuxième exemple est fourni par les configurations de transferts résonants lorsque l'état moléculaire $|\varphi_a\rangle|\varphi_a\rangle$ est de même énergie qu'un autre état $|\varphi_b\rangle|\varphi_c\rangle$ et couplé à cet état par interaction dipôle-dipôle.

Plus généralement, il n'est pas possible de restreindre le système au sous-espace de dégénérescence et le calcul perturbatif doit prendre en compte un plus grand nombre de niveaux.

Ces différentes possibilités de mettre en évidence l'interaction dipôle-dipôle sont étudiées plus en détail dans les sections 1.3.2, 1.3.3 et 1.3.4.

1.3.2 Interaction dipôle-dipôle en champ électrique statique

Dans cette section, nous étudions une configuration simple d'interaction dipôle-dipôle en champ électrique. Il est notamment montré que lorsque deux atomes de césium sont excités vers l'état Stark $|np_{3/2}(F), |m_j| = 1/2\rangle$, ils possèdent chacun un dipôle permanent μ et l'interaction dipôle-dipôle entre ces deux atomes est directement donnée par l'expression issue de la mécanique classique $V_{dd} = \mu^2 \frac{1-3\cos^2\Theta}{R^3}$, où Θ est l'angle entre l'axe internucléaire et l'axe du champ électrique et R est la distance internucléaire.

1.3.2.1 Etude du couplage $np - (n-1)d$

Pour des champs faibles et en considérant les états $|m_j| = 1/2$ uniquement¹¹, il est possible de considérer le système $np_{3/2}-(n-1)d_{5/2}$ comme un système à deux niveaux couplés par effet Stark, de même que le système $np_{1/2}-(n-1)d_{3/2}$. Le couplage avec les autres états est en effet beaucoup plus faible, le couplage $np_{3/2}-(n-1)d_{3/2}$ est par exemple environ 10 fois plus faible que le couplage $np_{3/2}-(n-1)d_{5/2}$. Comme dans le traitement classique d'un système à deux niveaux, on pose $\tan(\theta) = \frac{-\mu_{pd}F}{\Delta/2}$ où μ_{pd} est l'élément de matrice dipolaire et Δ est la différence d'énergie entre les états p et d.

On appellera $|np(F)\rangle$ et $|nd(F)\rangle$ les nouveaux états propres dans un champ électrique F reliés en champ nul aux états $|np_{3/2}\rangle$ et $|nd_{5/2}\rangle$. Les énergies et fonctions d'onde s'expriment facilement¹² en fonction du paramètre θ , en supposant $-\mu_{pd}F > 0$:

$$E_{|np(F)\rangle} = \frac{E_{|np\rangle} + E_{|nd\rangle}}{2} - \frac{\Delta}{2} \sqrt{1 + (\tan \theta)^2} \quad (1.47)$$

$$E_{|nd(F)\rangle} = \frac{E_{|np\rangle} + E_{|nd\rangle}}{2} + \frac{\Delta}{2} \sqrt{1 + (\tan \theta)^2} \quad (1.48)$$

et

¹¹Pour les états tels que $|m_j| = 1/2$, les interactions $np_{3/2}-(n-1)d_{3/2}$ et $np_{3/2}-(n-1)d_{5/2}$ sont comparables.

¹²De manière générale, dans un système à deux états $|\Psi_1\rangle$ et $|\Psi_2\rangle$ d'énergies E_1 et E_2 couplés par une perturbation W , la diagonalisation du système conduit à deux nouveaux états propres $|+\rangle$ et $|-\rangle$

$$|+\rangle = \cos\left(\frac{\theta}{2}\right)e^{-i\phi/2}|\Psi_1\rangle + \sin\left(\frac{\theta}{2}\right)e^{i\phi/2}|\Psi_2\rangle \quad (1.43)$$

$$|-\rangle = -\sin\left(\frac{\theta}{2}\right)e^{-i\phi/2}|\Psi_1\rangle + \cos\left(\frac{\theta}{2}\right)e^{i\phi/2}|\Psi_2\rangle \quad (1.44)$$

d'énergies propres E_+ et E_- :

$$E_{|+\rangle} = \frac{E_1 + E_2}{2} + \frac{\Delta}{2} \sqrt{1 + (\tan \theta)^2} \quad (1.45)$$

$$E_{|-\rangle} = \frac{E_1 + E_2}{2} - \frac{\Delta}{2} \sqrt{1 + (\tan \theta)^2} \quad (1.46)$$

Où $\Delta = E_1 - E_2$, $\tan \theta = \frac{|W_{12}|}{\Delta/2}$, $e^{i\phi} = \frac{W_{12}}{|W_{12}|}$, W_{12} et W_{21} sont les éléments de la matrice de couplage (W_{11} et W_{22} étant supposés nuls).

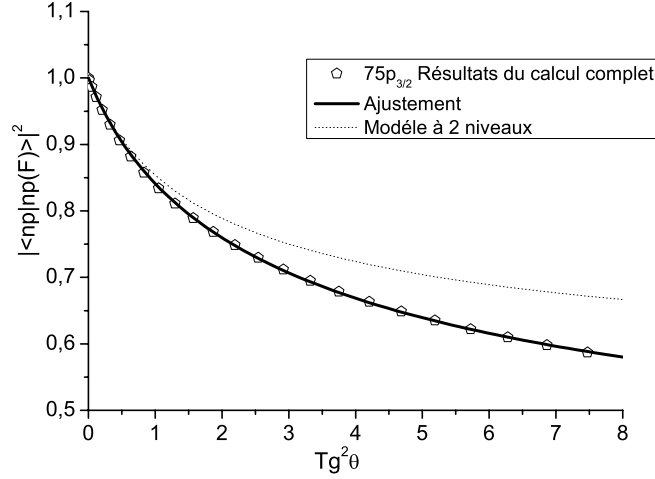


FIG. 1.7 – Projection $|\langle 75p_{3/2}|75p_{3/2}(F)\rangle|^2$ de l'état $75p_{3/2}(F)$ sur l'état non perturbé $75p_{3/2}$. Le résultat du calcul complet est ajusté avec les deux premiers termes de l'expansion (1.52) en utilisant les paramètres $P_1 = 0,95$ et $P_2 = 0,94$. Ce résultat est comparé au modèle à 2 niveaux.

$$|np(F)\rangle = \cos\left(\frac{\theta}{2}\right)|np\rangle - \sin\left(\frac{\theta}{2}\right)|nd\rangle \quad (1.49)$$

$$|nd(F)\rangle = \cos\left(\frac{\theta}{2}\right)|nd\rangle + \sin\left(\frac{\theta}{2}\right)|np\rangle \quad (1.50)$$

La projection de l'état $|np(F)\rangle$ sur l'état $|np\rangle$ est alors telle que :

$$|\langle np|np(F)\rangle|^2 = \cos^2\left(\frac{\theta}{2}\right) = \frac{1 + \frac{1}{\sqrt{1+\tan^2\theta}}}{2}. \quad (1.51)$$

En champ électrique faible, $|\langle np|np(F)\rangle|^2 \approx 1 - \frac{\tan^2\theta}{4}$.

On compare, sur la figure 1.7, les états d'énergie et fonctions d'onde dans l'approximation à 2 niveaux et ceux obtenus avec un calcul numérique complet. Le modèle à 2 niveaux constitue une relativement bonne approximation pour $(\tan\theta(n))^2 < 1$. Ensuite, les couplages avec les autres états deviennent non négligeables, en premier lieu avec les états s adjacents ou l'état $d_{3/2}$ (voir figure 1.8). On notera que le paramètre de couplage $\tan^2\theta$ utilisé dans les figures 1.7, 1.8 et 1.9 permet d'obtenir une loi de variation des fonctions d'onde valable pour tout n , et permet donc d'établir une loi d'échelle (voir figure 1.9). De fait, la formule euristique suivante reproduit fidèlement le couplage $|\langle np|np(F)\rangle|^2$ en champ électrique :

$$|\langle np|np(F)\rangle|^2 = 1 - P_1 \sin^2\frac{\theta}{2} - P_2 \sin^4\frac{\theta}{2} - \dots \quad (1.52)$$

où la dépendance en fonction de $\tan^2\theta$ est contenue dans le terme $\sin^2\frac{\theta}{2}$. P_1 et P_2 sont des paramètres ajustables donnés dans la légende de la figure 1.7 pour le cas des états $np_{3/2}$.

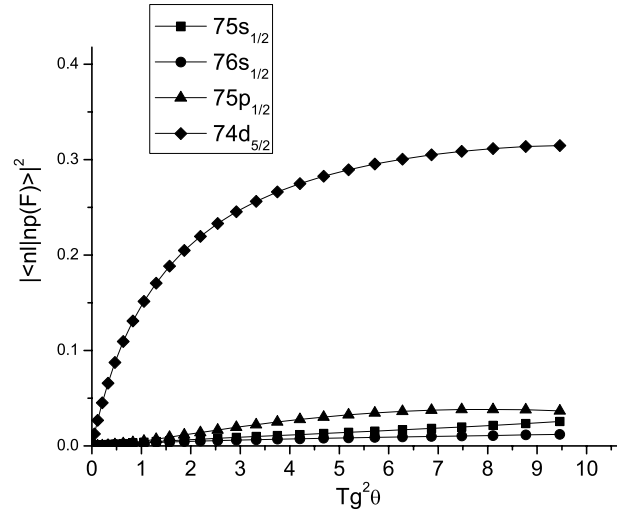


FIG. 1.8 – Principaux termes $|\langle nlj|np_{3/2}(F)\rangle|^2$ de la décomposition de l'état $np_{3/2}(F)$ sur les états nlj (hormis l'état $np_{3/2}$) de la base non perturbée. On note la prépondérance de l'état $nd_{5/2}$.

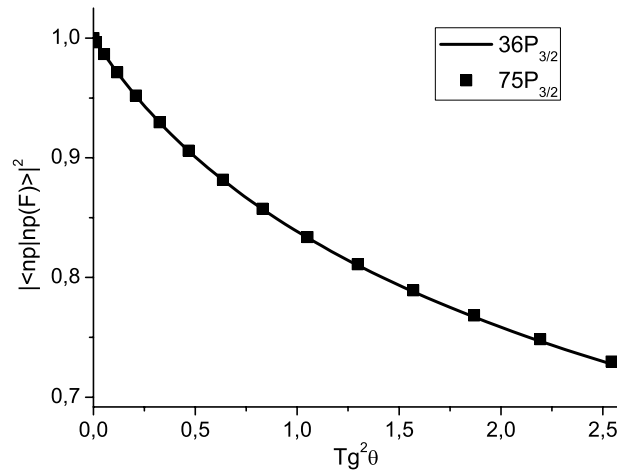


FIG. 1.9 – Projection $|\langle np_{3/2}|np_{3/2}(F)\rangle|^2$ de l'état Stark $np_{3/2}(F)$ sur l'état non perturbé $np_{3/2}$, pour $n=36$ et $n=75$. Le paramètre $\tan^2 \theta$ apparaît comme un bon moyen de caractériser le comportement des différents états Rydberg en champ électrique.

1.3.2.2 Le couplage $np-(n-1)d$, une configuration modèle de l'interaction dipôle-dipôle

Un champ électrique statique couple les états nl entre eux lorsque $\Delta l = \pm 1$ et $\Delta m_j = 0$. Nous avons vu qu'il est possible de préparer un état Stark en champ électrique statique $|np_j m_j(F)\rangle$ avec $|m_j| = 1/2$, s'exprimant en première approximation sous la forme¹³ :

$$|np_j, m_j(F)\rangle = \cos\left(\frac{\theta}{2}\right)|np_j, m_j\rangle + \sin\left(\frac{\theta}{2}\right)|nd_j, m_j\rangle \quad (1.53)$$

$$(1.54)$$

Considérons maintenant l'excitation par laser d'un atome isolé dans l'état $|np_j(F)\rangle$ depuis l'état $|7s_{1/2}, m_j = \pm 1/2\rangle$ du césium (état de polarisation non connu). La polarisation du champ exciteur est supposée linéaire parallèle au champ statique, lui-même orienté suivant (Oz) (l'axe de quantification), ce qui sera le cas dans nos expériences.

Sans interaction dipôle-dipôle, les états d'excitations accessibles appartiennent au sous-espace \mathcal{S} comprenant les états $p_+p_+ \equiv |np_j(F), m_{j_a} = 1/2\rangle|np_j(F), m_{j_b} = 1/2\rangle$, $p_-p_- \equiv |np_j(F), m_{j_a} = -1/2\rangle|np_j(F), m_{j_b} = -1/2\rangle$, $p_-p_+ \equiv |np_j(F), m_{j_a} = -1/2\rangle|np_j(F), m_{j_b} = 1/2\rangle$ et $p_+p_- \equiv |np_j(F), m_{j_a} = +1/2\rangle|np_j(F), m_{j_b} = -1/2\rangle$. L'interaction dipôle-dipôle couple tous les états m_j entre eux, soit $\Delta m_{j_a} = +1$ et $\Delta m_{j_b} = -1$ et inversement, $\Delta m_{j_a} = +1$ et $\Delta m_{j_b} = 0$ et inversement, soit $\Delta m_j = +1$ pour les deux atomes, soit encore $\Delta m_j = -1$ ou enfin $\Delta m_j = 0$ pour les deux atomes. Des états avec $m_j = \pm 3/2$ doivent être inclus dans la détermination de l'opérateur dipôle-dipôle (tous les autres états, vérifiant par exemple $j_a \neq j'_a$ sont beaucoup trop décalés énergétiquement pour qu'il soit nécessaire de les prendre en compte).

En champ suffisamment élevé, l'écart d'énergie entre les niveaux $|np_j(F), |m_j| = 1/2\rangle$ et $|np_j(F), |m_j| = 3/2\rangle$ devient important et l'influence des états $|np_j(F), |m_j| = 3/2\rangle$ est supposée négligeable. Les seuls états à prendre en compte sont alors les états du sous-espace \mathcal{S} , p_+p_+ , p_-p_- , p_-p_+ et p_+p_- . Nous montrons dans l'annexe¹⁴ A que dans ce système, l'interaction dipôle-dipôle couple chacun des états uniquement à lui-même. La matrice d'interaction dipôle-dipôle est diagonale, et chacun des termes diagonaux a la valeur d'énergie suivante¹⁵ :

$$E_{|np(F), np(F)} = (\sin \theta)^2 \frac{\mu_{pd}^2 (1 - 3 \cos^2 \Theta)}{R^3} \quad (1.55)$$

où μ_{pd} est le moment dipolaire électrique de la transition $|np_j, |m_j| = 1/2\rangle \rightarrow |nd_j, |m_j| = 1/2\rangle$, Θ est l'angle entre l'axe internucléaire et l'axe du champ électrique et R est la distance internucléaire.

De ce fait, la correction à l'énergie que nous avons trouvée est la correction exacte, elle se confond dans ce système avec la correction à l'ordre (1). Les fonctions propres sont quant à elles inchangées dans le sous-espace \mathcal{S} .

¹³Pour plus de précision, il est possible de remplacer cette expression par une décomposition plus complète sur l'ensemble des états, à savoir principalement les états $|np_{3/2}\rangle$, $|np_{1/2}\rangle$, $|nd_{5/2}\rangle$, $|nd_{3/2}\rangle$, $|ns_{1/2}\rangle$ et $|(n+1)s_{1/2}\rangle$. On peut remplacer $\cos(\frac{\theta}{2})$ et $\sin(\frac{\theta}{2})$ par les valeurs plus exactes $Ap(\theta)$ et $Ad(\theta)$ rencontrées au chap. 1.3.2.1.. La projection de l'état Stark $|np_{3/2}(F)\rangle$ sur les états $|ns_{1/2}\rangle$ et $|(n+1)s_{1/2}\rangle$ reste très faible.

¹⁴Le calcul effectué dans cette annexe est basé sur une analyse tensorielle de l'interaction dipôle-dipôle adaptée au cas des atomes de Rydberg dans la thèse de D. Comparat [Comparat, 1999].

¹⁵Pour plus de précision, il faut remplacer $(\sin \theta)^2$ par $4Ap(\theta)Ad(\theta)$ (cf note 13)

On retrouve ici le terme d'interaction dipôle-dipôle classique, les deux moments dipolaires étant alignés suivant un axe privilégié faisant un angle Θ avec l'axe internucléaire :

$$V_{dd}^{cl}(\Theta) = \frac{\mu_A \mu_B (1 - 3 \cos^2 \Theta)}{R^3} \quad (1.56)$$

$$\text{où } \mu_A = \langle np(F) | Z_A | np(F) \rangle = \sin \theta \mu_{pd} = \mu_B = \langle np(F) | Z_B | np(F) \rangle$$

L'analyse de l'interaction dipôle-dipôle en champ électrique a été restreinte au sous-espace \mathcal{S} . Les corrections à l'ordre 2 dues à d'autres états tels que $|nd(F), nd(F)\rangle$, $\frac{1}{\sqrt{2}}(|np(F), nd(F)\rangle + |nd(F), np(F)\rangle)$ et $\frac{1}{\sqrt{2}}(|np(F), nd(F)\rangle - |nd(F), np(F)\rangle)$ sont négligeables car ces niveaux sont très éloignés. Par contre, considérer les états avec $m_{j_a} = 3/2$ ou/et $m_{j_b} = 3/2$ est nécessaire en champ faible. Dans ce cas, l'interaction ne conserve plus l'expression simple (1.56) mais les termes principaux de l'interaction restent les termes diagonaux.

Interaction dans une assemblée d'atomes

L'interaction dipôle-dipôle en champ électrique est très anisotrope (cf formule (1.56)). Il existe même une direction donnée par $\Theta = \arccos(\frac{\sqrt{3}}{3}) = 54.74^\circ$ où cette interaction s'annule. Dans un ensemble d'atomes nous sommes intéressés plus souvent par une valeur moyenne du couplage possible entre deux atomes distants d'une distance R . Cette moyenne est à effectuer suivant toutes les directions possibles Θ et ϕ (le couplage ne dépend pas de ϕ).

Moyennée suivant toute les directions possibles, en supposant une excitation isotrope, cette interaction devient :

$$\overline{E_{|np(F), np(F)\rangle}} = \int_0^\pi (\sin \theta)^2 \frac{\mu_{pd}^2 (1 - 3 \cos^2 \Theta)}{R^3} \frac{\sin \Theta}{2} d\Theta = 0 \quad (1.57)$$

Dans ce cas, le décalage énergétique dû à l'interaction dipôle-dipôle est pour certaines directions, positif, pour d'autres négatif, mais en moyenne nul.

Dans les expériences sur le blocage dipolaire de l'excitation, nous sommes sensibles à la valeur absolue du décalage énergétique dû à l'interaction dipôle-dipôle : pour une paire d'atomes, l'excitation d'un deuxième atome est bloquée si le décalage d'énergie est suffisant, qu'il soit positif ou négatif. Pour faire une évaluation appropriée du couplage dipôle-dipôle, il convient de moyennner la valeur absolue $|E_{|np(F), np(F)\rangle}|$:

$$\overline{|E_{|np(F), np(F)\rangle}|} = \int_0^\pi (\sin \theta)^2 \left| \frac{\mu_{pd}^2 (1 - 3 \cos^2 \Theta)}{R^3} \right| \frac{\sin \Theta}{2} d\Theta = (\sin \theta)^2 \frac{4}{3\sqrt{3}} \frac{\mu_{pd}^2}{R^3} \quad (1.58)$$

Nous réalisons en général l'excitation d'atomes de Rydberg dans un piège magnéto-optique depuis un état fortement lié. Les interactions entre atomes y sont faibles, les positions des atomes y sont donc en première approximation indépendantes les unes des autres, leur distribution spatiale est stochastique. La densité d'atomes dans cet état est notée η . Lorsque nous réalisons l'excitation d'un grand nombre d'atomes, il est souvent intéressant de connaître l'interaction possible entre un atome et son plus proche voisin. La distance internucléaire R_m moyenne entre deux atomes est reliée à la densité η d'atomes :

$$R_m \approx 0.89 \times \left(\frac{4}{3} \pi \eta\right)^{-\frac{1}{3}} \quad (1.59)$$

Le facteur 0.89 provient de ce que la probabilité $dP(r)$ de trouver un plus proche voisin entre la distance r et la distance $r + dr$ autour d'un atome suit la loi de distribution d'Erlang¹⁶ $f(r)$:

$$dP(r) = 4\pi r^2 f(r) = \eta 4\pi r^2 e^{-\frac{4}{3}\pi r^3 \eta} dr \quad (1.61)$$

De ce fait, l'interaction dipôle-dipôle entre deux atomes séparés de la distance internucléaire moyenne R_m est très proche de la valeur usuellement utilisée $\frac{\mu_A \mu_B}{R_d^3}$ où R_d est relié à la densité via $R_d = (\frac{4}{3}\pi\eta)^{-\frac{1}{3}}$. Elle vaut plus exactement¹⁷ :

$$W_m \approx 1.09 \frac{(\sin \theta \mu_{pd})^2}{R_d^3} \quad (1.62)$$

Il semble finalement possible de contrôler de façon aisée l'interaction dipôle-dipôle en champ électrique, simplement via le facteur θ . L'interaction dipôle-dipôle entre deux atomes est proportionnelle à n^4 , et moyennant un contrôle précis de l'excitation (les forces d'oscillateur caractérisant la probabilité d'excitation varient en n^{-3}), un effet important en fonction de n peut être observé. Ce contrôle de l'interaction dipôle-dipôle par champ électrique a permis une étude expérimentale précise du blocage dipolaire et les résultats principaux, expérimentaux et théoriques, sont reportés au chapitre 4.

1.3.2.3 Les forces dipolaires en champ électrique

La description utilisée jusqu'à présent est statique, nous ne prenons pas en compte un éventuel couplage entre l'interaction dipôle-dipôle et le mouvement relatif entre les deux atomes. L'interaction dipôle-dipôle est en fait susceptible de créer une force mutuelle entre les atomes et dans le cas d'une force attractive de produire une collision des deux atomes avec des temps caractéristiques de l'ordre de quelques microsecondes s'ils sont initialement séparés de quelques micromètres [Robicheaux, 2005].

En se souvenant du théorème d'Ehrenfest, la "force" dipolaire à prendre en compte dans le mouvement relatif des atomes A et B est égale à $-\langle \vec{\nabla} V(\vec{R}) \rangle$ avec $\vec{R} = (R, \Theta, 0)$ en coordonnées cylindriques :

$$-\langle \vec{\nabla} V_{dd}(\vec{R}) \rangle = -\frac{3 e^2 \mu_A \mu_B}{R^4} (-(1 - 3 \cos^2 \Theta) \vec{u}_R + \sin(2\Theta) \vec{u}_\Theta) \quad (1.63)$$

Cette expression est valable dans le cadre de l'approximation de Born Oppenheimer, le mouvement des électrons étant supposé découplé du mouvement relatif des deux atomes. Le premier

¹⁶La distribution d'Erlang se démontre pour un ensemble d'atomes indépendants et uniformément répartis dans un volume de grandes dimensions par rapport à la distance interatomique. En pratique, cette distribution est quasi nulle pour $r > 2, 2R_d$ où R_d est relié à la densité atomique via $R_d = (\frac{4}{3}\pi\eta)^{-\frac{1}{3}}$. Elle constitue une très bonne approximation dans nos systèmes d'atomes n'interagissant que très peu dans l'état fondamental. Démontrée pour la première fois par Hertz en 1909 [Torquato et al., 1990b], elle est utilisée dans de nombreux domaines, notamment en théorie de l'information. De manière générale, la densité de probabilité de présence $4\pi r^2 f(r, k)$ d'un k -ième plus proche voisin à une distance r d'une première entité (un atome par exemple) est donnée par la distribution d'Erlang $f(r, k)$ [Ji Ina, 2004] :

$$f(r, k) = \frac{3}{4\pi k!} \frac{(r^3)^{k-1}}{(R_d^3)^k} e^{-\left(\frac{r}{R_d}\right)^3} \quad (1.60)$$

Des lois de distribution plus sophistiquées ont été élaborées dans le cas d'atomes ou particules apparentés à des sphères dures mais ne s'appliquent pas forcément à notre système [Torquato et al., 1990a].

¹⁷Plutôt que de prendre la valeur

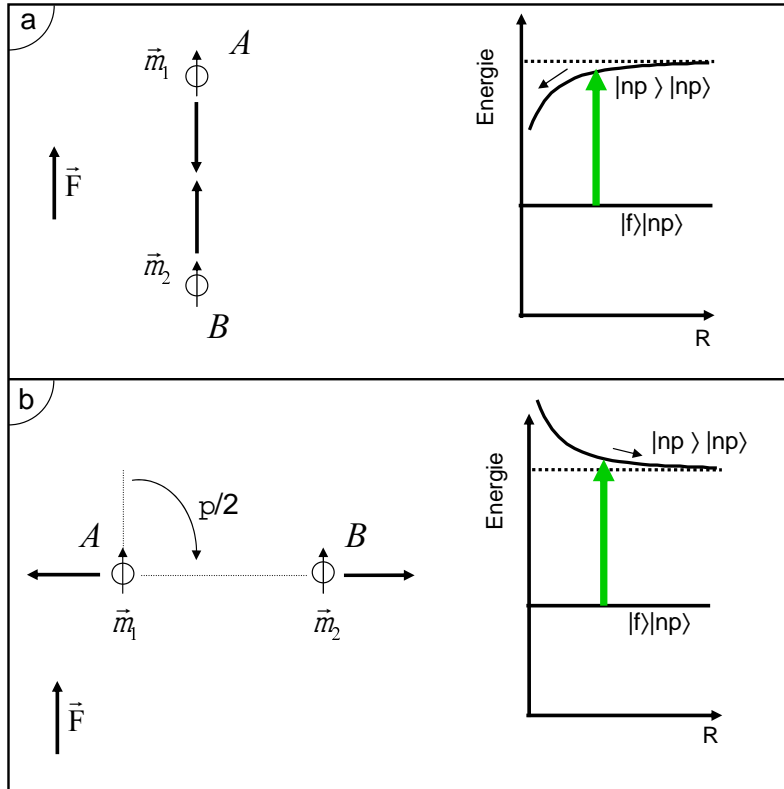


FIG. 1.10 – Deux configurations différentes d'interaction dipôle-dipôle. Les deux atomes en champ électrique sont supposés avoir des dipôles permanents μ_1 et μ_2 alignés sur le champ électrique \vec{F} . L'interaction dipôle-dipôle est supposée être de la forme $\frac{\mu_1 \mu_2}{R^3}(1 - 3 \cos^2 \Theta)$. Les schémas d'excitation possibles depuis un état $|f\rangle|np\rangle$ sont représentés sur la droite. (a) $\Theta = 0$ ou π . L'interaction est attractive, la force radiale dérivant de l'interaction dipôle-dipôle tend à rapprocher les deux atomes. (b) $\Theta = \pi/2$ ou $3\pi/2$. L'interaction est répulsive, la force radiale dérivant de l'interaction dipôle-dipôle tend à éloigner les deux atomes.

terme est un terme caractérisant une force centrale. Il est égal à $-\frac{d}{dR} E_{|np(F),np(F)} \vec{u}_R$. On distinguera les deux axes particuliers $\Theta = 0$ et $\Theta = \pi/2$ (cf Fig. 1.10). Si l'axe internucléaire est perpendiculaire à la direction des dipôles ($\Theta = \pi/2$), cette force est à son maximum algébrique, elle est répulsive. Par contre, si l'axe internucléaire est parallèle à l'orientation des dipôles ($\Theta = 0$), cette force est à son minimum algébrique, elle est attractive et peut conduire à un processus de collision.

Le deuxième terme conduit à une rotation des deux atomes autour du centre de masse. Il admet deux positions d'équilibre qui sont les axes mentionnés précédemment, $\Theta = 0$ ou $\Theta = \pi/2$. Cet équilibre est stable si $\Theta = 0$, i.e quand les dipôles sont alignés suivant l'axe internucléaire. Par contre, il est instable si $\Theta = \pi/2$. Les atomes ont donc tendance à vouloir s'aligner suivant $\Theta = 0$ au cours du temps. Le premier terme deviendrait ainsi en moyenne attractif au cours du temps. Il est cependant nécessaire d'étudier proprement la trajectoire des atomes sous l'effet des forces dipolaires, pour pouvoir établir quand une collision est possible.

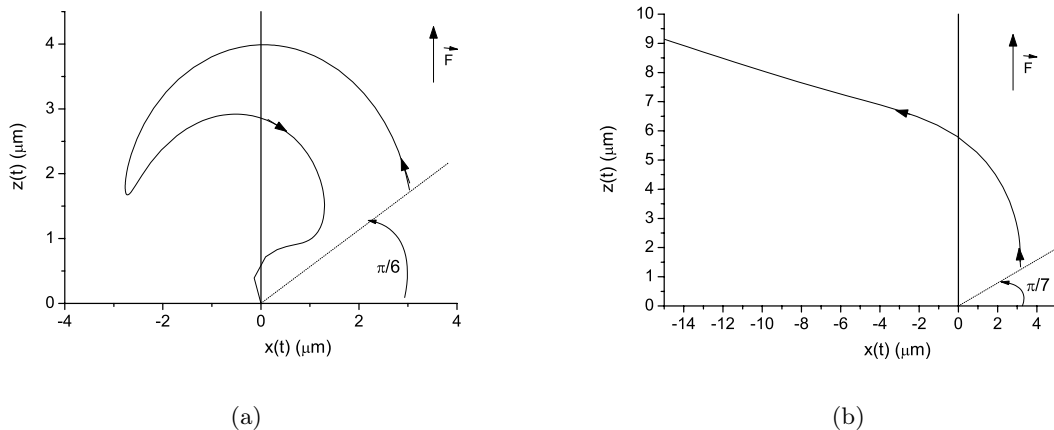


FIG. 1.11 – Trajectoire du mouvement relatif de deux atomes sous l'effet des forces dipolaires en champ électrique, pour deux orientations différentes Θ de l'axe internucléaire par rapport à l'axe du champ électrique. Les atomes sont supposés distants au départ de $4 \mu\text{m}$ (voir texte pour le choix exact du couplage dipôle-dipôle) (a) Cas attractif : $\Theta = \pi/2 - \pi/6$ (b) Cas répulsif : $\Theta = \pi/2 - \pi/7$

La trajectoire est calculée dans deux cas particuliers¹⁸ sur la figure 1.11(a) pour deux atomes initialement distants de $r_0 = 4 \mu\text{m}$ et une interaction dipôle-dipôle en champ électrique calculée en supposant $v_{dd0} = \frac{\mu_A \mu_B}{r_0^3} = 6 \text{ MHz}$. Pour $\Theta > \pi/2 - \pi/6$, les deux atomes se repoussent alors que pour $\Theta \leq \pi/2 - \pi/6$, la trajectoire est attractive et peut être assez compliquée. La trajectoire conduit dans le cas $\Theta = \pi/2 - \pi/6$ (cf Fig. 1.11(a)) à une collision après un temps d'environ $110 \mu\text{s}$. Le temps minimum de collision, inférieur à $10 \mu\text{s}$ est obtenu pour $\Theta = 0$.

Cette description est bien sûr très succincte, mais elle met en évidence l'importance des forces dipolaires dans les systèmes d'atomes de Rydberg. Une description moléculaire plus complète ferait intervenir les coefficients de dispersion à des ordres supérieurs (interaction dipôle-dipôle incluant d'autres états, interaction dipôle-quadrupôle...). La possibilité de former des systèmes moléculaire stables (avec la combinaison d'une interaction attractive à longue portée et d'une interaction répulsive à courte portée) sera plus particulièrement étudiée dans la section 2.4.

1.3.3 Mélange d'atomes dans des états de moments cinétiques l différents

Un autre moyen d'obtenir une interaction du type dipôle-dipôle résonante est de mettre en présence deux atomes dans des états de l différents ($\Delta l = \pm 1$). Pratiquement, il est nécessaire d'utiliser deux voies d'excitation différentes. Pour fixer les idées, considérons l'exemple où un des atomes est excité (en champ électrique nul) dans un état $|ns\rangle$ et l'autre dans un état $|n'p\rangle$.

La détermination du hamiltonien d'interaction dipôle-dipôle exact devrait tenir compte des sous-niveaux $|ns_{1/2}, m_j = \pm 1/2\rangle$, $|np_{3/2}, m_j = \pm 1/2\rangle$ et $|np_{3/2}, m_j = \pm 3/2\rangle$. Il est supposé

¹⁸L'équation de la trajectoire $\vec{r} = (r(t), \Theta(t))$ est donnée par :

$$\frac{d^2 \vec{r}}{dt^2} = \begin{vmatrix} \ddot{r} - r\dot{\Theta}^2 \\ 2\dot{r}\dot{\Theta} + r\ddot{\Theta} \end{vmatrix} = \frac{v_{dd0}}{m_C s/2} \frac{3}{r^4/r_0^3} \begin{vmatrix} 1 - 3\cos^2 \Theta \\ -\sin 2\Theta \end{vmatrix}$$

pour simplifier que le système peut se ramener dans une bonne approximation à un système à 2 états notés $|sp\rangle \equiv |ns\rangle \otimes |np\rangle$ et $|ps\rangle \equiv |np\rangle \otimes |ns\rangle$. Ces deux états (dégénérés en l'absence d'interaction entre les atomes) sont couplés par l'hamiltonien d'interaction dipôle-dipôle suivant :

$$\mathcal{H} = \begin{pmatrix} 0 & V(R) \\ V(R) & 0 \end{pmatrix} \quad (1.64)$$

où $V(R) = \frac{\mu_{sp}^2}{R^3}$ est l'élément de matrice du couplage dipôle-dipôle entre les états $|ns\rangle$ et $|n'p\rangle$, μ_{sp} étant le moment dipolaire de transition. L'espace est ici restreint aux états $|sp\rangle$ et $|ps\rangle$.

Ce couplage permet de réaliser la réaction d'échange $sp \leftrightarrow ps$. Les deux états propres sont les états $|+\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|sp\rangle + |ps\rangle)$ d'énergie $\frac{\mu_{sp}^2}{R^3}$ et $|-\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|sp\rangle - |ps\rangle)$ d'énergie $-\frac{\mu_{sp}^2}{R^3}$. L'état $|+\rangle$ est un état répulsif (idem au cas b de la Fig. 1.10). Les deux atomes d'une paire d'atomes excitée dans cet état exercent mutuellement une force répulsive. Au contraire l'état $|-\rangle$ est attractif.

Cette configuration d'interaction dipôle-dipôle intervient de manière indirecte dans les processus de transferts résonants entre atomes froids décrits dans la section 1.3.4.2. Plus directement, elle a permis récemment de mettre en évidence un élargissement des raies d'excitation microonde¹⁹ à partir d'un nuage composé initialement d'un mélange d'atomes de rubidium dans des états de Rydberg np et $n'd$ [Afrousheh et al., 2004].

1.3.4 Interaction dipôle-dipôle à résonance collisionnelle : le transfert résonant d'excitation ou procédé Förster

L'étude de l'interaction dipôle-dipôle en champ électrique a été volontairement restreinte aux multiplets d'états np_j et $(n-1)d_j$. La prise en compte d'autres états $|n'l'j'\rangle$ fait cependant apparaître l'état $|ns_{1/2}(F), (n+1)s_{1/2}(F)\rangle$, lui-même quasi-résonant avec l'état $|np_{3/2}(F), np_{3/2}(F)\rangle$. Pour une évaluation plus exacte de l'interaction dipôle-dipôle en champ électrique, il est nécessaire d'en tenir compte. Le niveau d'énergie $np_{3/2}$ est en effet situé presque à "mi-chemin" entre les niveaux d'énergie $ns_{1/2}$ et $(n+1)s_{1/2}$. La Fig. 1.12 montre l'écart énergétique entre les niveaux $|ns_{1/2}, (n+1)s_{1/2}\rangle$ et $|np_{3/2}, np_{3/2}\rangle$ en champ nul. Il part d'une valeur négative pour $n < 42$ et croît pour atteindre un maximum pour $n \approx 55$ qui cependant reste toujours inférieur à 250 MHz. Il passe par une valeur quasi nulle pour $n = 42$ (~ -9.6 MHz).

Deux atomes dans l'état $np_{3/2}(F)$ ont donc une énergie très proche de celle de deux atomes, l'un dans l'état $ns_{1/2}(F)$ et l'autre dans l'état $(n+1)s_{1/2}(F)$. Du fait du comportement différent des niveaux d'énergie $ns_{1/2}(F)$ et $np_{3/2}(F)$ en champ électrique, des conditions de résonance à deux corps peuvent être obtenues : pour un champ électrique particulier, l'état $|np_{3/2}(F), np_{3/2}(F)\rangle$ peut avoir exactement la même énergie que l'état $|ns_{1/2}(F), (n+1)s_{1/2}(F)\rangle$ (voir Fig. 1.13). Nous allons voir qu'à cette résonance, la dégénérescence de ces deux niveaux d'énergie est levée par l'interaction dipôle-dipôle. Nous appellerons cette résonance, résonance de Förster en référence au procédé Förster, désignant de façon générale tout échange résonnant d'énergie électronique. Ce procédé est utilisé notamment dans la technique FRET (Förster ou Fluorescence Resonance Energy Transfer).

La technique FRET est usuellement utilisée en biologie pour déterminer de faibles distances entre des molécules et observer leur dynamique (voir [Rajesh and Periasamy, 2003]

¹⁹L'excitation par microonde vers un autre état Rydberg est utilisée comme sonde de la distribution des niveaux d'énergie.

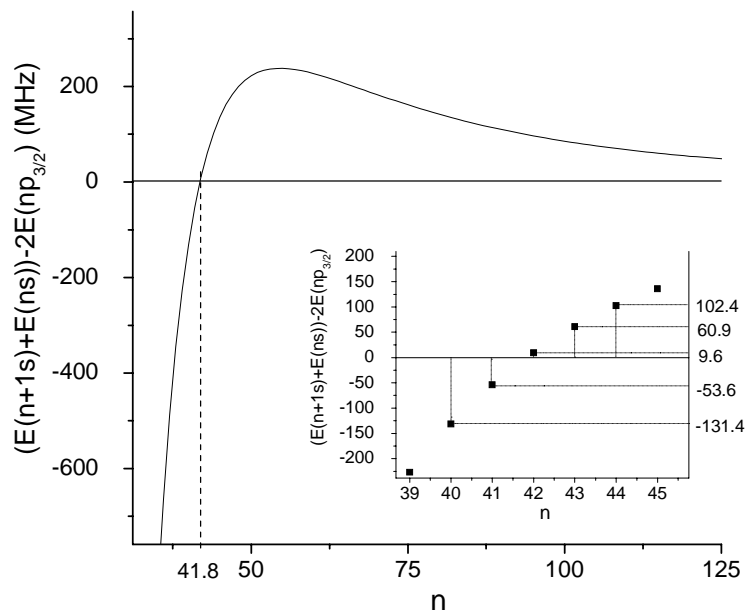


FIG. 1.12 – Ecart d'énergie $\delta_{ss'pp}$ entre les niveaux $|ns(n+1)s\rangle$ et $|np_{3/2}np_{3/2}\rangle$ pour le césium en champ électrique nul, en fonction de n . Les défauts quantiques sont extraits de [Weber and Sansonetti, 1987]. On voit que pour $n > 41$, le niveau d'énergie $ns(n+1)s$ est situé au-dessus du niveau $|np_{3/2}np_{3/2}\rangle$, mais cet écart énergétique reste toujours très faible (< 238 MHz). Dans l'encart : écart d'énergie $\delta_{ss'pp}$ en MHz pour n voisin de 42.

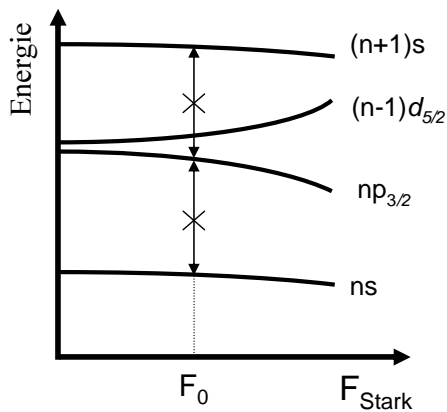


FIG. 1.13 – Schéma des niveaux d'énergie $np_{3/2}$, $(n-1)d_{5/2}$, ns et $(n+1)s$ en champ électrique. Seules les courbes avec $|m_j| = 1/2$ sont dessinées. La résonance de collision (1.67) est obtenue pour un champ électrique F_0 tel que le niveau Stark $np_{3/2}$ soit situé exactement à mi-chemin entre les niveaux ns et $(n+1)s$.

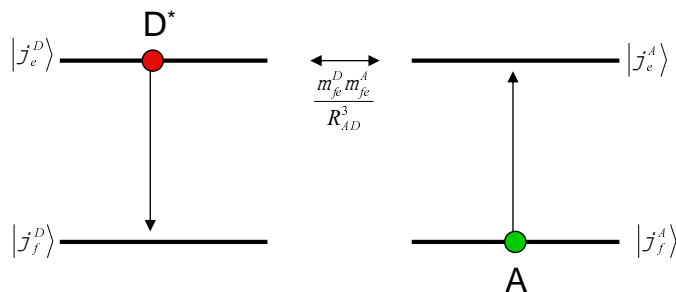
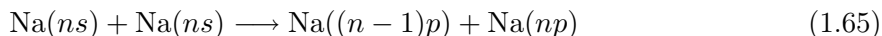


FIG. 1.14 – Description schématique du procédé Förster. Un donneur, excité au départ, transfère son excitation à un accepteur (au départ non excité) par interaction dipôle-dipôle.

pour une revue de la technique FRET). Cette technique est basée sur le transfert résonant d'excitation entre deux molécules via l'interaction dipôle-dipôle, évoqué pour la première fois par Théodore Förster [Förster, 1948, Förster, 1965]. Le schéma du transfert est reproduit Fig. 1.14. Un donneur fluorescent D est excité à une longueur d'onde spécifique. Par un couplage dipôle-dipôle à longue portée, $\sim \frac{\mu_{ef}^D \mu_{ef}^A}{R^3}$ avec μ_{ef}^D et μ_{ef}^A les moments dipolaires relatifs aux transitions $\varphi_e^D \rightarrow \varphi_f^D$ et $\varphi_f^A \rightarrow \varphi_e^A$, cette excitation est transférée du donneur D à un accepteur A de manière non radiative : le donneur retourne dans l'état fondamental alors que l'accepteur est porté dans un état excité. Ce mécanisme nécessite qu'il y ait une coïncidence entre des niveaux d'énergie du donneur et de l'accepteur, et que ces deux molécules soient suffisamment proches pour interagir via l'interaction dipôle-dipôle. Par la suite, l'accepteur se désexcite spontanément et préférentiellement dans une gamme de longueur d'ondes différentes par rapport au spectre d'émission du donneur. En pratique, donneurs et accepteurs sont "accrochés" à d'autres molécules, des protéines par exemple, dont on veut observer la dynamique. Lorsque deux molécules, l'une avec un donneur, l'autre avec un accepteur s'approchent l'une de l'autre, à des distances de quelques nanomètres typiquement, le spectre de fluorescence observé s'en trouve modifié.

Le transfert résonant d'énergie a eu d'importantes implications dans un autre domaine de la physique, celui des lasers. Il joue notamment un rôle important dans de nombreux lasers à gaz. Pour le laser He-Ne, l'inversion de population pour le néon est obtenue grâce aux collisions résonantes avec l'hélium. Pour le laser CO₂, les collisions avec transfert résonant d'énergie vibrationnelle ont lieu avec N₂.

L'utilisation d'états de Rydberg a permis une étude systématique du transfert résonant d'énergie interne, en raison du grand nombre d'états accessibles, multipliant les possibilités de mise à résonance de niveaux d'énergie lors de collisions. Les très grands dipôles, $\propto n^2$, rendent également très efficaces de tels transfert par interaction dipôle-dipôle. Une des premières expériences ayant mis en évidence ce transfert d'énergie pour des états de Rydberg atomiques a été effectuée sur le sodium [Safinya et al., 1981]. Pour le sodium, l'état ns se situe presque à mi-chemin entre les états np et $(n+1)p$ dans le diagramme énergétique. En ajustant le champ électrique, la réaction suivante devient résonante:



Dans cette expérience, les atomes de sodium d'un jet atomique sont excités vers l'état Rydberg $17s$. En présence d'un champ électrique statique, le transfert résonant d'excitation (1.65) peut

avoir lieu au cours des collisions binaires (d'où le terme de résonance collisionnelle). Après un temps de quelques microsecondes, un transfert de quelques pourcents vers l'état $17p$ était ainsi observé. Ce processus a pu être appliqué à l'étude des collisions résonantes assistées radiativement par champ microonde [Pillet et al., 1983].

Dans les paragraphes suivants, nous introduisons le transfert résonant d'excitation par l'étude des collisions résonantes entre atomes de Rydberg. Ensuite, nous détaillons le transfert résonant d'excitation dans un gaz d'atomes froids, notamment une expérience réalisée au laboratoire Aimé Cotton mettant en évidence la présence d'interactions à N corps [Mourachko et al., 1998].

1.3.4.1 Collisions résonantes

L'analyse des collisions résonantes observées dans des jets thermiques d'atomes de Rydberg est développée dans les références [Gallagher, 1992, Pillet, 2005]. Nous rappelons quelques résultats expérimentaux relatifs au césium.

Des atomes excités dans l'état $np_{3/2}$ échangent de façon résonante leur énergie interne au cours de collisions binaires en présence d'un champ électrique statique suivant la réaction :



Lorsque l'excitation des sous-niveaux Zeeman n'est pas résolue (les niveaux d'énergie en champ électrique statique sont caractérisés par le nombre quantique $|m_j|$), les trois réactions suivantes sont attendues pour trois champs différents :

$$A : \text{Cs}(np_{3/2}, |m_j| = \frac{1}{2}) + \text{Cs}(np_{3/2}, |m_j| = \frac{1}{2}) \longrightarrow \text{Cs}(ns) + \text{Cs}((n+1)s) \quad (1.67)$$

$$B : \text{Cs}(np_{3/2}, |m_j| = \frac{1}{2}) + \text{Cs}(np_{3/2}, |m_j| = \frac{3}{2}) \longrightarrow \text{Cs}(ns) + \text{Cs}((n+1)s) \quad (1.68)$$

$$C : \text{Cs}(np_{3/2}, |m_j| = \frac{3}{2}) + \text{Cs}(np_{3/2}, |m_j| = \frac{3}{2}) \longrightarrow \text{Cs}(ns) + \text{Cs}((n+1)s) \quad (1.69)$$

Les résultats expérimentaux de telles résonances sont présentés sur la figure 1.15. Considérant deux atomes 1 et 2, de vitesse relative \vec{v} , effectuant une collision de paramètre d'impact \vec{b} (cf Fig. 1.16), la distance interatomique est donnée par $\vec{R} = \vec{b} + \vec{v}t$ si la trajectoire des deux atomes est peu modifiée par la collision (la vitesse relative \vec{v} est supposée peu modifiée lors de la collision).

Les états produits à considérer pour décrire la collision sont les suivants²⁰ :

$$\begin{aligned} |\Psi_P\rangle &= |np_{3/2}\rangle_1 \otimes |np_{3/2}\rangle_2 \\ |\Psi_{SS}\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}}(|ns\rangle_1 \otimes |(n+1)s\rangle_2 + |(n+1)s\rangle_1 \otimes |ns\rangle_2) \\ |\Psi_{AS}\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}}(|ns\rangle_1 \otimes |(n+1)s\rangle_2 - |(n+1)s\rangle_1 \otimes |ns\rangle_2) \end{aligned} \quad (1.70)$$

²⁰Les états à prendre en compte sont en fait plus compliqués à décrire du fait de la dégénérescence en m négligée ici. L'expression exacte est donnée dans l'annexe A.

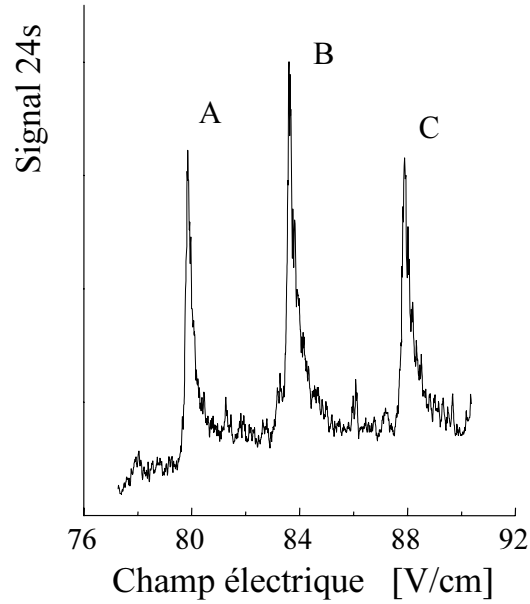


FIG. 1.15 – 3 résonances collisionnelles A, B et C correspondant aux réactions (1.67), (1.68) et (1.69). L'excitation d'atomes dans l'état $23p_{3/2}$ est réalisée avec un laser pulsé. Cette figure rapporte le nombre d'atomes transférés dans l'état $24s$ et détectés sélectivement, en fonction du champ électrique.

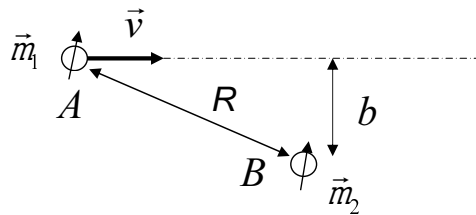


FIG. 1.16 – Schéma d'une collision dans laquelle les deux atomes auraient deux dipôles permanents μ_1 et μ_2 (pour le processus de transfert résonant d'énergie, les atomes n'ont pas forcément de moment dipolaire permanent). Les paramètres déterminant classiquement la collision sont la vitesse relative \vec{v} et le paramètre d'impact b .

Seul l'état symétrique $|\Psi_{SS}\rangle$ est couplé lors de la collision par l'hamiltonien d'interaction dipôle-dipôle V_{dd} car $\langle\Psi_{AS}|V_{dd}|\Psi_P\rangle = 0$. L'hamiltonien d'interaction s'écrit dans le système à 2 niveaux $|\Psi_{SS}\rangle$ et $|\Psi_P\rangle$:

$$V_{dd} = \begin{pmatrix} \Delta(F) & v_{dd} \\ v_{dd} & 0 \end{pmatrix} \quad (1.71)$$

où $\Delta(F)$ est l'écart d'énergie entre les niveaux $|\Psi_P\rangle$ et $|\Psi_{SS}\rangle$ (l'énergie de ce dernier niveau varie très peu au voisinage de la résonance de Förster). $v_{dd} = \frac{\sqrt{2}\mu_1\mu_2}{R^3}$ est l'élément de couplage dipôle-dipôle où $\mu_1 \equiv \mu_{s,p}$ et $\mu_2 \equiv \mu_{s',p}$ sont les moments dipolaires de transition $ns \leftrightarrow np_{3/2}$ et $(n+1)s \leftrightarrow np_{3/2}$. Le facteur $\sqrt{2}$ provient du fait que n'est considéré que l'état symétrique.

En posant $R = \sqrt{b^2 + v^2 t^2}$, le temps τ d'une collision de paramètre d'impact b à résonance de Förster ($\Delta(F_0) = 0$) est de l'ordre de :

$$\tau(b) = \frac{b}{v^2} \quad (1.72)$$

La probabilité P de transition de l'état $|\Psi_P\rangle$ vers l'état symétrique s'exprime en fonction du paramètre d'impact b , soit :

$$P(b) = |\langle\Psi_{SS}|\Psi(t \rightarrow \infty)\rangle|^2 = \sin^2 \left(\frac{\sqrt{2}\mu_1\mu_2}{b^2 v} \right) \quad (1.73)$$

La section efficace de collision se déduit de l'expression précédente :

$$\sigma = \int_0^\infty 2\pi b P(b) db = \frac{\pi^2 \sqrt{2}\mu_1\mu_2}{2v} \quad (1.74)$$

Le paramètre d'impact b_0 donnant la plus grande probabilité de transition, i.e $P(b_0) = 1$ est $b_0^2 \approx \frac{2}{\pi} \frac{\mu_1\mu_2}{v}$, la durée d'une collision conduisant au transfert d'excitation est donc de l'ordre de :

$$\tau = \frac{\mu_1\mu_2}{v^{3/2}} \quad (1.75)$$

En considérant $v \approx \langle v \rangle \approx \sqrt{2k_B T/M}$ dans un jet atomique de césium avec une température de l'ordre de 300 K, soit $\langle v \rangle \approx 200$ m/s, nous obtenons les paramètres de collision suivants : $b_0 \approx 1.5 \mu\text{m}$ et $\tau \approx 7.5$ ns.

Dans le cas où l'excitation est réalisée en piège magnéto-optique (PMO) de césium, la température des atomes est typiquement de l'ordre de 100 μK , reliée à la vitesse $\langle v \rangle$ des atomes par $T = \frac{\pi M \langle v \rangle^2}{8k_B}$, ce qui conduit à $\langle v \rangle$ de l'ordre de 10 cm/s et à un très grand paramètre d'impact $b_0 \approx 60 \mu\text{m}$, proche de la taille du nuage atomique. A priori, des processus à N corps sont donc possibles. Par ailleurs, le temps caractéristique d'une telle collision assure $\tau \approx 500 \mu\text{s}$, ce qui est bien plus grand que le temps de vie des niveaux de Rydberg considérés. Durant les temps d'expérience, $\sim 0 - 3 \mu\text{s}$, les déplacements attendus des atomes $\sim 0 - 300$ nm sont bien plus faibles que les distances internucléaires moyennes $R_d \sim 3 - 19 \mu\text{m}$ avec lesquelles nous travaillons (correspondant à des densités $\sim 10^7 - 10^{10}$ at/cm³). Le mouvement des atomes peut donc être a priori négligé, ce qui justifie l'appellation gaz de Rydberg gelé. Par conséquent, il n'est plus possible d'imaginer le système comme étant un ensemble de paires entrant en collisions, mais il doit se concevoir alors comme un ensemble d'atomes froids en interaction avec des propriétés proches de celles d'un solide amorphe. Nous remplaçons désormais le terme "résonance collisionnelle" par "résonance de Förster".

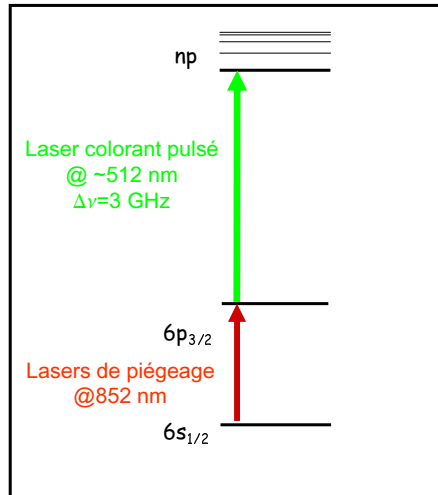


FIG. 1.17 – Schéma d'excitation à 2 couleurs utilisé dans l'expérience [Mourachko et al., 1998]. La transition depuis l'état fondamental $6s_{1/2}$ vers l'état $6p_{3/2}$ est réalisée avec les lasers du piège. La transition suivante permet d'exciter les atomes vers les états de Rydberg, elle est effectuée avec un laser colorant pulsé large bande.

1.3.4.2 Transfert résonant d'excitation dans un gaz de Rydberg gelé

Les premières expériences de transfert résonant à partir de gaz d'atomes froids ont été effectuées dans des pièges magnéto-optique de césium au laboratoire Aimé Cotton et de rubidium à l'Université de Virginie [Mourachko et al., 1998, Anderson et al., 1998]. L'expérience sur le césium a consisté à caractériser le transfert résonant en piège magnéto-optique déjà abordé précédemment :

$$np + np \longleftrightarrow ns + (n + 1)s \quad (1.76)$$

Nous nous sommes également beaucoup intéressés à ce problème au cours de nos derniers travaux, c'est pourquoi nous allons développer ses principaux résultats. Partant d'un nuage atomique de densité maximale 10^{11} at/cm⁻³ à une température de l'ordre de 100 μ K, l'excitation est effectuée en deux étapes présentées Fig. 1.17 : $6s_{1/2} \longrightarrow 6p_{3/2} \longrightarrow 23p_{3/2}$. Les lasers du PMO permettent la première transition alors que la deuxième est réalisée grâce à un laser colorant pulsé de largeur spectrale ~ 10 GHz. On remarquera que la deuxième transition est autorisée en champ électrique du fait du couplage Stark entre les états p et d . Les densités d'atomes obtenues dans l'état Rydberg sont de l'ordre de $10^8 - 10^{10}$ at/cm³, la situation est typiquement celle du gaz de Rydberg gelé décrite dans le paragraphe précédent.

Une vision moléculaire de l'interaction entre deux atomes est plus adaptée au problème. Considérons un système à deux atomes à deux niveaux couplés via l'interaction dipôle-dipôle $|\Psi_{SS}\rangle$ et $|\Psi_P\rangle$ (donnés par le système (1.70)). En l'absence d'interaction dipôle-dipôle, ces deux états se croisent au champ de la résonance de Förster F_0 (voir Fig. 1.18). En présence d'interaction dipôle, le croisement est évité, les nouveaux états propres $|+\rangle$ et $|-\rangle$ sont des combinaisons linéaires des états $|\Psi_{SS}\rangle$ et $|\Psi_P\rangle$:

$$|+\rangle = \sin\left(\frac{\theta}{2}\right)\Psi_P + \cos\left(\frac{\theta}{2}\right)\Psi_{SS} \quad (1.77)$$

$$|-\rangle = \cos\left(\frac{\theta}{2}\right)\Psi_P - \sin\left(\frac{\theta}{2}\right)\Psi_{SS} \quad (1.78)$$

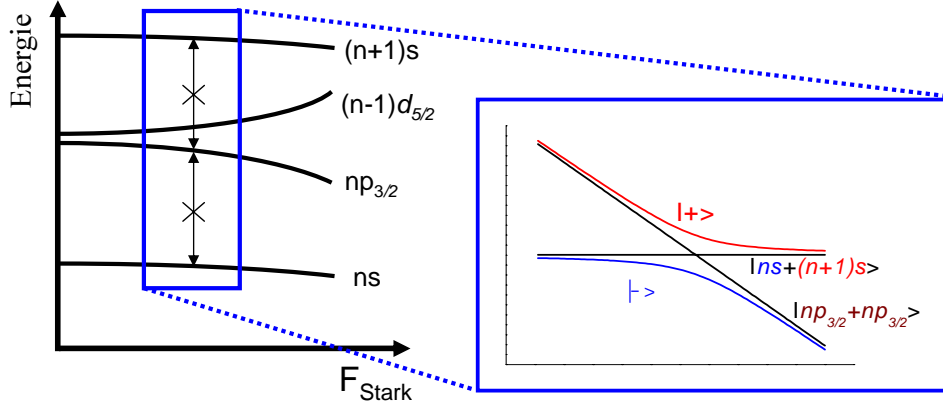


FIG. 1.18 – Niveaux d'énergie au voisinage de la résonance collisionnelle. Le grossissement représente les niveaux d'énergie pour le système de deux atomes en collision. Les niveaux $|np_{3/2}np_{3/2}\rangle \equiv |\Psi_P\rangle$ et $|ns_{1/2}(n+1)s_{1/2}\rangle \equiv |\Psi_{SS}\rangle$ sont les niveaux non perturbés. Les états $|+\rangle$ et $|-\rangle$ sont les nouveaux états propres en présence d'interaction dipôle-dipôle.

où $\tan \theta(F) = \frac{v_{dd}}{\Delta(F)/2}$, avec v_{dd} l'élément de matrice du couplage dipôle-dipôle et $\Delta(F)$ l'écart énergétique entre les deux niveaux non perturbés $|\Psi_{SS}\rangle$ et $|\Psi_P\rangle$.

A résonance de Förster, les états prennent la forme simple : $|+\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|\Psi_P\rangle + |\Psi_{SS}\rangle)$ et $|-\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|\Psi_P\rangle - |\Psi_{SS}\rangle)$. L'expression des niveaux d'énergie en fonction du paramètre θ peut être retrouvée par la formule (1.48).

L'excitation pulsée est une excitation diabatique, nous reviendrons sur ce problème lorsque nous comparerons différents schémas d'excitation au chapitre 2. L'état excité au départ est l'état $|\Psi_P\rangle$, superposition cohérente des états $|+\rangle$ et $|-\rangle$. L'expérience consiste à mesurer le nombre d'atomes dans l'état $2s$, c'est à dire l'un des produits de la réaction (1.66) et ceci pour différents champs électriques autour du champ électrique de la résonance de Förster. Dans un système à 2 atomes, ce transfert d'excitation prend la forme d'une oscillation de Rabi entre l'état $|\Psi_{SS}\rangle$ et l'état $|\Psi_P\rangle$. Dans le système atomique complet, il n'est pas possible d'observer d'oscillations, d'une part en raison du brouillage induit par la répartition aléatoire des atomes excités mais aussi comme nous allons voir parce que chaque paire en interaction constitue un système ouvert interagissant avec l'environnement. Le transfert apparaît comme un phénomène irréversible et atteint une saturation après 1-3 μs . Les résonances observées sont présentées sur la Fig. 1.19 et font apparaître un fort élargissement en champ électrique ΔF lorsque la densité augmente. Pour le système moléculaire (1.78) cette largeur à mi-hauteur ΔF est reliée au couplage dipôle-dipôle v_{dd} via la formule $\Delta F = \frac{2v_{dd}}{d\Delta(F_0)/dF}$ [Rubbmark et al., 1981].

Compte tenu des largeurs en champ électrique obtenues par [Mourachko et al., 1998] pour une densité de 10^{10} at/cm⁻³ et de la variation des niveaux d'énergie non perturbés en champ électrique, la valeur moyenne de l'interaction dipôle-dipôle dans un tel nuage serait $\delta \sim \frac{\mu_1\mu_2}{R_\delta^3} \sim 200$ MHz. Une simple valeur numérique évaluée dans un modèle diatomique utilisant la distance interatomique moyenne R_d donnerait $v_{dd} \sim \frac{\mu_1\mu_2}{R_d^3} \sim 1.5$ MHz, soit 2 ordres de grandeur plus faible. De telles largeurs pourraient provenir du signal dû essentiellement à des paires très proches en forte interaction, avec une distance entre atomes $R_\delta < R_d(v_{dd}/\delta)^{1/3} \ll R_d$. Mais

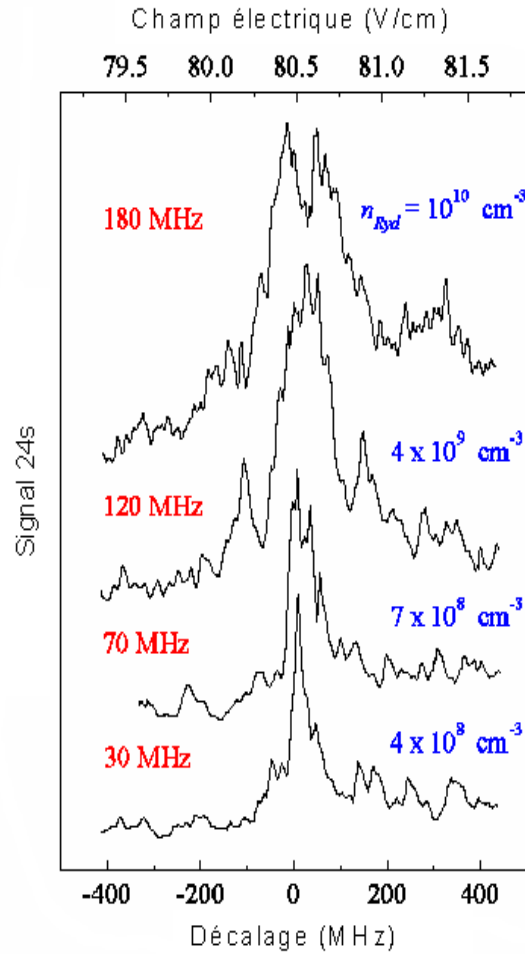
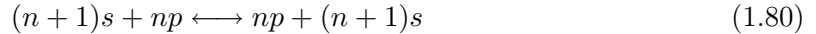


FIG. 1.19 – Résonance collisionnelle correspondant à la réaction (1.67). De même que sur la Fig. 1.15, le nombre d'atomes transférés dans l'état 24s est tracé en fonction du champ électrique, pour différentes densités initiales d'atomes. Le champ électrique est converti en fréquence en utilisant l'expression du décalage Stark du niveau $23p_{3/2}$ (ce décalage est quasi linéaire à l'échelle de la résonance). Ceci permet de mesurer l'élargissement de la raie de transfert de l'excitation vers l'état 24s.

le nombre d'atomes contribuant au signal²¹ serait alors voisin de $N_d e^{-\left(\frac{R_\delta}{R_d}\right)^3}$ (N_d est le nombre total d'atomes excités), soit moins de 1% du total. Ceci est en contradiction totale avec les transferts de population observés avoisinant les 10% et même 40% dans des expériences que nous avons effectuées par la suite. Une approche en terme de processus à deux corps ne permet pas de rendre compte des caractéristiques du signal obtenu.

Effets à N corps

Pour comprendre ces résultats, il a été nécessaire de prendre aussi en compte des effets à N corps, et notamment ceux correspondant à des propriétés de migration des produits de la réaction (1.76) suivant les deux réactions suivantes, dont on remarquera qu'elles sont toujours résonantes, quel que soit le champ électrique :



Cette migration est interprétée comme un phénomène de diffusion, longuement décrit dans la thèse de Igor Mourachko [Mourachko, 1999]. Une explication imagée de ces processus est donnée en Fig. 1.20. Un certain nombre de paires proches considérées comme des centres actifs réagissent rapidement suivant la réaction (1.76) dans une première étape, ce qui explique les largeurs observées expérimentalement. Cependant, chaque paire est dans un système ouvert, les processus plus lents des équations (1.79) et (1.80) interviennent et permettent la diffusion par transfert résonant d'énergie de l'excitation ns , $(n + 1)s$ d'un centre actif vers l'ensemble des autres atomes np . Le centre actif retourne donc plus rapidement dans l'état initial np , np et réagit de nouveau pour créer un "nouveau" couple $(n + 1)s$, ns . Au terme de ces processus plusieurs couples d'excitation ns , $(n + 1)s$ auront diffusé dans le milieu, ce qui explique l'efficacité du transfert d'excitation observé expérimentalement.

Nous ne développons pas ici la théorie élaborée par [Mourachko et al., 1998], notamment pour la description correcte de la diffusion de l'excitation d'un état de départ $|\Psi_0\rangle = |ns\rangle \otimes |(n + 1)s\rangle$ vers un état $|\Psi(t)\rangle$ après couplage à une bande de niveaux d'énergie : [Mourachko et al., 1998] ont montré que la résolution de ce problème de diffusion découplé du problème de transfert d'excitation (1.76) permet dans une deuxième étape de déterminer le nombre de paires ns , $(n + 1)s$ ayant diffusé à partir du centre actif. L'approximation en termes de bandes de niveaux d'énergie s'avère relativement correcte du fait de la répartition initiale aléatoire des atomes autour du centre actif. La principale difficulté du traitement théorique consiste à considérer la possibilité du retour de l'excitation vers le centre actif initial, il en résulte une diminution non exponentielle de la probabilité que le système soit resté dans l'état initial $|\Psi_0\rangle$. La probabilité pour que le centre actif soit resté dans l'état $ss' \equiv |ns\rangle \otimes |(n + 1)s\rangle$ est mieux décrite via une loi de puissance caractéristique d'une diffusion $p(t) \sim (Dt)^{-2}$.

Des résolutions numériques de l'équation de Schrödinger pour ce processus de transfert résonant d'énergie ont été proposées par [Westermann et al., 2006]. Elles montrent notamment que la dynamique du transfert de l'excitation implique la considération de groupements d'au moins 6 atomes lorsque la densité atomique atteint de l'ordre de 10^8 at/cm⁻³.

Afin de bien cerner l'origine de l'élargissement, considérons seulement un petit nombre d'atomes, par exemple 3 comme cela est proposé dans l'article [Mourachko et al., 2004]. Nous

²¹En supposant une excitation homogène, la probabilité de présence du plus proche voisin à l'intérieur d'une sphère de rayon R_δ est $e^{-\left(\frac{R_\delta}{R_d}\right)^3}$ d'après le résultat de la distribution d'Erlang.

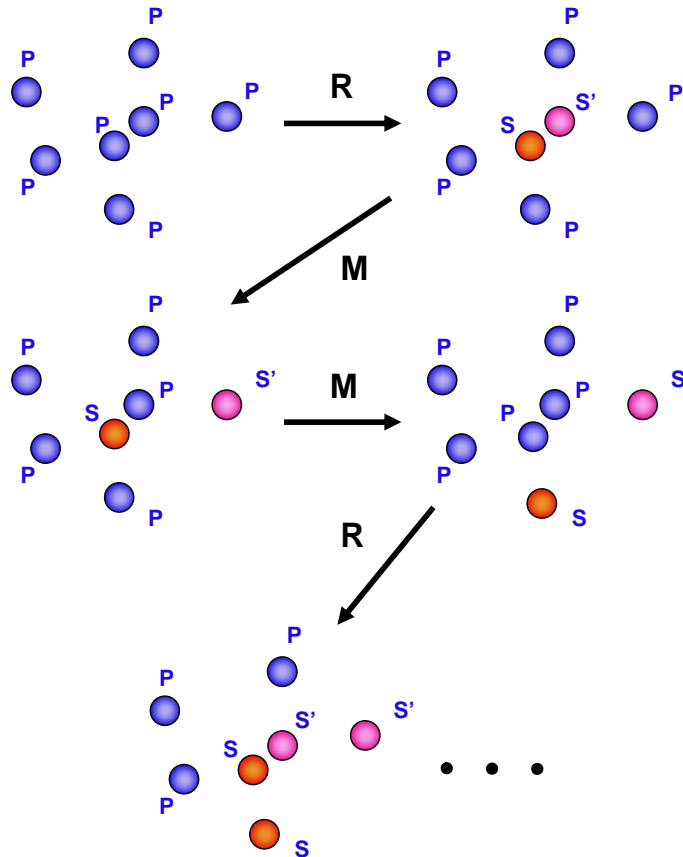


FIG. 1.20 – Représentation physique de la migration. Au départ, les atomes sont excités dans un état de Rydberg $np_{3/2}$. Les paires proches réagissent rapidement suivant la réaction (1.76) (R). Les produits s et s' de la réaction (1.76) diffusent ensuite dans l'environnement via les deux réactions de migration (1.79) et (1.80) (M). La paire d'atomes revenue à l'état initial pp peut de nouveau réagir, alors que les réactions de diffusion dans l'environnement (1.79) et (1.80) se poursuivent. Ce processus conduit à un accroissement considérable du nombre d'atomes transférés dans les états s et s' .

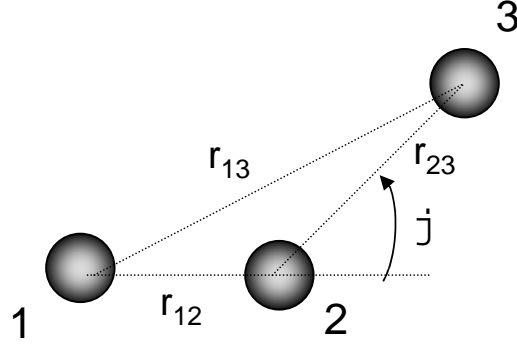


FIG. 1.21 – Schéma de trois atomes séparés par les distances r_{12} , r_{13} et r_{23} avec $r_{13} = \sqrt{r_{12}^2 + r_{23}^2 + 2 \times r_{12} \times r_{23} \cos \varphi}$.

supposons les 3 atomes situés à des positions fixes dans l'espace données dans la Fig. 1.21. Les états moléculaires potentiellement accessibles sont le produit direct ordonné des fonctions individuelles de chaque atome. Les atomes sont initialement dans l'état $ppp \equiv p_1 p_2 p_3$. Aucun couplage via l'interaction dipôle-dipôle n'est possible avec des états ayant un nombre impair d'atome dans les états s ou s' . Une base des vecteurs d'états accessibles est donc la suivante :

$$(ppp, pss', ps's, sps', s'ps, ss'p, s'sp) \quad (1.81)$$

Le hamiltonien d'interaction s'écrit dans cette base, en première approximation :

$$\mathcal{H} = \begin{pmatrix} 3\Delta[F] & \frac{\mu^2}{r_{23}^3} & \frac{\mu^2}{r_{23}^3} & \frac{\mu^2}{r_{13}^3} & \frac{\mu^2}{r_{13}^3} & \frac{\mu^2}{r_{12}^3} & \frac{\mu^2}{r_{12}^3} \\ \frac{\mu^2}{r_{23}^3} & \Delta[F] & 0 & \frac{\mu^2}{r_{12}^3} & 0 & 0 & \frac{\mu^2}{r_{13}^3} \\ \frac{\mu^2}{r_{23}^3} & 0 & \Delta[F] & 0 & \frac{\mu^2}{r_{12}^3} & \frac{\mu^2}{r_{13}^3} & 0 \\ \frac{\mu^2}{r_{13}^3} & \frac{\mu^2}{r_{12}^3} & 0 & \Delta[F] & 0 & \frac{\mu^2}{r_{23}^3} & 0 \\ \frac{\mu^2}{r_{13}^3} & 0 & \frac{\mu^2}{r_{12}^3} & 0 & \Delta[F] & 0 & \frac{\mu^2}{r_{23}^3} \\ \frac{\mu^2}{r_{12}^3} & 0 & \frac{\mu^2}{r_{13}^3} & \frac{\mu^2}{r_{23}^3} & 0 & \Delta[F] & 0 \\ \frac{\mu^2}{r_{12}^3} & \frac{\mu^2}{r_{13}^3} & 0 & 0 & \frac{\mu^2}{r_{23}^3} & 0 & \Delta[F] \end{pmatrix} \quad (1.82)$$

où nous avons utilisé l'approximation $\mu_1 \approx \mu_2 \approx \mu$. r_{12} , r_{13} , r_{23} sont les distances séparant les trois atomes. $\Delta(F)$ est le décalage Stark de l'état p , en première approximation linéaire au voisinage de la résonance de Förster.

La Fig. 1.22 montre les énergies des nouveaux états propres en fonction du champ électrique pour la disposition de la figure 1.21 ($\varphi = \pi/3$ et $r_{13} = 1.42 \times r_{12}$), pour deux hamiltoniens d'interaction différents. Sur la figure 1.22 (a), les couplages d'échange (1.79) et (1.80) sont négligés, il n'y a que deux états propres dont l'énergie dépend du couplage (1.76) (l'énergie de l'état $ss'p$ est prise comme référence pour le tracé de la figure 1.22). Par contre lorsque tous les couplages sont pris en compte comme dans le hamiltonien (1.82), il apparaît clairement deux autres états dont l'énergie est perturbée par l'interaction dipôle-dipôle (cf. Fig. 1.22 (b)) et le croisement "évité" est élargi (ici d'un facteur environ 1.5). Le cas de 3 atomes en interaction peut expliquer potentiellement un élargissement spectral des résonances, mais

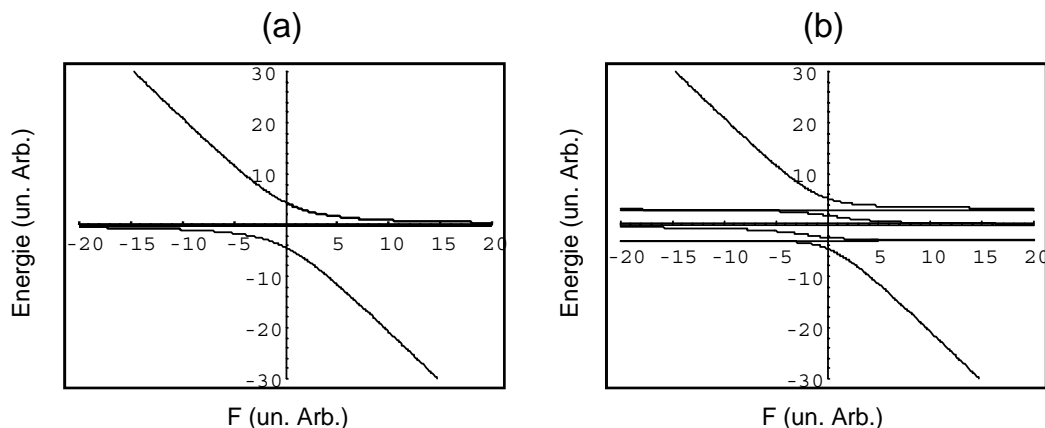


FIG. 1.22 – Niveaux d'énergie de trois atomes à résonance de Förster en fonction du champ électrique F . Les atomes sont disposés comme sur la figure 1.21. La référence des niveaux d'énergie est le niveau $ss'p$ non perturbé par l'interaction dipôle-dipôle. (a) Seuls le couplage (1.76) est considéré. (b) En plus du couplage (1.76) sont aussi considérés les couplages (1.79) et (1.80) responsables de la migration.

pas une augmentation du signal (à temps fixé après l'excitation) par rapport aux produits des réactions d'un système considéré comme simplement composé de simples paires en interaction. Pour cela, il est nécessaire de considérer au moins 4 atomes [Lowell, 1998]. Auquel cas le système au départ dans l'état $pppp$ a une certaine probabilité de passer dans les états $sss's'$, $s's'ss$, $s'ss's$ et $ss'ss'$, le transfert des états p aux états s et s' se faisant beaucoup plus rapidement grâce aux processus de migration.

Nous reviendrons en détail sur ces problèmes au chapitre (1.3.4), et notamment l'implication de tels effets sur la cohérence de systèmes de deux atomes proches en interaction. Après ce rappel de quelques propriétés des atomes de Rydberg "chauds" et "froids", qui seront utiles pour comprendre la suite du manuscrit, nous allons présenter ce qui fait la motivation de cette thèse, à savoir l'étude du blocage dipolaire et la possibilité de son utilisation pour réaliser une porte quantique.

1.4 Implications pour l'information quantique

1.4.1 Introduction

L'information quantique a pris son essor dans le milieu des années 1990 avec des algorithmes comme ceux de Shor et de Grover [Shor, 1994, Grover, 1996] qui permettraient à un ordinateur ayant un comportement "quantique" de résoudre certains problèmes beaucoup plus rapidement qu'un ordinateur classique. Il s'agit par exemple pour l'algorithme de Shor de factoriser de façon très efficace de très grands nombres. Le temps de factorisation d'un nombre entier N ne dépend plus exponentiellement du nombre de digits comme avec un ordinateur classique mais cubiquement²². L'utilisation d'un ordinateur quantique permettrait en particulier de casser les codes de sécurité informatique basés sur le produit de très grands

²²Exactement, le temps de factorisation d'un nombre N est en $O(\log(N)^3)$, où $\log(N)$ est le nombre de digits.

nombres premiers. Le gain de temps est polynomial concernant l'algorithme de recherche développé par Grover. Une autre classe de problèmes pour lesquels les calculateurs quantiques pourraient fournir des gains de temps exponentiels est la simulation de systèmes quantiques à plusieurs particules [Abrams and Lloyd, 1997].

Le calculateur quantique utilise non plus les bits classiques codés en langage binaire (pouvant prendre les valeurs 0 ou 1), mais des qubits (ou quantum bits). D'un point de vue physique, un qubit est représenté par un système quantique à deux états, $|0\rangle$ et $|1\rangle$. Un qubit est donc une superposition linéaire des états purs $|0\rangle$ et $|1\rangle$ de la forme $\alpha|0\rangle + \beta|1\rangle$. Un qubit peut donc prendre une infinité de valeurs dans l'espace de Hilbert engendré par les états $|0\rangle$ et $|1\rangle$. L'association de plusieurs qubits construit l'espace produit tensoriel des espaces associés à chacun des qubits, d'où des possibilités de parallélisation très efficace de certains problèmes.

Toute opération quantique U conservative peut être décomposée en une séquence d'opérations unitaires à un qubit et à deux qubits réalisées par des portes quantiques. La condition d'unitarité ($U^T U = \mathbf{I}$) est nécessaire et suffisante pour que tout état pur se transforme en un autre état pur. Une opération sur un qubit peut s'exprimer comme une rotation d'un angle α autour de l'axe \vec{n} défini sur la sphère de Bloch, $U = e^{i\alpha} R_{\vec{n}}(\alpha) = \cos\left(\frac{\theta}{2}\right) \mathbf{I} - \sin\left(\frac{\theta}{2}\right) \vec{n} \cdot \vec{\sigma}$ avec $\vec{\sigma} = (\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z)$ désignant les matrices de Pauli. Une rotation autour de l'axe x est ainsi donnée par $\cos\left(\frac{\theta}{2}\right) \mathbf{I} - \sin\left(\frac{\theta}{2}\right) \sigma_x$.

Deux exemples de portes quantiques opérant sur deux qubits sont la porte NON contrôlé (Controlled-NOT) et la porte de phase conditionnelle (PPC). La première modifie le qubit cible si et seulement si le qubit de contrôle est dans l'état $|1\rangle$:

$$\begin{aligned} |00\rangle &\rightarrow |00\rangle \\ |01\rangle &\rightarrow |01\rangle \\ |10\rangle &\rightarrow |11\rangle \\ |11\rangle &\rightarrow |10\rangle \end{aligned} \tag{1.83}$$

Sa représentation matricielle est alors :

$$\text{CNOT} = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \end{pmatrix} \tag{1.84}$$

La porte de phase conditionnelle laisse l'état initial inchangé à moins que les deux qubits ne soient dans l'état $|1\rangle$, auquel cas la phase est décalée d'une valeur Φ :

$$|a, b\rangle \rightarrow e^{i\Phi \delta_{a,1} \delta_{b,1}} |a, b\rangle \tag{1.85}$$

De même que la porte Controlled-NOT, la PPC est universelle : tout calcul quantique peut être effectué en combinant PPCs et rotations sur des qubits individuels. Pratiquement, quelques systèmes quantiques sont pressentis pour réaliser les opérations quantiques nécessaires pour réaliser des calculs quantiques et un certain nombre des tâches avancées par [Bennett and DiVincenzo, 2000] ont déjà été réalisées.

La réalisation de portes à un qubit ne pose pas de problèmes puisque les rotations nécessaires peuvent par exemple être obtenues simplement par couplage avec un champ électromagnétique : la rotation $|0\rangle \rightarrow |1\rangle$ correspond à une transition π (par exemple un couplage laser pendant une demi-période de Rabi). Dans le cas d'atomes neutres, nous pouvons penser à des couplages microonde ou à des transitions Raman dans le cas où les deux états $|0\rangle$ et $|1\rangle$ sont deux sous-niveaux hyperfins du niveau fondamental $6s_{1/2}$ du césium.

La réalisation de portes quantiques agissant de façon conditionnelle sur deux qubits nécessite la présence et le contrôle d'une interaction entre ces deux qubits. Ceci représente en général un défi beaucoup plus difficile à relever. La PPC a déjà été réalisée notamment par résonance magnétique nucléaire (RMN), en électrodynamique quantique en cavité [Rauschenbeutel et al., 1999] ou encore à partir d'ions piégés [Leibfried et al., 2003]. La RMN utilise les spins des noyaux d'atomes d'une molécule. Placés dans un champ magnétique radiofréquence, ceux-ci ont des fréquences de résonance différentes suivant leur nature ou leur position dans la molécule. De ce fait, ils peuvent être adressés individuellement. D'autre part, les spins des différents atomes étant couplés entre eux via l'interaction dipôle-dipôle magnétique, il est possible de réaliser des opérations quantiques sur plusieurs qubits. Cette technique a permis les premières réalisations de l'algorithme de Shor, et la factorisation du nombre 15 à partir d'une molécule contenant 7 qubits, le chloroforme [Vandersypen et al., 2001]. Dans cette technique, l'opération quantique est effectuée en parallèle sur un grand nombre de molécules en solution, qu'il n'est donc pas possible d'adresser séparément. Cette technique a apporté les premiers grands résultats expérimentaux mais son extension à un grand nombre de qubits reste difficile à envisager. La RMN en phase solide est pressentie pour remplacer la technique actuelle.

L'expérience d'électrodynamique en cavité [Rauschenbeutel et al., 1999] utilise le couplage entre deux états atomiques a et b ($|0\rangle$ et $|1\rangle$) et l'état du champ électromagnétique à 0 ou 1 photon ($|0\rangle$ ou $|1\rangle$) à l'intérieur d'une cavité microonde supraconductrice. Ces expériences utilisent des atomes excités dans des états de Rydberg circulaires.

Des expériences très prometteuses concernent actuellement les ions piégés, par exemple [Leibfried et al., 2003, Schmidt-Kaler et al., 2003]. Les ions sont piégés dans des pièges de Paul (piège électromagnétique radio-fréquence). Les qubits sont stockés dans des états électroniques stables de chaque ion pouvant être couplés par laser. Le couplage entre deux qubits s'effectue via les modes de vibration (phonons) couplant le mouvement des différents ions.

Dans le domaine des atomes neutres, il est suggéré d'utiliser des atomes piégés en réseaux optiques afin de contrôler la distance entre les atomes et donc contrôler l'interaction entre les différents atomes lorsque ceux-ci sont portés dans un état excité [Brennen et al., 1999]. Différentes expériences ont déjà mis en évidence un adressage d'atomes uniques dans des pièges dipolaires microscopiques et la réalisation d'opérations à un qubit, représenté par deux états hyperfins d'un atome. Les atomes neutres piégés sont des candidats très attractifs pour le stockage de l'information quantique, grâce aux temps de cohérence très longs qui peuvent être atteints, supérieurs à la seconde [Treutlein et al., 2004]. Par contre, il est plus difficile d'obtenir une interaction forte entre atomes neutres qui permette de réaliser des portes quantiques rapides. Différentes propositions ont été faites concernant l'utilisation de l'interaction dipôle-dipôle entre atomes de Rydberg pour parvenir au couplage entre deux qubits [Jaksch et al., 2000, Protsenko et al., 2002, Ryabtsev et al., 2005]. Les différents qubits interagissent via un état relai Rydberg dans lequel les atomes ont été excités transitoirement. Ces portes auraient l'avantage d'être très rapides, pouvant fonctionner à des fréquences supérieures au MHz. Le paragraphe 1.4.2 est dédié à la proposition de réalisation d'une porte de phase [Jaksch et al., 2000].

Un certain nombre d'autres propositions de portes quantiques à partir d'atomes neutres sont basées sur des collisions contrôlées [Jaksch et al., 1999, Calarco et al., 2000, Eckert et al., 2002]. Dans la proposition [Jaksch et al., 1999], deux pièges microscopiques sont adiabatiquement rapprochés l'un de l'autre pour induire un décalage de phase lors de la collision, différent suivant l'état interne des deux atomes. Dans [Calarco et al., 2000], une collision en ondes s est rendue possible en abaissant suffisamment les barrières de potentiel

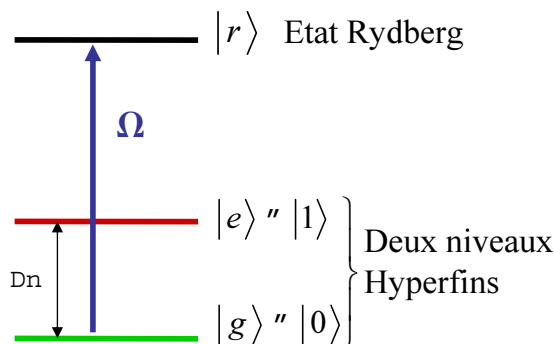


FIG. 1.23 – Qubit atomique codé sur deux états hyperfins, dont les énergies sont séparées de $\Delta\nu = 9.2$ GHz pour le césium. L'excitation vers un état de Rydberg permet de faire interagir deux qubits par interaction dipôle-dipôle. Elle est réalisée par laser et caractérisée par une fréquence de Rabi Ω .

de deux micropièges différents. Dans l'article [Eckert et al., 2002], les auteurs proposent d'encoder l'information non pas dans des états internes d'atomes, mais dans deux niveaux de vibration différents d'un piège harmonique. Dans tous les cas, les temps d'opération de ces portes ($\sim ms$) seraient beaucoup plus longs qu'avec l'utilisation de l'interaction dipôle-dipôle entre atomes de Rydberg.

1.4.2 Porte de phase conditionnelle utilisant des atomes neutres

Nous décrivons dans ce paragraphe la proposition de porte de phase [Jaksch et al., 2000]. Les auteurs suggèrent de stocker l'information dans deux états $|g\rangle$ ($|0\rangle$) et $|e\rangle$ ($|1\rangle$) d'un atome. Les deux états $|g\rangle$ et $|e\rangle$ peuvent être des états hyperfins fondamentaux d'un atome alcalin. Un troisième état de l'atome sera utilisé comme état relais, à savoir un état de Rydberg $|r\rangle$ pouvant être excité depuis l'état $|g\rangle$ (cf Fig. 1.23). Considérons maintenant un système de deux atomes que l'on dénommera 1 et 2. Les différents états possibles du système sont les suivants : $|g_1g_2\rangle$, $|g_1e_2\rangle$, $|e_1g_2\rangle$ et $|e_1e_2\rangle$ sans excitation Rydberg, $|g_1r_2\rangle$, $|r_1e_2\rangle$, $|r_1g_2\rangle$ et $|e_1r_2\rangle$ avec une excitation Rydberg, et enfin l'état $|r_1r_2\rangle$ avec une double excitation Rydberg. Il est proposé d'utiliser l'effet Stark pour induire une forte interaction dipôle-dipôle entre les deux atomes comme nous l'avons vu au paragraphe 1.3.2 : le césium serait un bon candidat puisqu'il suffit d'un faible champ électrique pour coupler les états np et $(n-1)d$.

L'objectif est donc de réaliser la porte de phase (1.85). La transition $|g\rangle \rightarrow |r\rangle$ est choisie résonante, de pulsation de Rabi Ω . Différentes méthodes sont proposées dans l'article [Jaksch et al., 2000].

La première méthode considère le cas où il n'est pas nécessaire d'adresser séparément les deux atomes. Elle suppose $\Omega \gg v_{dd}$, où v_{dd} est le décalage du niveau d'énergie $|rr\rangle$ donné par l'expression (1.55) en présence de l'interaction dipôle-dipôle. L'excitation est donc large bande, une impulsion π conduit à un transfert total de population depuis l'état $|g\rangle$ vers l'état Rydberg, même si le niveau Rydberg est légèrement décalé par interaction dipôle-dipôle²³. Les trois étapes suivantes doivent être appliquées pour réaliser la porte de phase (voir Fig. 1.24) :

²³Nous aborderons le problème de l'excitation large bande au paragraphe 2.3.1

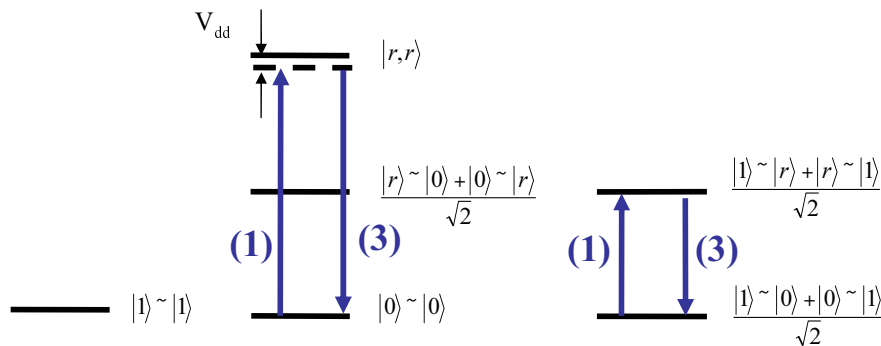


FIG. 1.24 – Modèle A proposé dans [Jaksch et al., 2000] pour réaliser une porte quantique de phase. Chaque qubit est codé sur les deux états hyperfins d'un atome alcalin et l'état de Rydberg est utilisé comme état relai entre les deux qubits (cf Fig. 1.23). 3 étapes sont nécessaires dans ce modèle (cf texte) : une impulsion π appliquée sur les deux atomes, un délai tel que le déphasage de la fonction d'onde soit $\phi = v_{dd}\Delta t$, une nouvelle impulsion π .

1. Impulsion π appliquée aux deux atomes; toute la population initialement dans l'état $|g\rangle$ est portée dans l'état Rydberg $|r\rangle$. Cette impulsion produit les transformations²⁴ $|ge\rangle \rightarrow i|re\rangle$ et réciproquement $|eg\rangle \rightarrow i|er\rangle$ et laisse inchangé l'état $|gg\rangle$. Si les deux atomes sont dans l'état $|g\rangle$, la transformation est $|gg\rangle \rightarrow -|rr\rangle$.
2. Evolution libre pendant Δt tel que le décalage de phase accumulé par la fonction d'onde si l'état des deux atomes est²⁵ $|rr\rangle$ soit $\phi = v_{dd}\Delta t$. L'interaction dipôle-dipôle donne en effet dans ce cas uniquement un terme de décalage de l'énergie (cf formule (1.55)).
3. Impulsion π appliquée aux deux atomes pour qu'ils retournent dans l'état fondamental $|g\rangle$. De même que pour la première étape²⁶, $|re\rangle \rightarrow i|ge\rangle$, $|er\rangle \rightarrow i|eg\rangle$.

Finalement, l'opération effectuée est la suivante :

$$\begin{aligned}
 |ee\rangle &\rightarrow |ee\rangle \\
 |ge\rangle &\rightarrow -|ge\rangle \\
 |eg\rangle &\rightarrow -|eg\rangle \\
 |gg\rangle &\rightarrow e^{i\phi}|gg\rangle
 \end{aligned} \tag{1.86}$$

Cette porte est un facteur -1 près la porte de phase si $\phi = \pi$.

Une deuxième méthode proposée considère le cas où il est nécessaire d'adresser séparément les deux atomes 1 et 2. On suppose de manière générale $\Omega_1 \neq \Omega_2$ ²⁷. On se place d'autre part

²⁴Nous sommes intéressés par la différence de phase accumulée en présence de la séquence d'impulsion et sans cette séquence. En toute rigueur, $|eg\rangle \rightarrow e^{-iE_r\pi/(\hbar\Omega)}i|er\rangle$ avec E_r l'énergie de l'état Rydberg par rapport à l'énergie de l'état $|g\rangle$ (voir par exemple [Orvil Scully and Zubairy, 1997]). Cependant le terme de phase supplémentaire est compensé par l'évolution en parallèle de la phase du champ électrique, ceci est expliqué dans la note 26.

²⁵L'évolution libre du système est donnée par $\Psi(t) = e^{-iE_r\Delta t/\hbar}|er\rangle$ si le système était au départ dans l'état $|eg\rangle$ et par $\Psi(t) = e^{-i(2E_r+v_{dd})\Delta t/\hbar}|rr\rangle$ si le système était au départ dans l'état $|gg\rangle$.

²⁶Le laser doit rester cohérent durant la séquence de façon à ce que l'évolution de la phase du champ à prendre en compte, soit le terme $e^{iE_r\pi/(\hbar\Omega)}e^{iE_r\Delta t/\hbar}$, "compense" directement pour un atome dans l'état Rydberg la phase accumulée lors de la première impulsion et l'évolution libre de la deuxième séquence.

²⁷il serait possible non plus d'utiliser des états Stark, mais des états purs différents pour 1 et 2 conduisant à

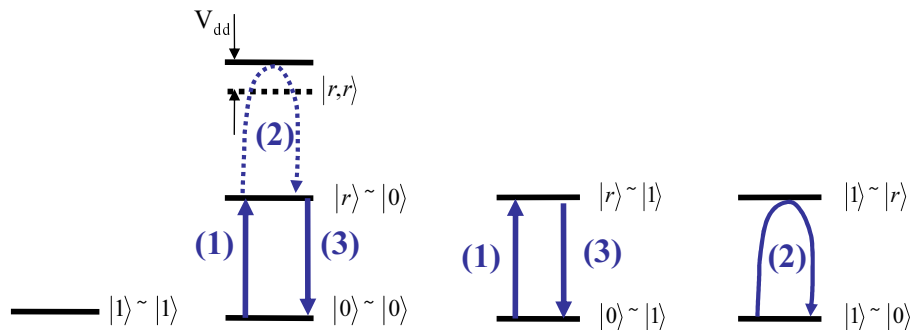


FIG. 1.25 – Modèle B proposé dans [Jaksch et al., 2000] pour réaliser une porte quantique de phase. Ce modèle nécessite l'adressage particulier des atomes. De même que pour le modèle A (cf Fig. 1.24), cette porte est réalisée en trois étapes : une impulsion π appliquée au premier atome, une impulsion 2π appliquée au deuxième atome et enfin une nouvelle impulsion π au premier atome.

dans une situation d'interaction forte $\Omega_1 \ll v_{dd}$, ce qui va permettre l'utilisation du **blocaje dipolaire de l'excitation Rydberg**. Dans ce cas, les trois étapes suivantes (cf Fig. 1.25) doivent être appliquées pour réaliser la porte de phase :

1. Impulsion π appliquée au premier atome 1, induisant la transformation $|g_1\rangle \rightarrow i|r_1\rangle$.
2. Impulsion 2π appliquée sur la transition $|g_2\rangle \leftrightarrow |r_2\rangle$. Si l'atome 1 n'est pas excité au préalable dans l'état de Rydberg, ceci conduit à $|e_1g_2\rangle \rightarrow -|e_1g_2\rangle$. Si l'atome se trouvait au préalable dans l'état de Rydberg, la transition $|r_1g_2\rangle \leftrightarrow |r_1r_2\rangle$ est décalée énergétiquement de v_{dd} par rapport à la transition $|e_1g_2\rangle \rightarrow |e_1r_2\rangle$. L'excitation du deuxième atome est quasiment **bloquée** puisqu'on a supposé $\Omega \ll v_{dd}$. La phase accumulée lors de cette impulsion²⁸ (soit après un temps $\Delta t = 2\pi/\Omega_2$) est $\phi = -\pi\Omega_2/2v_{dd} \ll \pi$.
3. Impulsion π appliquée au premier atome pour qu'il retourne dans l'état fondamental $|g\rangle$. De même que pour la première étape, $i|r_1e_2\rangle \rightarrow -|g_1e_2\rangle$, et $e^{-i\phi}|r_1g_2\rangle \rightarrow -i e^{-i\phi}|g_1g_2\rangle$.

L'opération effectuée est finalement :

$$\begin{aligned} |ee\rangle &\rightarrow |ee\rangle \\ |ge\rangle &\rightarrow -|ge\rangle \end{aligned} \quad (1.87)$$

$$|eg\rangle \rightarrow -|eg\rangle \quad (1.88)$$

$$|gg\rangle \rightarrow e^{i(\pi-\phi)}|gg\rangle \approx -i|gg\rangle$$

Cette deuxième méthode possède différents avantages détaillés par [Jaksch et al., 2000]. La durée de la porte dans le deuxième modèle est en effet de l'ordre de $\Delta t = 2\pi/\Omega_1 + 2\pi/\Omega_2$. Cette durée peut être très courte, moins de 100 ns si la fréquence de Rabi de chaque transition est de l'ordre de 20 MHz (expérimentalement, cette valeur est facilement accessible). Si le blocage dipolaire est suffisamment grand, le résultat de cette porte dépend peu des fluctuations du

une forte interaction dipôle-dipôle. Une des deux excitations pourrait être à 2-photons pour exciter des états de l adjacents.

²⁸Celle-ci se déduit directement de l'évolution du système à deux niveaux $|r_1g_2\rangle \leftrightarrow |r_1r_2\rangle$, avec un décalage v_{dd} du niveau d'énergie $|r_1r_2\rangle$ par rapport à la fréquence laser.

couplage dipôle-dipôle. Les pertes par émission spontanée $\gamma\Delta t$ pendant ce temps très court sont très faibles. [Jaksch et al., 2000] proposent d'utiliser l'état $n = 18$ du sodium ($\gamma \sim 2\pi \times 100$ kHz) avec deux atomes distants de 300 nm, ce qui donnerait $v_{dd} = 2\pi \times 1.8$ GHz. pour un champ statique $F = 100$ V/cm. Une solution pour l'adressage individuel des atomes est le piégeage optique. Il apparaît cependant difficile d'obtenir une distance de 300 nm expérimentalement, les pièges optiques étant limités par la diffraction²⁹. Le premier modèle quant à lui donne $\Delta t = \pi/v_{dd}$. Avec l'hypothèse $\Omega \gg v_{dd}$, si $v_{dd} \sim 1$ MHz, la durée serait plutôt de l'ordre de la microseconde. D'autre part, dans ce premier modèle, les atomes passent un certain temps tous les deux dans l'état Rydberg. De ce fait peut intervenir un mouvement induit par les forces dipolaires, potentiellement responsables de collisions déphasantes, ou de décalages d'énergie non désirés.

L'implémentation de cette porte à partir d'atomes uniques piégés en piège FORT (Far-Off-Resonance Trap) est discutée dans l'article [Saffman and Walker, 2005], notamment du point de vue des problèmes de décohérence. Plusieurs points pouvant altérer les performances d'une telle porte doivent être considérés : fluctuations de la distance internucléaire, collisions avec le gaz résiduel, émission spontanée, bruit d'intensité sur le laser, mais également le fait que la polarisabilité dans le piège FORT n'est pas la même pour les états $|g\rangle$ et $|r\rangle$ (ceci induisant un déphasage dépendant de la position des atomes dans le piège et donc du temps). Pourraient également intervenir des collisions entre atomes de Rydberg si ceux-ci sont trop proches. Selon [Ryabtsev et al., 2005], si on admet que la distance internucléaire R doit être au moins 10 fois plus grande que le rayon des atomes $r = \frac{a_0}{2}(3n^2 - l(l+1))$, alors pour des atomes distants de $R = 5 \mu m$,³⁰ cela conduit à ne pas exciter des atomes de Rydberg trop élevés : $n_{max} = 80$.

[Jaksch et al., 2000] propose de modifier leur deuxième modèle en utilisant des impulsions chirpées, de façon à réaliser des transferts adiabatiques rapides pour chacune des transitions. Cette méthode est intéressante car elle permet de ne plus adresser séparément les deux atomes mais dans ce cas la porte est plus lente.

D'autres propositions ont été faites sur la base de celles-ci [Protsenko et al., 2002, Ryabtsev et al., 2005]. Dans [Protsenko et al., 2002], les auteurs suggèrent d'utiliser leur montage permettant de piéger deux atomes uniques dans deux pièges FORT microscopiques situés à des distances de l'ordre de 1,5-2 μm [Schlosser et al., 2001]. La porte de phase conditionnelle est très proche du modèle B de [Jaksch et al., 2000], chaque qubit serait représenté par deux niveaux hyperfins du Rubidium et cette porte utiliserait également le phénomène de blocage dipolaire empêchant l'excitation des deux atomes simultanément dans l'état Rydberg. Les principales différences proviendraient du fait que seraient utilisés le couplage³¹ $np, np \leftrightarrow ns, (n+1)s$ plutôt qu'un couplage par champ électrique et que l'excitation des état np serait réalisée à deux photons depuis l'état fondamental $5s_{1/2}$. De ce fait, l'excitation pourrait être réalisée simultanément sur les deux atomes mais des impulsions supplémentaires agissant sur chacun des qubits seraient nécessaires pour réaliser une vraie PPC [Protsenko et al., 2002]. Dans [Ryabtsev et al., 2005], la séquence est assez différente. Elle fait intervenir l'excitation à un photon d'un état np Rydberg et l'excitation à deux photons d'un état ns . Ceux-ci interagissent alors très fortement via une interaction dipôle-dipôle résonante. Des portes de phase d'une durée de 50 ns pourraient être obtenues avec une distance internucléaire de 5 μm et $n \approx 50$.

²⁹La tache d'Airy a pour diamètre $1.22\lambda/\sin\alpha$ où $\sin\alpha$ est l'ouverture numérique du faisceau focalisé. On peut faire au mieux $\sim \lambda$ en focalisant un faisceau laser.

³⁰5 μm correspondrait au pas d'une onde stationnaire d'un laser à CO₂.

³¹Nous avons vu que ce couplage peut être quasi-résonant en champ nul pour certains états $np_{3/2}$ du césium, c'est également le cas pour le Rubidium pour $n \sim 38$.

Mentionnons enfin la possibilité d'utiliser les forces dipolaires lorsque les atomes sont excités dans l'état de Rydberg [Cozzini et al., 2005]. Les deux atomes d'un piège harmonique sont excités dans un état de Rydberg (le blocage dipolaire n'est pas utilisé ici), ils subissent une brusque accélération de leur mouvement relatif sous l'effet des forces dipolaires. La phase des atomes après leur retour dans l'état fondamental provient alors de la modification de l'impulsion du mouvement relatif des deux atomes dans le piège harmonique. Cependant, cette phase dépendrait beaucoup de la position des atomes, du temps pendant lequel les atomes restent dans l'état excité et bien sûr de la force de l'interaction dipolaire.

La proposition de porte quantique utilisant le deuxième modèle de [Jaksch et al., 2000] est assez prometteuse parce qu'elle est rapide et dépend peu des fluctuations de la force de l'interaction dipolaire. Mais elle est d'autant plus intéressante qu'il est a priori possible d'encoder l'information dans un ensemble mésoscopique d'atomes en utilisant le blocage dipolaire [Lukin et al., 2001].

Un réseau optique permettant de piéger les atomes dans des volumes de l'ordre de $10 \mu\text{m}^3$ pouvant contenir un petit nombre d'atomes pourrait être créé (il serait nécessaire que les fluctuations du nombre d'atomes ΔN soient faibles en comparaison du nombre d'atomes par site). Ce piège pourrait être obtenu par exemple comme dans [Dumke et al., 2002] où un faisceau laser est focalisé au foyer d'un réseau de microlentilles. Un réseau de micromiroirs comme ceux utilisés dans les projecteurs DLP seraient encore plus adaptés car ils sont fabriqués pour effectuer un adressage pixelisé.

Pour un ensemble mésoscopique d'atomes contenant N atomes, l'état collectif fondamental est représenté par le produit tensoriel de l'état fondamental de chacun des N atomes :

$$|g^N\rangle = |g_1\rangle \otimes \dots \otimes |g_N\rangle \quad (1.89)$$

Lorsqu'une excitation collective des atomes de cet ensemble est effectuée depuis un état $|g\rangle$ vers un état $|e\rangle$ ³², les états collectifs à considérer sont une somme correctement symétrisée sur toutes les excitations individuelles possibles, ou états de Dicke. L'état avec n atomes dans l'état $|e\rangle$ et $N-n$ dans l'état fondamental s'écrit ainsi en l'absence d'interactions entre atomes :

$$|e^n g^{N-n}\rangle = \sqrt{(N-n)!/(N!n!)} \sum_{\sigma} |e_{\sigma(1)}\rangle \otimes \dots \otimes |e_{\sigma(n)}\rangle \otimes |g_{\sigma(n+1)}\rangle \otimes \dots \otimes |g_{\sigma(N)}\rangle \quad (1.90)$$

La somme est effectuée sur toutes les permutations possibles d'avoir n atomes dans l'état $|e\rangle$ et $N-n$ dans l'état fondamental. Nous supposons évidemment que les particules n'interagissent pas entre elles ce qui permet d'utiliser le fait que les différents termes de l'état produit $|e_{\sigma(1)}\rangle \otimes \dots \otimes |e_{\sigma(n)}\rangle \otimes |g_{\sigma(n+1)}\rangle \otimes \dots \otimes |g_{\sigma(N)}\rangle$ commutent entre eux (la position de l'indice relatif à la i ème particule n'a pas d'importance).

On peut écrire l'état contenant un atome excité dans l'état Rydberg de la façon suivante :

$$|r^1 g^{N-1}\rangle = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{i=1..N} |r_i\rangle \otimes \dots \otimes |g_2\rangle \otimes \dots \otimes |g_N\rangle \quad (1.91)$$

Par contre, l'expression des états accessibles diffèrent de (1.90) si les atomes peuvent interagir. Supposons que les conditions utilisées soient telles que l'interaction dipôle-dipôle

³²Nous rappelons qu'une transition Raman peut être utilisée

de deux atomes dans l'état Rydberg est importante (en champ électrique ou à résonance de Förster). A résonance de Förster, l'excitation d'un deuxième atome vers l'état de Rydberg est beaucoup moins efficace. L'état (1.91) est en effet peu couplé par laser (car hors résonance) à l'ensemble des états doublement excités s'écrivant sous la forme³³ :

$$|\pm_{ij}^2\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}[|g_1\dots r_i\dots r_j\dots g_N\rangle \pm (|g_1\dots s_i\dots s'_j\dots g_N\rangle + |g_1\dots s'_i\dots s_j\dots g_N\rangle)]/\sqrt{2} \quad (1.92)$$

où i et j sont deux atomes dans l'état Rydberg supposés interagissant via le procédé Förster $np + np \leftrightarrow ns + (n + 1)s$. On note $s \equiv (ns)$ et $s' \equiv (n + 1)s$ faisant apparaître les deux nouveaux états propres $|+\rangle$ et $|-\rangle$. Les produits tensoriels ont été omis pour simplifier l'expression.

Il est maintenant possible d'imaginer l'implémentation de la porte de phase (1.88) à partir de deux ensembles mésoscopiques d'atomes séparés seulement de quelques microns. L'excitation d'un atome dans un des ensembles peut bloquer l'excitation dans l'autre ensemble si l'interaction dipôle-dipôle est suffisante. L'état collectif des deux nuages est décrit comme un état produit pouvant prendre les valeurs $|g^N\rangle \otimes |g^N\rangle$ (deux nuages dans l'état collectif fondamental), $|g^N\rangle \otimes |e^1g^{N-1}\rangle$, $|e^1g^{N-1}\rangle \otimes |g^N\rangle$ et $|e^1g^{N-1}\rangle \otimes |e^1g^{N-1}\rangle$. Comme pour le modèle (1.88), le blocage dipolaire de l'excitation empêche l'excitation d'états collectifs doublement excités.

Les séquences d'impulsions non plus appliquées à deux atomes adressés séparément mais à deux ensembles mésoscopiques d'atomes distincts pour obtenir le modèle (1.88) conduisent à la même table de vérité :

$$\begin{aligned} |g^N\rangle \otimes |g^N\rangle &\rightarrow |g^N\rangle \otimes |g^N\rangle \\ |g^N\rangle \otimes |e^1g^{N-1}\rangle &\rightarrow -|g^N\rangle \otimes |e^1g^{N-1}\rangle \\ |e^1g^{N-1}\rangle \otimes |g^N\rangle &\rightarrow -|e^1g^{N-1}\rangle \otimes |g^N\rangle \\ |e^1g^{N-1}\rangle \otimes |e^1g^{N-1}\rangle &\rightarrow e^{i(\pi-\phi)}|e^1g^{N-1}\rangle \otimes |e^1g^{N-1}\rangle \end{aligned} \quad (1.93)$$

Finalement, le blocage dipolaire pourrait permettre également de manipuler des registres quantiques de qubits de dimensions plus accessibles à l'expérience.

D'autres applications du blocage dipolaire de l'excitation dans des ensembles d'atomes, notamment spectroscopiques, basées sur la possibilité de contrôler totalement l'état collectif $|s^n g^{N-n}\rangle$ ou l'état $|s\rangle$ est un état de stockage. Grâce au blocage dipolaire il est en effet possible de réaliser toute combinaison linéaire des états $|s^n g^{N-n}\rangle$ avec des impulsions laser bien choisies³⁴ [Lukin et al., 2001]. La connaissance du nombre exact d'atomes dans un état donné permettra de réaliser des études interférométriques particulièrement précises.

³³On remarquera que la présence de l'interaction dipôle-dipôle permet a priori spectroscopiquement de distinguer les états $|+_{ij}^2\rangle$ et $|-_{ij}^2\rangle$ parmi les autres états collectifs doublement excités. La mesure spectroscopique permet alors de discerner les atomes deux à deux. La fonction d'onde d'un état collectif doublement excité n'est plus un état de Dicke (elle n'appartient plus au sous-espace des fonctions d'onde symétrisées).

³⁴La réalisation d'un état $|s^n g^{N-n}\rangle$ est la suivante, en considérant un volume d'excitation suffisamment petit pour que le blocage dipolaire soit effectif. Un premier atome est excité vers un état de Rydberg, et un seul à cause de l'interaction dipôle-dipôle entre atomes de Rydberg. Il est ensuite transféré dans un état de stockage de longue durée de vie et dans lequel les atomes n'interagissent pas. Cette étape peut être reproduite un grand nombre de fois, chacun des atomes étant excité vers l'état de Rydberg puis transféré dans l'état de stockage. Cette technique est relativement puissante car elle ne nécessite pas d'adressage des atomes. Pour préciser, supposons que $(n - 1)$ atomes sont déjà dans l'état de stockage et qu'un atome vient d'être excité dans l'état Rydberg. Le système se réduit à un système à deux niveaux possibles, l'un comprenant une excitation Rydberg

De façon pratique, il n'y a effectivement blocage de l'excitation que si la résolution spectrale de l'excitation³⁵ $\Delta\nu$ est inférieure au décalage causé par l'interaction dipôle-dipôle, soit $\Delta\nu < v_{dd}$. Ceci impose que le volume à l'intérieur duquel on souhaite que le blocage dipolaire soit effectif soit suffisamment petit. D'autre part, l'interaction dipôle-dipôle peut dépendre fortement de la disposition des atomes. C'est notamment le cas en champ électrique à cause de la dépendance angulaire de l'interaction, et ceci peut conduire à un blocage seulement partiel de l'excitation. Dans un nuage atomique de volume plus important, l'excitation est seulement localement bloquée : l'excitation est limitée par le blocage dipolaire à partir du moment où la densité d'atomes de Rydberg excités est telle que l'espacement internucléaire moyen R_d vérifie $v_{dd}(R_d) \sim \Delta\nu$. Il en résulte une saturation de l'excitation dans l'ensemble du nuage atomique. Des expériences ont déjà mis en évidence une saturation de l'excitation due à l'interaction Van der Waals [Tong et al., 2004]. Dans ce cas, l'interaction est à plus proche portée (en $1/R^6$) mais suffit déjà à décaler suffisamment les niveaux d'énergie pour empêcher l'excitation des plus proches voisins d'un atome de Rydberg. Plus récemment encore, le blocage dipolaire dû à l'interaction dipôle-dipôle résonante (interaction dominante en $1/R^3$) a été mis en évidence au laboratoire Aimé Cotton [Vogt et al., 2006].

Dans cette introduction, la plupart des éléments qui seront utiles à l'interprétation des études d'interactions entre atomes de Rydberg froids réalisées dans cette thèse ont été présentés. Nous avons notamment exposé la possibilité originale de contrôler l'excitation vers des états de Rydberg via l'interaction dipôle-dipôle entre atomes de Rydberg, conduisant à la possibilité du blocage dipolaire. Nous reviendrons en détails sur la problématique du blocage dipolaire au chapitre 4. La conclusion de cette thèse discutera dans quelle mesure les mécanismes physiques mis au jour confirment la possibilité de l'utiliser en information quantique.

délocalisée et l'autre aucune excitation Rydberg mais n atomes dans l'état de stockage. Après un temps T_0 tel que $\sqrt{n}\Omega T_0 = \pi$, les n atomes se retrouvent dans l'état de stockage. Il suffit donc d'utiliser des impulsions de durée définies pour réaliser le transfert d'un nombre d'atomes fixés dans l'état de stockage.

³⁵La résolution spectrale de l'excitation est en première approximation égale à la somme $\Delta\nu_{Laser} + \frac{1}{T}$ où T est la durée de l'impulsion laser.

Chapitre 2

Excitation laser haute résolution d'un gaz d'atomes de Rydberg froids

2.1 Introduction

Ce chapitre décrit succinctement le montage expérimental basé sur l'utilisation d'un piège magnéto-optique de césium et aborde plus en détail différentes techniques d'excitation vers des états de Rydberg. Le montage a été réalisé en 1996 et a subi depuis plusieurs modifications dont la dernière a consisté à permettre l'application d'un laser à CO₂. Ce laser n'est pas utilisé pour l'étude concernant les atomes de Rydberg car son effet est de les ioniser très efficacement. Une modification du montage réalisée au cours de cette thèse concerne l'établissement d'une excitation à haute résolution vers des états de Rydberg dans un processus à trois étages utilisant des lasers continus : $6s \rightarrow 6p_{3/2} \rightarrow 7s \rightarrow np$. La mise en évidence du blocage dipolaire, qui est la motivation principale de cette thèse, nécessite en effet une excitation à haute-résolution, fournie par exemple par l'utilisation de lasers très fins spectralement. Nous nous sommes naturellement orientés vers l'utilisation des lasers continus et notamment d'un laser Ti:Sa solide, qui conjugue grande accordabilité et grande finesse spectrale, pouvant être utilisé pour réaliser la transition $7s \rightarrow np$. L'excitation étant effectuée à partir d'atomes d'un piège magnéto-optique dont la température est de l'ordre de 125 μ K, l'élargissement Doppler est très faible, typiquement inférieur à 300 kHz pour la transition D2 du césium. De cette façon, il est possible de détecter spectroscopiquement la présence d'interactions extrêmement faibles.

La présent chapitre va traiter de la source atomique et des différents schémas d'excitation considérés. Une analyse théorique fine sera effectuée en comparaison avec les résultats expérimentaux concernant les différents schémas d'excitation, de manière à bien analyser leurs possibilités. Deux schémas d'excitation seront notamment présentés, le premier étant un schéma combinant une excitation pulsée et une excitation continue et le second concernant le schéma d'excitation continue à trois étages. Un dernier paragraphe montre les possibilités de l'excitation Rydberg à haute résolution vers des états de grand nombre quantique principal n , jusqu'à $n \sim 300$, permettant notamment une étude précise des bruits électromagnétiques.

2.2 Dispositif expérimental

Cette section est destinée à présenter les différentes composantes expérimentales. Nous présentons tout d'abord brièvement la source d'atomes froids, le piège magnéto-optique (PMO)

de césium. Viennent ensuite les différents schémas d'excitation utilisés pour exciter les atomes de Rydberg et la méthode de détection par ionisation par champ électrique. Un dernier point décrit les problèmes de polarisation des atomes de Rydberg en présence d'un champ électrique statique.

2.2.1 La source atomique : le piège magnéto-optique de césium

Différents articles de revue peuvent être consultés concernant le piégeage magnéto-optique d'atomes neutres [Cohen-Tannoudji, 1992, Metcalf and van der Straten, 1994, Metcalf and van der Straten, 2003], nous n'en développons pas le principe dans ce manuscrit. Le montage du piège magnéto-optique de césium que nous utilisons a par ailleurs été décrit en détails dans plusieurs thèses réalisées au Laboratoire Aimé Cotton [Comparat, 1999, Drag, 2000]. Nous rappelons simplement ses principales caractéristiques (cf Fig. 2.1).

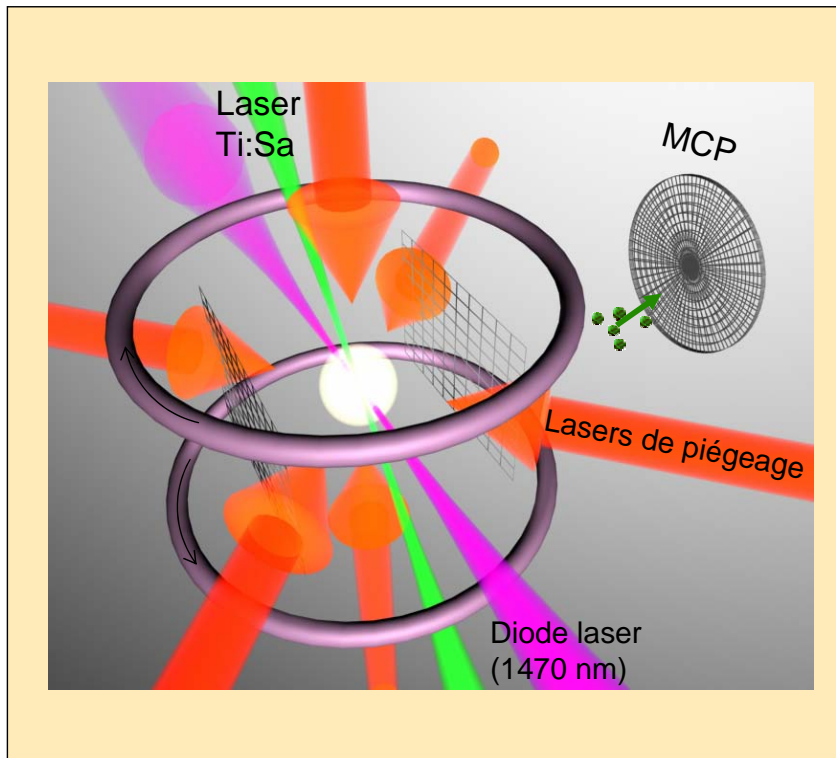


FIG. 2.1 – Représentation globale du dispositif expérimental. Nous avons représenté les éléments du piège magnéto-optique (lasers de piégeage du PMO, bobines de champ magnétique), ainsi que les faisceaux lasers d'excitation continue vers les états de Rydberg (laser Ti:Sa et une diode fonctionnant à 1470 nm). Le nuage d'atomes piégés est entouré de deux grilles accélératrices percées de trous et laissant passer les faisceaux horizontaux du piège. Un champ électrique peut être appliqué entre les deux grilles avec une uniformité de l'ordre de 0.1%. Ce champ peut être pulsé pour ioniser les atomes de Rydberg et accélérer les ions vers des galettes microcanaux (MCP).

Le piège est chargé de manière continue à partir d'une vapeur de césium provenant du dégazage d'une ampoule de césium liquide à 300K dans une enceinte dont le vide est de l'ordre de $\sim 10^{-10}$ mbar.

6 faisceaux laser pièges polarisés circulairement utilisés pour le refroidissement et le piégeage totalisent une puissance de 40 mW et sont collimatés au niveau du PMO avec un waist

d'environ 5 mm. Ces faisceaux sont issus d'une même diode de puissance SDL 5422 H1. Celle-ci est asservie sur la transition D2 du césium $6s_{1/2}, F = 4 \rightarrow 6p_{3/2}, F' = 5$ par injection par une diode maître, en l'occurrence une diode DBR SDL 5712 H1 asservie par absorption saturée¹. Le laser repompeur est également une diode DBR, asservie sur la transition $6s_{1/2}, F = 3 \rightarrow 6p_{3/2}, F' = 4$ (par absorption saturée). Les expériences de blocage dipolaire nécessitent une grande stabilité de l'échantillon d'atomes refroidis et un soin particulier doit être apporté au montage.

Le gradient de champ magnétique est obtenu par deux bobines montées en configuration anti-Helmoltz. Il est de 15 Gauss/cm dans la direction axiale (verticale) Z des bobines et deux fois moindre dans les directions radiales X et Y. Les intensités des faisceaux sont adaptées pour rétablir une quasi-sphéricité du piège.

Finalement, nous obtenons une distribution des atomes dans le piège proche d'une gaussienne², de taille à $1/\sqrt{e}$ d'environ $300 \mu\text{m}$, contenant environ $5 \cdot 10^7$ atomes soit une densité moyenne $\sim 4 \cdot 10^{10} \text{ at/cm}^{-3}$ et une densité pic $\sim 10^{11} \text{ at/cm}^{-3}$. Quant à la température, elle est typiquement de l'ordre de la température Doppler $\sim 125 \mu\text{K}$.

2.2.2 Méthodes d'excitations laser : aspects expérimentaux

Les différents schémas d'excitation laser que nous avons pu utiliser pour l'excitation vers des états de Rydberg sont présentés dans cette section. Une excitation de type pulsée a été utilisée dans un certain nombre d'expériences, notamment dans une expérience utilisant une spectroscopie dite de "creusement spectral" (cf chapitre 5). Les fluctuations en intensité ou la grande largeur spectrale du laser faisant qu'il n'est pas possible de résoudre spectralement la structure fine des états Rydberg nd pour $n > 40$ rendent cependant ce type d'excitation peu adaptée à l'analyse spectrale fine nécessaire à l'observation du blocage dipolaire. Dans la perspective du blocage dipolaire, nous avons tout naturellement développé des techniques d'excitation continue haute résolution. L'excitation laser continue peut s'effectuer à partir d'un état peu excité, par exemple à partir de l'état $7s$ vers des états np dans le cas du césium, en utilisant les propriétés d'accordabilité et de stabilité très intéressantes du laser Ti:Sa. Cette approche, que nous avons choisie, nécessite a priori une excitation à deux étages vers l'état $7s$, $6s \rightarrow 6p \rightarrow 7s$, avec un laser à $1.47 \mu\text{m}$ que nous ne possédions pas au départ pour effectuer la deuxième transition. Nous avons opté dans un premier temps pour une méthode d'excitation différente, combinant une excitation laser pulsée et l'excitation laser continue du laser Ti:Sa vers des états de Rydberg, que nous dénommons *excitation pulsée-continue*. Par la suite nous avons développé le système d'excitation complètement continu après achat d'une diode laser fonctionnant à $1.47 \mu\text{m}$. Nous reviendrons en détails sur l'excitation laser au paragraphe 2.3, et discuterons notamment le choix de l'excitation continue par rapport à la méthode d'excitation pulsée suivant les expériences. Dans les paragraphes suivants sont présentés quelques caractéristiques expérimentales relatives à chacun des différents schémas d'excitation. Un point particulièrement développé est l'asservissement de la diode laser réalisant la transition $6p \rightarrow 7s$.

2.2.2.1 Excitation pulsée

Nous avons décrit au paragraphe 1.3.4.2 le schéma d'excitation pulsée utilisé dans l'expérience [Mourachko et al., 1998] pour l'excitation d'atomes de Rydberg. Des lasers à colorant

¹Nous verrons plus en détail cet asservissement au paragraphe 2.3.3.

²Nous ne disposons pas d'imagerie par absorption, nous nous référons à la mesure effectuée dans la thèse de notre prédécesseur [Laburthe Tolra, 2001].

pulsés ont été utilisés historiquement au laboratoire Aimé Cotton pour l'excitation d'atomes de Rydberg. La Coumarine 500 (bande de gain 480-540 nm) permet l'excitation du césium depuis l'état $6p_{3/2}$ vers les états de Rydberg (typiquement $n = 20 - \infty$). Le laser à colorant est pompé par un laser impulsif Nd:YAG (longueur d'onde $\lambda=1064$ nm, durée d'impulsion ~ 10 ns) "triplé" à 355 nm et permet l'obtention d'impulsions d'énergie $\sim 0 - 500$ μ J. Le colorant DCM (plage d'accordabilité 610-660 nm) pompé par la fréquence double du laser Nd:YAG (532 nm) peut aussi être utilisé pour réaliser une excitation à 2 photons à partir de l'état $6s_{1/2}$ vers des états de Rydberg ns ou nd . Les lasers pulsés utilisés pour l'excitation d'atomes de Rydberg au Laboratoire Aimé Cotton ont souvent présenté une bande spectrale large (\sim quelques 3-10 GHz). Le spectre de ces lasers pulsés n'est pas en effet limité par transformée de Fourier. Chaque impulsion est une superposition d'une dizaine de modes longitudinaux³ dont l'intensité relative fluctue coup à coup : le spectre résultant est donc très large et peu stable, d'une largeur de l'ordre de 3 GHz pour le laser que nous avons utilisé. Mentionnons que pour éviter ce problème, il est possible de réaliser un laser pulsé monomode par amplification pulsée d'un laser continu, comme cela a été utilisé dans l'expérience [Tong et al., 2004]. Un autre inconvénient avec ces lasers peut résider dans les problèmes de photoionisation. Pour les limiter, un très bon contrôle de l'émission spontanée amplifiée⁴ (ESA) est requis. La fluorescence crée en effet un spectre continu dont les fréquences peuvent être supérieures à la fréquence optique du seuil d'ionisation. Malgré ces inconvénients, les excitations pulsées présentent l'intérêt d'être rapides et efficaces. Un point que nous développons particulièrement au paragraphe 2.3.1 est la possibilité de réaliser un transfert de population vers un état Rydberg indépendamment des interactions dipôle-dipôle entre atomes lorsque l'excitation est pulsée et donc de grande largeur spectrale.

2.2.2.2 Excitation pulsée-continue

Un premier schéma d'excitation "quasi-continue" vers des états de Rydberg que nous avons développé est une excitation en trois étapes (cf Fig. 2.2), dénommée excitation pulsée-continue (PC) car elle combine en fait excitations pulsée et continue. Dans une première étape, les atomes sont excités depuis l'état $6s_{1/2}$, $F = 4$ vers l'état $7p_{3/2}$ avec un laser colorant pulsé⁵ (transition à 455,66 nm). Ils se desexcitent ensuite spontanément vers l'état hyperfin⁶ $7s_{1/2}$, $F = 4$ à partir duquel ils peuvent être excités vers des états de Rydberg $np_{1/2}$ ou $np_{3/2}$ avec un laser solide Titane:Saphire (Ti:Sa) dans la plage 770 – 800 nm. Ce laser Ti:Sa présente de nombreux avantages pour cette excitation : grande accordabilité (plage de lasage 700 – 1000 nm avec seulement 3 changements de jeux d'optiques pour la cavité en anneau Coherent Ring 899), grande stabilité, résolution spectrale meilleure que le MHz et puissances accessibles élevées (0-1 W). L'analyse des taux d'excitation et des formes de raies est effectuée dans la section 2.3.2. Nous verrons notamment que l'un des inconvénients majeurs de ce schéma d'excitation est la photoionisation résonante à 2 photons via l'état $7p_{3/2}$ par le laser pulsé.

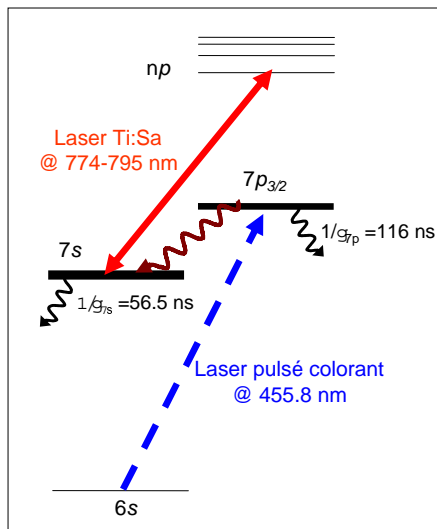


FIG. 2.2 – Schéma d’excitation pulsée-continue. Une impulsion d’une durée de 10 ns et de quelques μJ excite les atomes du PMO vers l’état $7p_{3/2}$. Ceux-ci se désexcitent ensuite spontanément vers l’état $7s_{1/2}$. Le temps d’excitation par le laser Ti:Sa est limité par la durée de vie des niveaux $7p$ (~ 116 ns) et $7s$ (~ 56 ns).

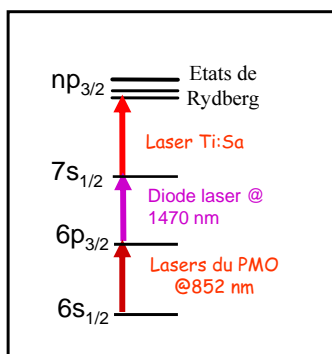


FIG. 2.3 – Schéma d’excitation continue à trois couleurs : les lasers de piégeage réalisent la transition $6s_{1/2} \rightarrow 6p_{3/2}$, $F = 5$, une diode laser montée en cavité étendue réalise la transition $6p_{3/2}$, $F = 5 \rightarrow 7s_{1/2}$, $F = 4$ et enfin le laser Ti:Sa permet d’exciter les atomes dans un état de Rydberg $np_{1/2}$ ou $np_{3/2}$.

2.2.2.3 Excitation continue

Afin de réaliser une spectroscopie plus fine, notamment sans les fluctuations de fréquence du laser pulsé et sans présence de photoions, il a été décidé de développer une spectroscopie complètement continue des états de Rydberg. L'excitation directe depuis l'état $6s_{1/2}$ nécessiterait l'utilisation d'un laser UV, un peu difficile à mettre en oeuvre. Une possibilité est l'utilisation d'une cavité de doublage pour un laser à colorant fonctionnant avec du colorant DCM⁷. Ces lasers colorants sont cependant moins stables, à long terme notamment, que des lasers solides. Nous avons choisi dans le cadre de cette thèse de poursuivre l'excitation depuis l'état $7s$ avec le laser Ti:Sa, mais d'utiliser une diode laser asservie sur la transition $6p_{3/2}, F = 5 \leftrightarrow 7s_{1/2}, F = 4$ ($\lambda = 1469.8918(3)$ nm) pour exciter les atomes dans l'état $7s_{1/2}, F = 4$ depuis l'état $6p_{3/2}, F = 5$ (voir Fig. 2.3). Cette diode laser infrarouge (DL100 TOPTICA) est montée en cavité étendue et permet d'obtenir 20 mW de puissance avec une largeur spectrale d'environ 100 kHz. La première excitation $6s, F = 4 \rightarrow 6p_{3/2}, F = 5$ est quant à elle réalisée avec les lasers pièges du PMO. En régime de fonctionnement du PMO, les lasers pièges sont décalés d'environ $-3\Gamma \simeq -2\pi \times 15$ MHz par rapport à la transition atomique $6s, F = 4 \rightarrow 6p_{3/2}, F = 5$, mais durant l'excitation, ce décalage est en général ramené à $\sim 2\pi \times 10$ MHz pour transférer une plus grande partie des atomes dans l'état $6p_{3/2}$. L'analyse des formes de raie est effectuée au paragraphe 2.3.3 où nous développons plus particulièrement un modèle de l'excitation.

2.2.2.4 Asservissement du laser réalisant la transition $6p \rightarrow 7s$

Toutes les diodes laser de notre montage sont asservies en utilisant des méthodes d'absorption par des vapeurs atomiques. Ce paragraphe est avant tout technique et destiné à décrire un tel asservissement, celui de la diode laser fonctionnant à $\sim 1,47\mu\text{m}$. Cette diode est asservie suivant le schéma de fonctionnement 2.4. Dans ce schéma d'asservissement, une première diode laser en cavité étendue est asservie sur la transition $6s \rightarrow 6p_{3/2}$ (~ 852.36 nm) sur l'un des pics d'absorption saturée de la figure 2.5 obtenus après double passage dans une première cellule contenant du césium. Dans le schéma d'absorption saturée, le premier passage permet de pomper les atomes dans l'état $6s, F = 4 \rightarrow 6p_{3/2}$ sans que la structure hyperfine du niveau $6p_{3/2}$ ne soit résolue en raison de l'effet Doppler : à 300 K, pour une transition ω_0 donnée du césium, la largeur spectrale du profil Doppler est d'environ 400 MHz car chaque atome absorbe le faisceau laser pompe pour une fréquence laser différente, égale à $\omega_0 - \vec{k} \cdot \vec{v}$ avec \vec{k} le vecteur d'onde de l'onde laser et \vec{v} la vitesse de l'atome. On définit par $\vec{k} \cdot \vec{v}$ des classes de vitesse d'atomes absorbant le faisceau laser à la même fréquence. Le deuxième passage est utilisé comme sonde : il existe certaines fréquences pour lesquelles la même classe de vitesse absorbe le faisceau pompe pour une transition $6s, F = 4 \rightarrow 6p_{3/2}, F'$ et le faisceau sonde pour une transition $6s, F = 4 \rightarrow 6p_{3/2}, F''$ ($F' = F''$ pour la classe de vitesse nulle, apparaissent également les "crossover" CO 3-4, CO 3-5 et CO 4-5 pour lesquels $F' \neq F''$), des pics de transmission sont alors observés sur le profil d'absorption Doppler du faisceau sonde et utilisés pour l'asservissement.

³Le filtrage spectral est réalisée au moyen de réseaux, 1 ou 2 dans une cavité laser à colorant de type Moya.

⁴Le faisceau laser issu de la cavité de type Moya est amplifié dans deux amplificateurs. L'émission spontanée amplifiée provient de l'amplification de la fluorescence, dont une partie est issue de cette première cavité.

⁵Le colorant utilisé est la Coumarine 450. La structure hyperfine de l'état $7p_{3/2}$ n'est pas résolue par le laser pulsé.

⁶La structure hyperfine de l'état $7s_{1/2}$ est de 2.198 GHz [Gilbert et al., 1983]

⁷Le laboratoire vient de faire l'acquisition d'un laser à colorant continu (de la société Technoscan) pouvant délivrer jusqu'à 1 W de puissance avec une résolution de 100 kHz.

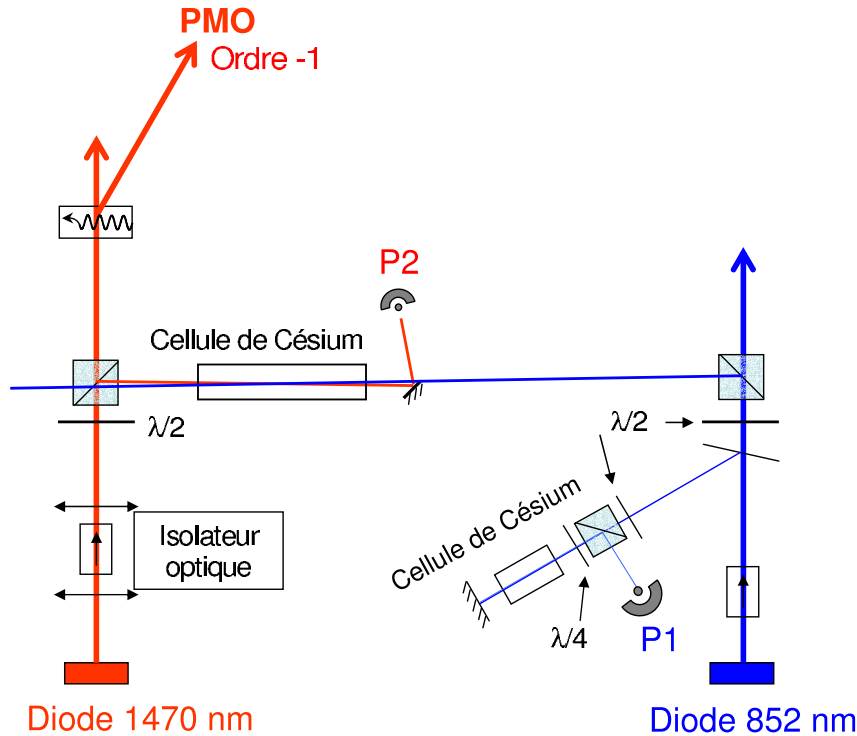


FIG. 2.4 – Montage expérimental de l'asservissement de la diode fonctionnant à 1470 nm sur la transition $6p_{3/2} \leftrightarrow 7s_{1/2}$ avec une technique d'absorption à deux couleurs. La photodiode P1 enregistre le signal d'absorption saturée du faisceau à 852 nm et la photodiode P2 enregistre le signal d'absorption simple du faisceau laser sonde à 1470 nm.

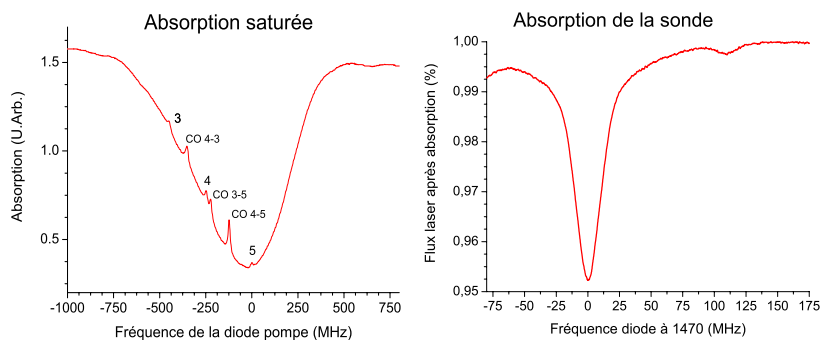


FIG. 2.5 – Spectres d'absorption saturée pour la diode de pompe et spectre d'absorption simple pour la sonde. Le spectre d'absorption saturée fait apparaître les pics de transmission aux fréquences $6s, F = 4 \rightarrow 6p_{3/2}, F'$, avec $F' = 3, 4$ ou 5 . Apparaissent également les différents "crossover" CO 3-4, CO 3-5 et CO 4-5. Le spectre d'absorption de la diode 1470 est obtenu lorsque la pompe (852 nm) est asservie sur le pic de transmission du CO 4-5. Deux "pics" d'absorption apparaissent, le plus important correspond à la transition $6p_{3/2}, F' = 5 \leftrightarrow 7s, F = 4$, l'autre à la transition $6p_{3/2}, F' = 4 \leftrightarrow 7s, F = 4$.

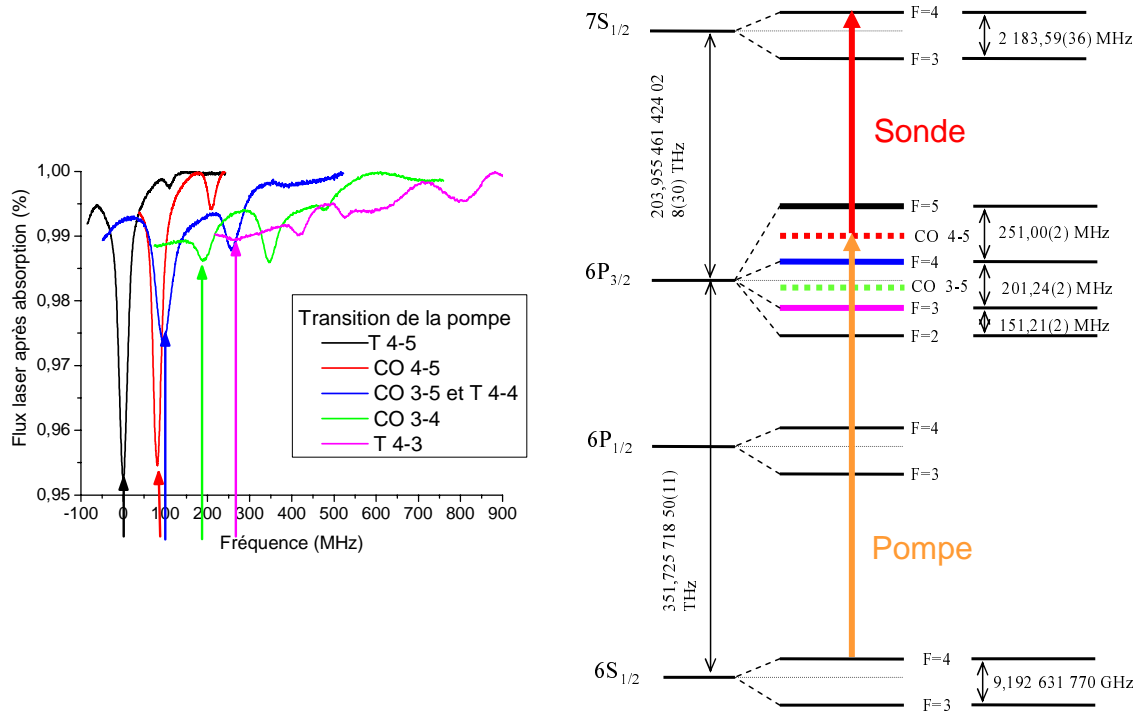


FIG. 2.6 – Profil d'absorption du faisceau à 1470 nm pour différentes fréquences d'asservissement de la diode de pompe. La transition $6p_{3/2}, F' = 5 \leftrightarrow 7s, F = 4$ est repérée par une flèche verticale. Son déplacement dans le spectre d'absorption en fonction de la fréquence de pompe est dû à l'effet Doppler.

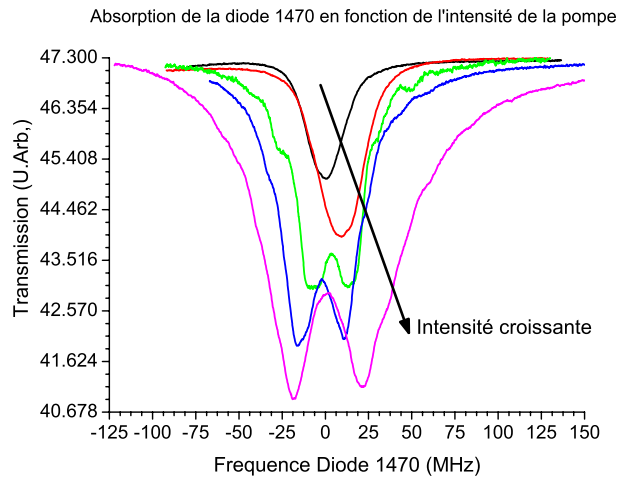


FIG. 2.7 – Observation du doublet Autler-Townes. La fréquence de Rabi séparant les deux pics du doublet est d'environ 46 MHz (courbe correspondant à l'intensité maximale sur la figure), en accord pour la transition $6p_{3/2}, F' = 5 \leftrightarrow 7s, F = 4$ avec le faisceau pompe de 1.3 mm de waist et de puissance 7 mW utilisé expérimentalement.

Cette première diode laser asservie sur une fréquence bien définie (largeur inférieure à 100 kHz) est envoyée dans une deuxième cellule de césium. Elle permet de pomper dans les états $6p_{3/2}, F'$ avec $F'=3, 4$ ou 5 des atomes de classes de vitesses définies par $\delta_i = \vec{k}' \cdot \vec{v}$ vérifiant $\omega_i = \omega_L - \delta_i$ ($\omega_i = \omega_3, \omega_4$ ou ω_5 suivant les différentes transitions possibles $6s, F = 4 \rightarrow 6p_{3/2}, F'$, ω_L est la fréquence du laser, \vec{k}' est le vecteur d'onde de l'onde laser dans cette deuxième cellule).

Une partie du faisceau de la diode de longueur d'onde 1470 nm (diode 1470), contre-propageant et confondu avec le faisceau pompe (décrit précédemment) permet de sonder la population transférée dans les différents états $6p_{3/2}, F'$. La figure 2.6 présente ainsi les spectres d'absorption du faisceau sonde pour différentes fréquences d'asservissement du faisceau pompe. Le pic d'absorption le plus net est obtenu lorsque la pompe est asservie sur la transition $6s, F = 4 \leftrightarrow 6p_{3/2}, F' = 5$ ou sur le crossover 4-5 (soit à ~ 125.5 MHz de la transition ω_5). Ce pic d'absorption correspond alors à la fréquence d'absorption $6p_{3/2}, F' = 5 \leftrightarrow 7s, F = 4$. Si la pompe est asservie sur une fréquence éloignée de ω_5 (ω_3 ou ω_4 par exemple), le pompage vers $6p_{3/2}, F' = 5$ est plus faible, d'autres pics d'absorption apparaissent, correspondant à la présence d'atomes dans les états $6p_{3/2}, F' = 3$ et $6p_{3/2}, F' = 4$. On remarquera que la fréquence du pic d'absorption de la transition $6p_{3/2}, F' = 5 \leftrightarrow 7s, F = 4$ varie en fonction de la fréquence de la diode de pompe : ceci est simplement dû au fait qu'une seule classe d'atomes est excitée par la pompe dans l'état $6p_{3/2}, F' = 5$ et que l'effet Doppler est différent pour le faisceau pompe et pour le faisceau sonde dans la configuration utilisée ici⁸.

En définitive, nous asservissons la diode de pompe sur le CO 4-5 et la diode 1470 sur le pic correspondant à la transition $6p_{3/2}, F' = 5 \leftrightarrow 7s, F = 4$. Pour exciter les atomes du PMO dont la vitesse est quasi nulle, il est nécessaire de décaler la fréquence de la diode laser de 72.8 MHz (donnés par la formule de la note 8). Figure 2.7, une analyse plus précise du pic d'absorption est donnée en utilisant cette configuration en fonction de la puissance de la diode pompe. A puissance faible, le profil d'absorption est plus ou moins lorentzien d'une largeur de l'ordre de 8 MHz et limité par les largeurs naturelles des états $6p_{3/2}$ et $7s, 5.2$ et 2.8 MHz respectivement. Lorsque la puissance pompe augmente (transition $6s \rightarrow 6p_{3/2}$), le profil s'élargit puis apparaît un doublet Autler Townes. L'apparition de ce doublet en champ fort se comprend dans la vision de l'atome habillé par le champ électrique (voir par exemple [Cohen-Tanoudji, 1977]). L'état avec un atome dans l'état $6s$ et $n + 1$ photons du champ électrique $|6s, n + 1\rangle$ est couplé à l'état $|6p_{3/2}, n\rangle$ avec l'atome dans l'état excité et n photons du champ électrique (voir Fig. 2.8). Le couplage dipolaire électrique conduit à deux nouveaux états propres $|+\rangle$ et $|-\rangle$, séparés d'une énergie $\hbar\Omega$ lorsque le laser est à résonance (Ω est la fréquence de Rabi liée à la transition $6s_{1/2}, F = 4 \rightarrow 6p_{3/2}, F' = 5$). Le doublet apparaît en "sondant" les états d'énergie $|+\rangle$ et $|-\rangle$ avec un autre laser (transition $6p_{3/2}, F' = 5 \rightarrow 7s, F = 4$) lorsque la puissance du laser pompe devient importante. L'écartement du doublet Autler-Townes peut être utilisé pour mesurer les waists des lasers au niveau du PMO [Teo et al., 2002] : l'intensité laser est directement liée à la puissance, au waist et la fréquence de Rabi. Expérimentalement, seules des puissances faibles sont utilisées pour l'asservissement. La stabilité obtenue est finalement meilleure que le MHz.

⁸Pour le laser pompe d'impulsion ω_P avec direction de propagation \vec{u} et le laser sonde de fréquence ω_S et direction de propagation $-\vec{u}$, un atome de vitesse \vec{v} excité vers $6p_{3/2}, F' = 5$ puis $7s, F = 4$ (fréquence de transition ω'_5) vérifie les relations $\omega_5 = \omega_P(1 - \frac{\vec{u} \cdot \vec{v}}{c})$ et $\omega'_5 = \omega_S(1 + \frac{\vec{u} \cdot \vec{v}}{c})$, soit $\omega_S \simeq \omega'_5 + (\omega_5 - \omega_P) \times \frac{\omega'_5}{\omega_5}$.

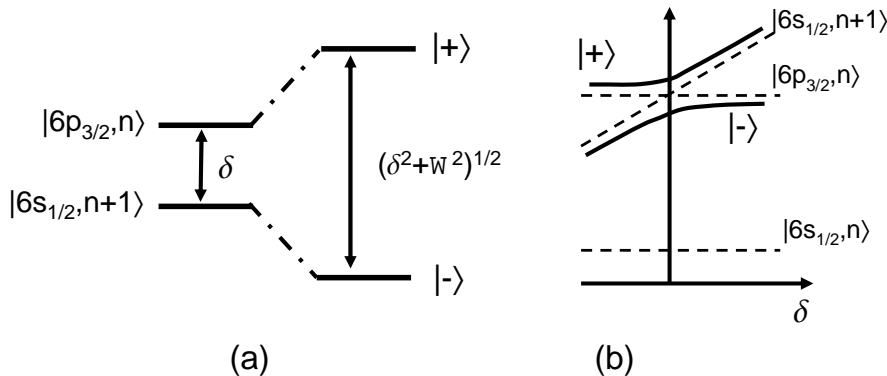


FIG. 2.8 – Vision de l’atome habillé par le champ électromagnétique. (a) En présence d’un champ électrique (décalage δ par rapport à la transition atomique et fréquence de Rabi Ω), les états $|6s_{1/2}, n+1\rangle$ ($n+1$ photons) et $|6p_{3/2}, n\rangle$ (n photons) sont couplés. Les deux nouveaux états propres $|+\rangle$ et $|-\rangle$ sont séparés par une énergie égale à $\hbar\sqrt{\delta^2 + \Omega^2}$. (b) Diagramme énergétique en présence du couplage par le champ de fréquence optique ω . La référence d’énergie est l’état à n photons $|6s_{1/2}, n\rangle$ d’énergie $E(6s_{1/2}) + (n + \frac{1}{2})\omega$. A résonance ($\delta = 0$), le croisement entre les états $|6s_{1/2}, n+1\rangle$ et $|6p_{3/2}, n\rangle$ est évité. Hors résonance, les états $|+\rangle$ et $|-\rangle$ convergent vers les états non perturbés. Notamment, si les états $|+\rangle$ et $|-\rangle$ sont sondés avec la diode 1470, il est observé un doublet à résonance ($\delta = 0$), mais hors résonance, le niveau convergeant vers l’état $|6p_{3/2}, n\rangle$ induit une excitation en deux étapes à un photon vers l’état $7s$ alors que le niveau convergeant vers l’état $|6s_{1/2}, n+1\rangle$ induit une transition à 2 photons.

2.2.3 Détection

Après excitations d’états de Rydberg, par laser (éventuellement par microonde), la détection est effectuée par ionisation sélective par champ électrique, comme nous l’avons expliqué dans la section 1.2.5.2 : une rampe de champ avec un temps de montée⁹ de l’ordre de $1 \mu\text{s}$ est appliquée entre les deux grilles entourant le PMO. Elle permet d’ioniser à des temps différents des états $|n, l\rangle$ différents (voir Fig. 2.9). Suite à l’ionisation des atomes de Rydberg, les ions sont accélérés par l’impulsion de champ électrique vers une paire de galettes microcanaux permettant de convertir le signal ionique en un signal électronique et de l’amplifier (nous pouvons également choisir de détecter les électrons). L’efficacité de détection d’un atome de Rydberg est typiquement évaluée à 30%, principalement limitée par le rendement des galettes.

Le nombre d’ions est calibré en mesurant l’aire A_0 de l’impulsion électronique correspondant à l’arrivée d’un ion unique (le signal électronique d’aire A est relié au nombre d’ions N par $A = N \times A_0$). L’aire du signal est mesurée simplement par intégration du signal électronique après amplification (avec des portes d’intégration de la société Stanford Research Systems). Un ion unique donne un signal distribué sur une plage importante de valeurs. Cette calibration est précise à un facteur deux près. Ce facteur doit être pris en compte dans les valeurs de densités atomiques que nous mentionnons.

2.2.4 Contrôle de la polarisation

Pendant l’excitation, un champ électrique statique peut être appliqué entre deux grilles entourant le PMO, séparées l’une de l’autre par une distance égale à 1.575 cm. Ce champ

⁹L’impulsion d’ionisation est précédée d’une légère oscillation d’amplitude nous imposant de l’appliquer 700 ns au plus tôt après l’excitation.

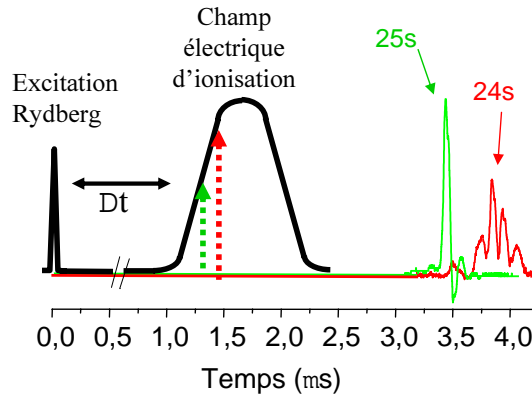


FIG. 2.9 – Illustration de la détection d'atomes de Rydberg par ionisation sélective en niveaux d'énergie. Une rampe de champ électrique ionise à des délais variables différents états de Rydberg. Nous superposons par exemple les spectres de temps de vol pour une excitation des états 25s ou 24s pour une même impulsion de champ électrique : il est possible de les distinguer.

électrique peut être utilisé notamment pour polariser les atomes de Rydberg dans un état $|m_j|$ donné.

Il est alors possible d'exciter individuellement l'état $|m_j| = 1/2$ lorsque la polarisation du laser d'excitation est parfaitement linéaire parallèle à la direction du champ électrique que l'on applique. La figure 2.10 compare l'excitation pour différents champs électriques pour une direction de la polarisation du laser Ti:Sa linéaire parallèle à l'axe du champ électrique statique (a) ou perpendiculaire (b) dans le cas de l'excitation continue (la fréquence balayée est celle du laser Ti:Sa). En (a), seul l'état $75p_{3/2}, |m_j| = 1/2$ est excité. La chute de l'excitation de l'état $75p_{3/2}, |m_j| = 1/2$ en fonction du champ électrique est principalement due au blocage dipolaire comme nous le verrons au chapitre 4. En (b), l'excitation des états $70p_{3/2}, |m_j| = 1/2$ et $70p_{3/2}, |m_j| = 3/2$ est possible. Les deux états se séparent pour un champ de l'ordre de 0.15 V/cm. Les positions expérimentales des deux niveaux sont reportées sur la Fig. 2.10 (c). On comprend à la lumière de ces deux exemples que pour analyser proprement l'excitation en fonction du champ électrique, il est nécessaire de n'exciter qu'un seul de ces deux états. Cela suppose un contrôle très propre de la direction des champs électromagnétiques.

La présence du gradient de champ magnétique aurait pu être légèrement dommageable en champ électrique nul car dans une partie des expériences, le champ magnétique n'est pas coupé (le champ magnétique n'est pas coupé dans l'étude sur le blocage dipolaire pour éviter des effets de surtension perturbant l'ensemble des autres alimentations électriques). Cependant, l'élargissement dû à l'effet Zeeman est inférieur à 300 kHz au niveau de la zone d'excitation car les faisceaux sont relativement focalisés dans ces expériences et il est donc peu probable que cela ait un effet. En effet, la présence du gradient du champ magnétique (en général coupé) ne peut induire qu'une très faible levée de dégénérescence des sous-niveaux Zeeman : un gradient de champ de l'ordre de 15 G/cm produit une inhomogénéité de champ d'environ 0.15 G pour une région d'excitation de l'ordre de 100 μm au centre du PMO. L'hamiltonien Zeeman est en première approximation le même quel que soit le niveau d'énergie. Un bon ordre de grandeur des élargissements de raie attendus est donné par le double du déplacement maximum des niveaux d'énergie obtenu en considérant uniquement l'effet Zeeman comme linéaire (calculé lorsque l'énergie d'interaction avec le champ magnétique est beaucoup plus faible que le couplage hyperfin, ce qui n'est a priori pas le cas pour les états de Rydberg), soit $\sim 2 \times 1 \text{ MHz/G}$

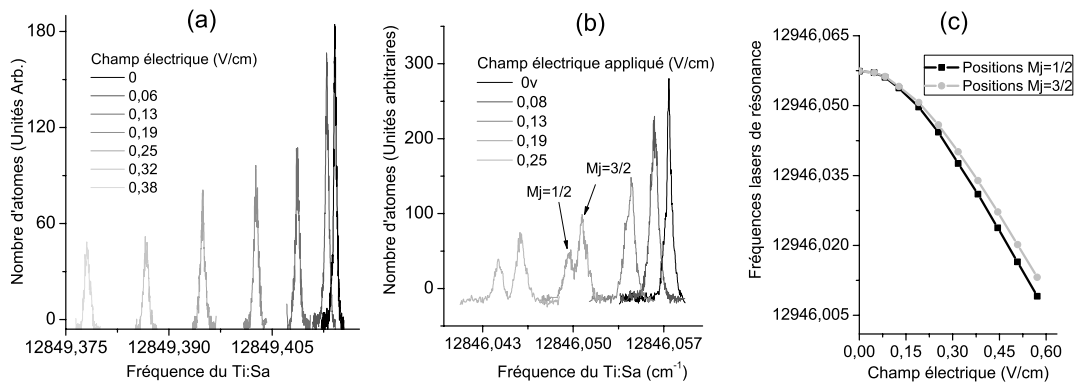


FIG. 2.10 – (a) Spectres de l'état $75p_{3/2}, |m_j| = 1/2$ pour différents champs électriques. L'interprétation de la chute d'excitation sera abordée au chapitre 4. (b) Spectres des états $70p_{3/2}, |m_j| = 1/2$ et $75p_{3/2}, |m_j| = 3/2$ pour différents champs électriques. La polarisation du laser Ti:Sa est perpendiculaire à l'axe du champ électrique. (c) Fréquences de résonance relevées expérimentalement pour les transitions $7s, F = 4 \rightarrow 70p_{3/2}, |m_j| = 1/2$ et $7s, F = 4 \rightarrow 70p_{3/2}, |m_j| = 3/2$.

pour les états $np_{3/2}$ [Steck, 2004]. Des champs parasites externes peuvent également perturber l'excitation. La compensation des champs magnétiques est ajustée proprement pour assurer un quasi zéro de champ magnétique au centre du PMO.

L'autre point à surveiller pour exciter une seule composante de polarisation atomique est la qualité du champ électrique appliqué. En pratique, le cumul des bruits sur chacune des tensions appliquées (champ statique de polarisation, champ d'ionisation pulsé) est réduit à moins de 1 mV/cm. Ceci permet d'éviter un élargissement des raies d'excitation. Un autre problème pourrait provenir de l'utilisation de grilles métalliques et non de plaques métalliques pour appliquer le champ électrique. Cependant, l'inhomogénéité calculée est inférieure à 0.1%. Des inhomogénéités pourraient être induites par la présence des galettes micro-canaux : cependant, une troisième grille (non présentée sur le schéma 2.1) à la masse permet de les isoler du PMO. Il reste néanmoins un champ parasite relativement constant de l'ordre de 12.5 mV/cm (dont l'origine est difficile à déterminer). Pour l'étude d'états très excités qui ont de très grandes polarisabilités, cela peut s'avérer gênant. Ainsi, pour $n = 120$, ce champ induit une chute de l'excitation de l'ordre de 15% (dans le modèle définie au paragraphe 1.3.2.1, ce champ parasite correspond à un couplage $\tan^2\theta=1$ pour $n = 120$. Pour $n = 156$, ce champ correspond à $\tan^2\theta=9$!). Il est très important de caractériser et compenser correctement ce champ électrique parasite pour parvenir à fixer correctement la direction et la valeur du champ qu'on souhaite effectivement appliquer. Ceci est effectué par excitation d'états de nombre quantique principal extrêmement élevé (voir paragraphe 2.4.2).

Nous vérifions la bonne définition de la polarisation sur un spectre de temps de vol obtenu après excitation des atomes dans l'état $30p_{3/2}$. Les seuils d'ionisation des états $|m_j = 1/2|$ et $|m_j = 3/2|$ étant légèrement distincts, il est possible de les dissocier sur le spectre de temps de vol présenté Fig. 2.11. On vérifie qu'en champ nul, l'excitation de l'état $|m_j = 3/2|$ ne correspond qu'à $\sim 5\%$ du signal : l'axe défini par les polarisations linéaires et parallèles de la diode laser et du laser Ti:Sa est bien l'axe de quantification. L'excitation en champ électrique, avec un choix de polarisation colinéaire à l'axe de ce champ permet l'excitation sélective de l'état $|m_j = 1/2|$. La polarisation du laser Ti:Sa n'étant pas parfaite, il demeure en général un

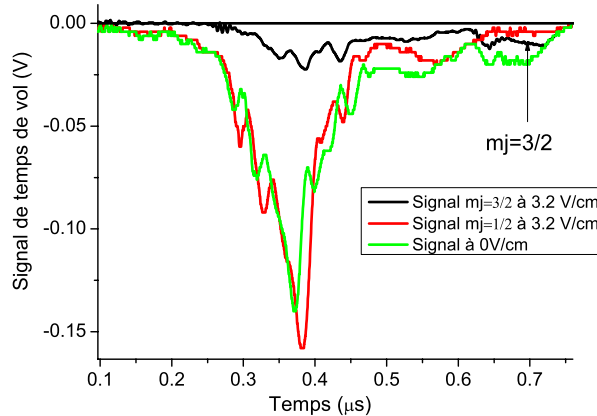


FIG. 2.11 – (a) Spectres de temps vol : le signal électronique correspondant au signal d'ions est affiché en fonction du temps d'arrivée sur les galettes micro-canaux. Les spectres sont obtenus après excitation des atomes de Rydberg dans l'état $30p_{3/2}$ dans 3 conditions différentes. Excitation de l'état $m_j = 1/2$ à 3.2 V/cm, excitation de l'état $m_j = 3/2$ à 3.2 V/cm (la fréquence de résonance du laser Ti:Sa est différente dans les deux cas), excitation en champ nul des deux composantes $m_j = 1/2$ et $m_j = 3/2$. La polarisation du laser Ti:Sa est linéaire, l'excitation de l'état $m_j = 3/2$ demeure donc résiduelle. Le seuil d'ionisation est plus élevé pour l'état $m_j = 3/2$, le temps d'arrivée du signal correspondant est différé, et il est possible de le distinguer de l'état $m_j = 1/2$. Il y a un peu plus d'excitation résiduelle de l'état $m_j = 3/2$ en champ nul (moins d'un facteur 2). Deux raisons peuvent être invoquées pour cela, la présence des gradients de champ magnétique, mais plus probablement la présence de champs électriques parasites dans une direction non souhaitée.

résidu d'excitation de l'état $|m_j = 3/2|$ inférieur à 5% (environ 3% sur le spectre présenté Fig. 2.23). Nous utilisons en effet une lame demi-onde centrée à 780 nm pour changer la direction de la polarisation de l'onde laser alors que la longueur d'onde du laser Ti:Sa peut varier de 794.879 nm (état $23p_{3/2}$) jusqu'à 776.946 nm (seuil d'ionisation).

2.2.5 Conclusion

Les aspects d'excitation et de contrôle de l'excitation vers des états de Rydberg sont les caractéristiques principales des montages expérimentaux qui ont été utilisés et doivent être bien maîtrisés. Ils sont étudiés théoriquement dans la section suivante. D'autres schémas d'excitation continue plus simples donc mieux contrôlables expérimentalement seront sans doute développés à l'avenir, avec une excitation à 2 couleurs par exemple. La détermination des nombres d'atomes excités par technique de temps vol est relativement valide mais pourrait être améliorée par l'utilisation de détecteurs mieux calibrés. Une imagerie par absorption pourrait être utile à l'avenir pour déterminer de manière absolue la taille des nuages d'atomes et donc plus précisément les densités atomiques.

2.3 Analyse théorique de différents schémas d'excitation laser et comparaison avec l'expérience

Les différents schémas d'excitation laser sont caractérisés dans cette section au moyen des équations de Bloch optique. Nous tentons d'obtenir numériquement des taux d'excitation en accord avec l'expérience et discutons les différentes approximations, le principal problème résultant du grand nombre de niveaux à inclure dans la description de l'excitation. Ces résultats

seront utiles au chapitre 4 pour quantifier l'effet du blocage dipolaire. Pour sonder les interactions entre atomes excités dans un niveau Rydberg, les différentes excitations doivent être courtes, ne serait-ce qu'en raison de la durée de vie finie des niveaux de Rydberg. Le premier paragraphe est simplement dédié à analyser l'effet d'une excitation pulsée ou de courte durée. Les deux autres paragraphes sont des analyses des excitations pulsée-continue et continue.

2.3.1 Rappel concernant l'excitation laser pulsée

Les excitations pulsées présentent l'intérêt d'être rapides et efficaces. Une excitation large bande permet une excitation de tous les atomes indépendamment des interactions entre les différents atomes. Dans des expériences comme celle de [Mourachko et al., 1998], les réactions de transfert ont lieu après l'excitation et peuvent donc être étudiées indépendamment de l'excitation. En ce sens, on peut parler d'excitation diabatique ou soudaine, puisque l'excitation ne "suit" pas temporellement les états propres du système.

Exemple de l'excitation pulsée à résonance de Förster

Afin de bien comprendre la particularité d'une excitation pulsée donc large spectralement, approfondissons l'exemple de l'excitation d'atomes depuis l'état $|6p_{3/2}\rangle$ vers des états de Rydberg $|r\rangle \equiv |np_{3/2}\rangle$, à résonance de Förster, comme dans l'expérience [Mourachko et al., 1998] (nous supposons pour simplifier dans cette section que l'impulsion laser est limitée par transformée de Fourier). Rappelons que cette excitation est autorisée en champ électrique grâce au couplage Stark des états $|np_{3/2}\rangle$ et $|(n-1)d_{5/2}\rangle$. Pour simplifier, nous supposons qu'un des atomes est déjà dans l'état Rydberg, de sorte que l'état propre de départ est $|1\rangle \equiv \frac{1}{\sqrt{2}}(|6p_{3/2}\rangle|r\rangle + |r\rangle|6p_{3/2}\rangle)$ (voir Fig. 2.12). L'interaction dipôle-dipôle induit un couplage entre les états $\Psi_P \equiv |np_{3/2}, np_{3/2}\rangle$ et $\Psi_{SS} \equiv \frac{1}{\sqrt{2}}(|ns, (n+1)s\rangle + |(n+1)s, ns\rangle)$ conduisant aux 2 nouveaux états propres $|2\rangle \equiv |-\rangle$ et $|3\rangle \equiv |+\rangle$. L'état du système $\Psi(t)$ en présence du champ laser s'écrit :

$$|\Psi(t)\rangle = b_1(t)|1\rangle + b_2(t)|2\rangle + b_3(t)|3\rangle \quad (2.1)$$

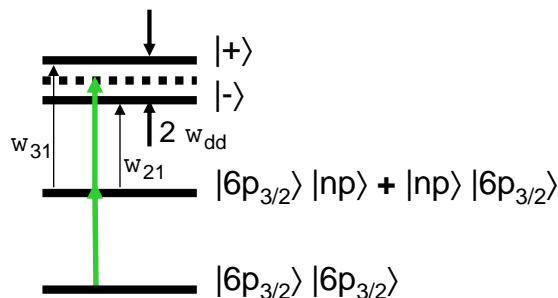


FIG. 2.12 – Schéma d'excitation pulsée d'une paire d'atomes interagissant via l'interaction dipôle-dipôle à résonance de Förster. L'excitation s'effectue depuis l'état $6p_{3/2}$ vers un état $np_{3/2}$ en champ électrique, avec un laser pulsé fonctionnant à environ 510 nm.

Dans une approche perturbative, en supposant une excitation relativement faible, les coefficients $b_2(t)$ et $b_3(t)$ sont donnés par :

$$b_i(t) = -i \frac{\Omega}{2} \frac{e^{i(\omega_{i1}-\omega)t} - 1}{\omega_{i1} - \omega} \quad (2.2)$$

où ω_{i1} avec $i=2$ ou 3 , sont les fréquences de Bohr du système, ω la fréquence optique laser et Ω la fréquence de Rabi de l'excitation laser $|6p_{3/2}\rangle \rightarrow |r\rangle$. Il est supposé $\omega_{31} - \omega_{21} = 2\omega_{dd}$. Nous négligeons la largeur naturelle des états dans ce modèle.

Soit, finalement, en supposant l'excitation laser parfaitement résonante avec la transition $|6p_{3/2}\rangle \rightarrow |r\rangle$ de fréquence ω_0 (nous avons alors $(\omega_{31} - \omega_0) = -(\omega_{21} - \omega_0) = \omega_{dd}$ dans ce cas), les populations transférées dans les états Ψ_P et Ψ_{SS} après une impulsion de durée T sont de la forme :

$$|\langle \Psi_P | \Psi(T) \rangle|^2 = \left| \frac{1}{\sqrt{2}} (b_3(T) + b_2(T)) \right|^2 \approx |\Omega T|^2 \quad (2.3)$$

$$|\langle \Psi_{SS} | \Psi(T) \rangle|^2 = \left| \frac{1}{\sqrt{2}} (b_3(T) - b_2(T)) \right|^2 \approx \frac{1}{2} |(\Omega T) \times (\omega_{dd} T)|^2 \quad (2.4)$$

où il est supposé $1/T \gg \omega_{dd}$.

Le transfert d'excitation vers les états ns et $(n+1)s$ peut être négligé dans ce cas. La condition $1/T \gg \omega_{dd}$ est simplement une condition d'excitation large bande. L'état d'excitation au départ est l'état $|\Psi_P\rangle$, superposition cohérente des états $|+\rangle$ et $|-\rangle$.

Cet exemple se généralise à une excitation d'un ensemble d'atomes interagissant via l'interaction dipôle-dipôle. L'interaction dipôle-dipôle étant une interaction à relativement longue portée, il en résulte de nombreux couplages dans un nuage atomique. Lorsque la distribution des atomes est stochastique, la distribution des niveaux d'énergie s'apparente alors à une bande de niveaux assez complexe (cf. paragraphe 1.3.4.2). L'excitation pulsée se prête bien à un transfert de population indépendant de ces interactions et de la distribution des niveaux d'énergie.

Possibilités d'utilisation d'une excitation pulsée

Après excitation pulsée, des transitions micro-ondes vers d'autres états dans lesquels les atomes n'interagissent pas peuvent être utilisées pour sonder cette distribution des niveaux dans l'état Rydberg de départ [Afrousheh et al., 2004, Li et al., 2005]. L'excitation est alors monochromatique et longue et ne couple donc qu'un petit nombre de niveaux. La mise en évidence des bandes de niveaux à un lien évident avec le blocage dipolaire. Il nous a semblé intéressant de les analyser avec une spectroscopie laser¹⁰. Cette analyse est introduite au paragraphe 2.3.2 et présentée plus en détail au chapitre 5.

La mise en évidence du blocage dipolaire de l'excitation (excitation du premier atome mais pas du deuxième dans le schéma 2.12 par exemple) nécessite en elle-même une excitation haute-résolution, monomode et continue. L'utilisation de la microonde est possible et consiste à d'abord exciter par laser les atomes dans un état dans lequel ils interagissent peu (ce qui, nous le verrons, n'est pas évident), puis à réaliser une transition microonde vers un état dans lequel ils interagissent fortement. L'utilisation d'un laser pulsé est possible mais certains

¹⁰Un système microonde a également été développé. Il permet de réaliser des transitions de 12 et 100 GHz entre états de Rydberg voisins, ces transitions étant en général très efficaces en raison des forts moments dipolaires de transition entre niveaux de Rydberg voisins. La limitation basse à 12 GHz est due à la présence des grilles permettant d'appliquer un champ électrique statique séparées d'une distance $d=1,575$ cm.

inconvénients de l'excitation devrait être très bien contrôlés. Un inconvénient d'une première excitation pulsée est que des paires d'atomes très proches peuvent être excitées. Les atomes de telles paires interagissent beaucoup et peuvent acquérir une grande mobilité sous l'effet de forces, par exemple dipolaires (voir la section 1.3.2.3 pour une introduction aux forces dipolaires) et par exemple collisionner. D'autres inconvénients, déjà discutés au paragraphe 2.2.2.1, sont les fluctuations de fréquence pour un laser très large bande mais aussi la présence de photoions susceptibles d'élargir les raies par effet Stark (l'élargissement spectral des raies en raison d'une distribution inhomogène d'ions est abordé au paragraphe suivant).

L'utilisation de lasers continus pour étudier le blocage dipolaire est plus simple car plus directe. Nous analysons plus loin les deux schémas d'excitation laser développés à cet effet, la méthode d'excitation pulsée-continue ayant été développée la première, avant l'acquisition de la diode laser fonctionnant à 1.47 μm .

2.3.2 Caractérisation de l'excitation pulsée-continue

Nous revenons dans ce paragraphe sur le schéma d'excitation pulsée-continue (cf Fig. 2.2), combinant une première excitation pulsée vers l'état $7p_{3/2}$, permettant de peupler l'état $7s$ par désexcitation spontanée, puis une impulsion vers des états Rydberg $np_{3/2}$ avec le laser continu Ti:Sa.

Plusieurs points sont à remarquer dans ce schéma d'excitation. Les durées de vie des états $7s$ et $7p$ sont courtes, respectivement 56 ns et 116 ns, conduisant à une chute rapide de la population de l'état $7s$ en l'absence du laser Ti:Sa, en moins de 300 ns. D'autre part, le rapport de branchement du niveau $7p_{3/2}$ vers le niveau $7s_{1/2}, F = 4$ est limitée à 30 % car il est en effet nécessaire de prendre en compte la désexcitation spontanée vers tous les états possibles : $6s_{1/2}, 7s_{1/2}(F = 3), 5d_{3/2}$ et $5d_{5/2}$.

En l'absence du laser Ti:Sa, la population ρ_{7s} transférée dans l'état $7s_{1/2}, F = 4$ depuis l'état $7p_{3/2}$ s'exprime par :

$$\rho_{7s}(t) = \frac{\gamma_1}{\gamma_{7s} - \gamma_{7p}} \rho_{7p}(0) (e^{-\gamma_{7p}t} - e^{-\gamma_{7s}t}) \quad (2.5)$$

où $\rho_{7p}(0)$ est la population initialement excitée dans l'état $7p_{3/2}$ par le laser pulsé.

γ_{7p} et γ_{7s} sont les taux de désexcitation spontanée des états $7p_{3/2}$ et $7s_{1/2}, F = 4$.

γ_1 est le taux de transfert depuis l'état $7p_{3/2}$ vers l'état $7s_{1/2}, F = 4$.

En supposant que 50% des atomes du PMO sont portés dans l'état $7p$ par l'excitation pulsée (excitation saturée), 15% des atomes du PMO peuvent finalement être transférés dans l'état $7s_{1/2}, F = 4$.

Le laser Ti:Sa couple l'état $7s_{1/2}, F = 4$ vers les états Rydberg np . Comme on va le voir, la puissance du laser Ti:Sa est suffisante pour permettre une excitation efficace vers les états de Rydberg, malgré les temps de vie courts des états $7s$ et $7p_{3/2}$.

2.3.2.1 Analyse et simplification du système

Considérons le système des équations de Bloch décrivant l'évolution temporelle de la matrice densité pour un atome à 2 niveaux $1 \equiv |7s\rangle$ et $2 \equiv |r\rangle$, dans l'approximation du champ tournant :

$$\dot{\rho}_{11} = \gamma_1 \rho_{7p}(t) - \gamma_{7s} \rho_{11} + i \frac{\Omega_{TiSa}}{2} (\rho_{12} - \rho_{12}^*) \quad (2.6)$$

$$\dot{\rho}_{22} = -i \frac{\Omega_{TiSa}}{2} (\rho_{12} - \rho_{12}^*) - \gamma_{ryd} \rho_{22} \quad (2.7)$$

$$\dot{\rho}_{12} = -\frac{\gamma_{7s}}{2} \rho_{12} - i \delta \rho_{12} + i \frac{\Omega_{TiSa}}{2} (\rho_{11} - \rho_{22}) \quad (2.8)$$

$$\rho_{7p}(t) = \rho_{7p}(0) e^{-\gamma_{7p} t} \quad (2.9)$$

où Ω_{TiSa} est la fréquence de Rabi de la transition effectuée par le laser $Ti:Sa$, $\delta = \omega - \omega_{21}$ est le décalage de la fréquence du laser par rapport à la fréquence de Bohr de la transition. Le taux de relaxation de l'état rydberg γ_{ryd} peut être largement négligé par rapport à celui de l'état $7s$.

La détermination exacte de la fréquence de Rabi Ω_{TiSa} peut poser quelques problèmes dans la mesure où il est normalement nécessaire de prendre en compte tous les états Rydberg $|np_{3/2}, F', m'_F\rangle$. Nous reprenons ici certains résultats établis dans [Steck, 2004].

Abordons le problème en champ électrique nul, avec une polarisation linéaire du laser $Ti:Sa$. Dans ce cas¹¹, la fréquence de Rabi associée à la transition $F, m_F \rightarrow F', m'_F$ est :

$$\Omega_{Fm_F;F'm'_F} = -\frac{E}{\hbar} \langle Fm_F | e r_q | F'm'_F \rangle \quad (2.10)$$

avec e la valeur absolue de la charge d'un électron, $q = 0$, soit $r_q = Z$ et E l'amplitude du champ électrique.

Il est intéressant de remarquer que dans la limite d'un faible couplage, la probabilité d'absorption B d'un photon d'un état $|7s_{1/2}, F = 4, m_F\rangle$ vers l'état $|np_{3/2}\rangle$ est la somme des probabilités d'excitation vers chacun des états $|np_{3/2}, F', m'_F = m_F\rangle$:

$$B(|7s_{1/2}, F = 4, m_F\rangle) \propto \sum_{F', m'_F = m_F} |\Omega_{Fm_F;F'm'_F}|^2 \propto \sum_{F'} |\langle Fm_F | e r_0 | F'm_F \rangle|^2 \quad (2.11)$$

Cette somme suppose un régime de champ faible qui ne sera pas toujours vérifié. Elle suppose d'autre part que l'écart d'énergie entre les différents niveaux $|F', m'_F\rangle$ est très faible en comparaison de la résolution de l'excitation. Cette hypothèse est valide car, comme nous allons le voir, la résolution est principalement limitée par la durée de vie du niveau $7s$ impliquant un élargissement de l'ordre de 2.8 MHz ainsi que par la durée de l'excitation (3 MHz pour 300 ns d'excitation) et l'écart de structure hyperfine est inférieur au MHz pour des états np tels que $n > 23$. D'autre part, la présence du gradient de champ magnétique (en général coupé) ne peut induire qu'une très faible levée de dégénérescence des sous-niveaux Zeeman : un gradient de champ de l'ordre de 15 G/cm produit une inhomogénéité de champ d'environ 0.15 G pour une région d'excitation de l'ordre de 100 μm au centre du PMO. L'écart d'énergie attendu ici serait d'au plus 300 kHz (cf paragraphe 2.2.4).

Chacun des éléments de matrice dipolaire $|\langle Fm_F | e r_0 | F'm_F \rangle|$ peut être exprimé en fonction des éléments de matrice dipolaire réduits $|\langle J || r || J' \rangle|$, des coefficients de Clebsch-Gordan

¹¹De manière générale, l'hamiltonien d'interaction avec le champ laser dans l'approximation dipolaire électrique $W = -\vec{\mu} \cdot \vec{E}$ peut s'exprimer en fonction des composantes standards pour le moment dipolaire $\vec{\mu}$: ($\mu_0 = \mu_z$; $\mu_{\pm} = \mp(\mu_x \pm i\mu_y) \frac{1}{\sqrt{2}}$), et de même pour le vecteur champ électrique. Soit : $-\vec{\mu} \cdot \vec{E} = \sum_{q=0,\pm 1} (-1)^q \mu_q E_q$. Cette description est bien adaptée au problème des polarisations circulaires. Pour une polarisation linéaire dirigée suivant z , l'expression devient simplement $-\vec{\mu} \cdot \vec{E} = -eZE$.

$\langle Fm_F|F'1m_F0\rangle$ et des symboles de Wigner 6j :

$$\langle Fm_F|e r_0|F'm_F\rangle = \langle J||r||J'\rangle(-1)^{F'+J+I+1}\sqrt{(2F'+1)(2J+1)}\left\{\begin{matrix} J & J' & 1 \\ F' & F & I \end{matrix}\right\}\langle Fm_F|F'1m_F0\rangle \quad (2.12)$$

Du fait de la propriété $\sum_{F'}(2F'+1)(2J+1)\left\{\begin{matrix} J & J' & 1 \\ 1 & 2 & 2 \end{matrix}\right\}^2|\langle Fm_F|F'1m_F0\rangle|^2 = \frac{1}{3}$, le coefficient d'absorption B peut s'exprimer en fonction d'un moment dipolaire effectif :

$$|d_{eff}| = \frac{1}{3}|\langle J||r||J'\rangle| = \frac{1}{3}|\langle 7s, J||r||np_{3/2}, J'\rangle| \quad (2.13)$$

Ainsi, le coefficient d'absorption de la transition $|7s_{1/2}, F=4, m_F\rangle$ vers $|np_{3/2}\rangle$ est le même quel que soit l'état $|7s_{1/2}, F=4, m_F\rangle$.

Nous nous ramènerons ainsi à un système à 2 niveaux¹², $|j=1/2, m_j=1/2\rangle$ et $|j'=1/2$ ou $3/2, m_{j'}=1/2\rangle$ et on prendra en première approximation¹³ :

$$|\Omega_{TiSa}| = \left|\frac{E}{\hbar}d_{eff}\right| \quad (2.15)$$

Les résultats du modèle à 2 niveaux (système d'équations (2.9)) sont présentés figures 2.13, 2.14 et 2.15 dans le cas d'un laser focalisé avec un waist $\omega_{TiSa} = 300 \mu\text{m}$ sur le PMO de rayon caractéristique $300 \mu\text{m}$. La figure 2.14 représente temporellement la probabilité d'excitation résonante dans l'état Rydberg $23p_{3/2}$ pour deux puissances du laser Ti:Sa, $P=40$ mW et 10 mW. Nous faisons le calcul seulement pour une intensité "moyennée"¹⁴ $I_{moy} = \frac{P}{\pi\omega_{TiSa}^2}$ (soit 14

¹²Si nous nous contentions de considérer une transition du type $|7s_{1/2}, m_j\rangle$ vers un état de Rydberg $|np_{3/2}, m_j\rangle$, le moment dipolaire de la transition serait donné par :

$$d = \langle jm_j|j'1m_j0\rangle\langle J||r||J'\rangle \quad (2.14)$$

Il se trouve que dans les cas qui nous intéressent, avec $j=1/2, m_j=\pm 1/2$ et dans l'état excité $j'=1/2, m_j=\pm 1/2$ ou $j'=3/2, m_{j'}=\pm 1/2$, on obtient $\langle jm_j|j'1m_j0\rangle = \pm\sqrt{\frac{1}{3}}$ et respectivement $\langle jm_j|j'1m_j0\rangle = \mp\sqrt{\frac{1}{3}}$: ceci correspond exactement à l'expression (2.13) que nous avons établie en prenant en compte la structure hyperfine.

¹³Cette expression n'est pas valable en régime de fort couplage : dans ce cas l'approche perturbative (2.11) ne donne pas un couplage avec le champ identique quelque soit l'état excité. Plus exactement, le taux d'émission stimulée est $B'(|F', m'_F\rangle) \propto |\langle F'm_{F'}|e r_0|Fm_F = m_{F'}\rangle|^2$ et il faut tenir compte des sous-niveaux Zeeman du niveau 7s (et des possibilités de redistribution de population dans les sous-niveaux).

¹⁴L'intensité moyenne est une moyenne sur l'intensité reçue par tous les atomes ayant été excités dans l'état Rydberg. Rigoureusement, elle doit être évaluée par l'intégrale :

$$I_{moy} = \frac{\int I(\vec{r})n_{ryd}(\vec{r})d\vec{r}^3}{\int n_{ryd}(\vec{r})d\vec{r}^3} \quad (2.16)$$

où $n_{ryd}(\vec{r})$ est la densité atomique en \vec{r} . Nous prenons en première approximation $n_{ryd}(\vec{r}) \propto n_{7p}(\vec{r})I(\vec{r})$, où $n_{7p}(\vec{r})$ est la densité d'atomes excités dans l'état $7p$ et $I(\vec{r})$ est l'intensité du laser, se propageant dans une direction définie (d'où le choix des coordonnées cylindriques). Si nous supposons le laser d'excitation vers l'état $7p$ excitant de façon homogène les atomes du PMO pour simplifier (grande extension spatiale devant la taille du PMO), la taille caractéristique du nuage d'atomes dans l'état $7p$ est donnée par σ_{MOT} . L'intensité moyenne est alors donnée par :

$$I_{moy} = \frac{P}{4\pi\sigma_{TiSa}^2} \frac{(\sigma_{TiSa}^2 + \sigma_{MOT}^2)}{(\frac{\sigma_{TiSa}^2}{2} + \sigma_{MOT}^2)} \quad (2.17)$$

avec P la puissance totale du faisceau laser et $\sigma_{TiSa} = \frac{\omega_{TiSa}}{2}$ sa taille caractéristique. Si σ_{MOT} est très petit, les atomes voient principalement l'intensité maximale du faisceau gaussien $\frac{2P}{\pi\omega_{TiSa}^2}$. Si au contraire σ_{MOT} est très grand (par rapport à σ_{TiSa}), la densité des atomes dans l'état $7p$ à l'endroit de l'excitation est quasi

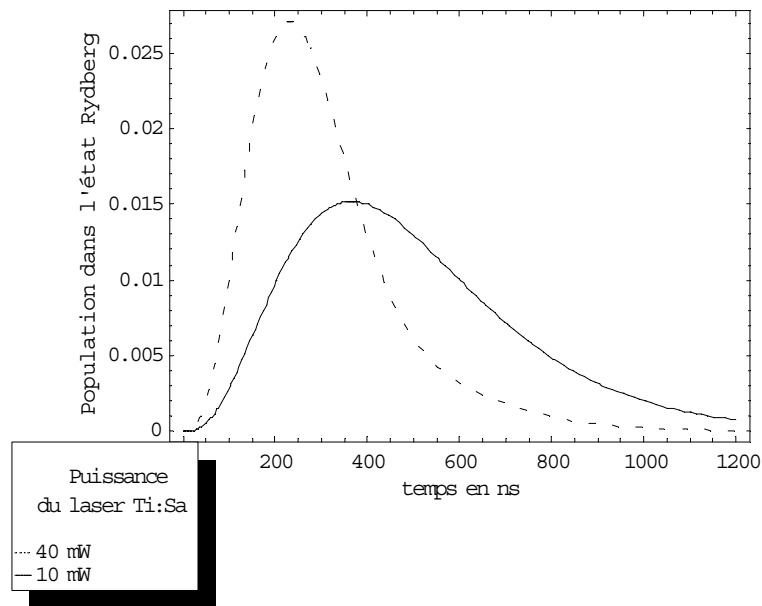


FIG. 2.13 – Probabilité d'excitation dans l'état $23p_{3/2}$ en fonction du temps pour deux puissances différentes du laser Ti:Sa.

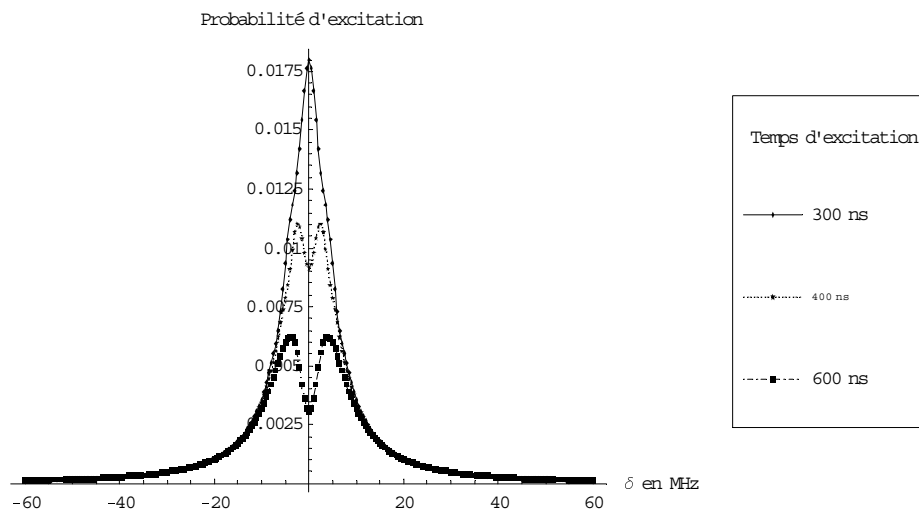


FIG. 2.14 – Probabilité d'excitation dans l'état $23p_{3/2}$ en fonction de la fréquence du laser Ti:Sa à 3 temps d'excitation différents. La puissance du laser est fixée ici à 10 mW.

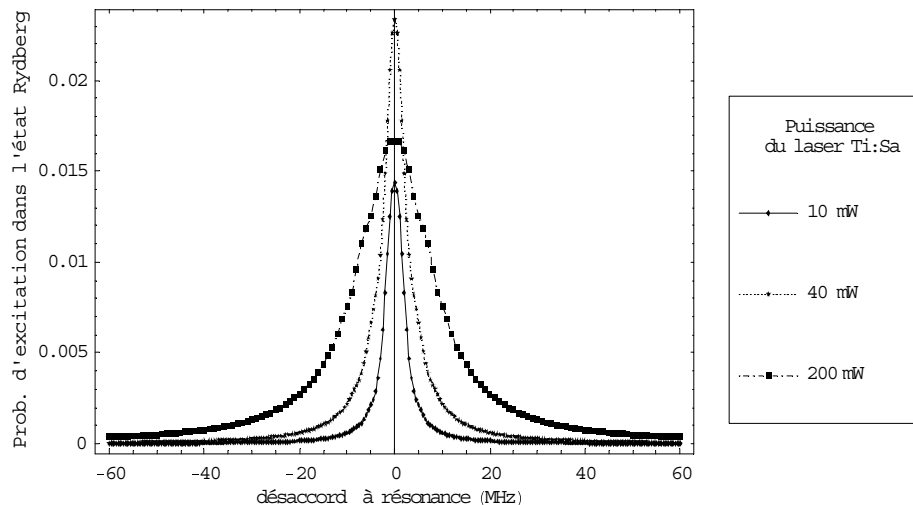


FIG. 2.15 – Probabilité d’excitation dans l’état $23p_{3/2}$ après 300 ns d’excitation, pour 3 puissances du laser Ti:Sa différentes.

W/cm^2 pour une puissance de 40 mW). La proportion d’atomes excités atteint rapidement un maximum après 200 – 400 ns, puis décroît pour deux raisons. D’une part, la faible durée de vie de l’état $7p$ (116 ns) ne permet un peuplement de l’état $7s$ que pendant un temps court. D’autre part, après un cycle Rabi d’excitation avec le laser Ti:Sa, la population retourne dans l’état $7s$ et elle est perdue par émission spontanée (principalement) en raison de la faible durée de vie de cet état (56 ns). Expérimentalement, nous retrouvons un maximum de population transférée après un temps d’environ 300 ns pour 100 mW d’excitation, soit une puissance un peu plus élevée. Cette légère différence peut trouver son origine dans la simplification du système mais aussi par le fait que nous utilisons les moments dipolaires calculés dans l’approximation de Coulomb, dont nous avons vu qu’elle n’est forcément qu’approchée pour des transitions dont un des états est fortement lié.

Spectralement, le couplage avec le laser est beaucoup plus fort à résonance, entraînant, avec une excitation au-delà de 300 ns, une diminution de population plus rapide à résonance que hors résonance (voir figure 2.14). Nous voyons ainsi apparaître un trou de dépompage au centre de la raie. Pour 300 ns d’excitation (voir Fig. 2.15), à faible puissance, le spectre est lorentzien, de largeur spectrale ~ 4.5 MHz¹⁵. Lorsque nous augmentons la puissance, nous voyons apparaître un élargissement en puissance des raies parallèlement au phénomène de dépompage. Par exemple, pour une puissance de 200 mW, la fréquence de Rabi est déjà de l’ordre de 6 MHz (à comparer à la largeur naturelle de l’état $7s$) et explique que nous obtenions expérimentalement 10 MHz de largeur spectrale.

constante, l’intensité moyenne est donnée par $\frac{P}{\pi\omega_{TiSa}^2}$. Toutes nos expériences se rangent plus ou moins dans ce dernier cas. Dans l’étude présente, $I_{moy} = \frac{10}{9} \frac{P}{\pi\omega_{TiSa}^2} \simeq \frac{P}{\pi\omega_{TiSa}^2}$.

¹⁵Nous sommes a priori inférieurs à la somme de la largeur naturelle de l’état $7s$ ($\gamma_{7s}/2\pi = 2.8$ Mhz) et de la limitation par transformée de Fourier ~ 3 MHz. Nous avons vérifié que ceci est une conséquence de la durée finie de l’état $7p$.

2.3.2.2 Etude expérimentale des formes de raie

Les largeurs spectrales que nous obtenons expérimentalement sont en général supérieures à 6 MHz (voir Fig. 2.16). Différentes raisons peuvent expliquer ce résultat. La mesure de longueur d'onde était effectuée avec un lambdamètre Angröm WS-8 (société ASUS High Fimlase) d'une précision relative 1-2 MHz¹⁶. De plus, nous avons travaillé assez souvent à intensités élevées. Enfin, la présence d'ions parasites perturbe beaucoup la prise de spectres dans ce schéma d'excitation.

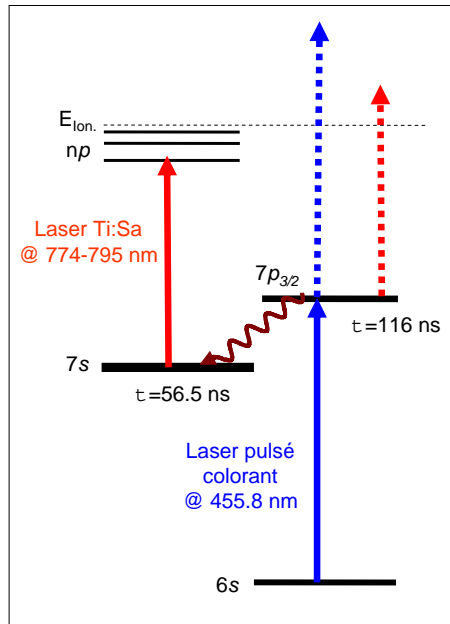


FIG. 2.16 – Schéma d'excitation pulsée-continue faisant apparaître deux voies possibles de photoionisation : ionisation à 2 photons depuis l'état 6s avec le laser colorant pulsé et ionisation directe à un photon avec le laser Ti:Sa.

Ces ions ont deux provenances (cf. Fig. 2.16) : ils peuvent provenir d'une excitation à 2 photons depuis l'état 6s avec le laser pulsé, ou même provenir d'une ionisation par le laser Ti:Sa des atomes excités dans l'état 7p. L'efficacité d'ionisation avec le laser pulsé est plus grande en raison des grandes puissances mises en jeu, on obtient jusqu'à 600 ions/ μJ . Ces ions créent un champ électrique inhomogène déplaçant les niveaux d'énergie de chacun des atomes par effet Stark. L'excitation d'un grand nombre d'atomes conduit à un élargissement inhomogène des raies spectrales, pouvant atteindre plusieurs centaines de MHz et décale la position des raies en champ électrique externe nul (cf. Fig. 2.17 pour l'état $37p_{3/2}$). On comprend le décalage en champ électrique à partir de la courbe (expérimentale) des déplacements Stark, présentée Fig. 2.18 pour le niveau $33p_{3/2}$, très similaire à celle qu'on pourrait obtenir pour le niveau $37p_{3/2}$, à un facteur d'échelle près. En champ électrique nul, l'effet Stark est quadratique, le déplacement d'énergie ΔE dû au champ parasite inhomogène ΔF ne s'effectue que dans un sens, vers le "rouge" de la transition $7s \rightarrow 37p_{3/2}$: $\Delta E = -\frac{\alpha}{2}(\Delta F)^2$. Le centre de la raie est donc décalé. En présence d'un champ électrique faible F_0 le déplacement Stark dû à un champ inhomogène ΔF est $\Delta E \propto F_0 \Delta F$. Lorsque le champ électrique externe F_0 supposé positif est relativement élevé, l'effet Stark devient linéaire et le déplacement Stark dû au

¹⁶C'est une vérification expérimentale, ce lambdamètre a une précision absolue de l'ordre de 30 MHz

champ parasite ($\Delta E \propto F_0$) est beaucoup plus élevé qu'en champ externe nul (cf. Fig. 2.18). Pour une distribution d'ions à symétrie sphérique, le champ électrique parasite est également à symétrie sphérique¹⁷. Les atomes voient un champ dont l'amplitude varie dans l'intervalle $[F_0 - |\Delta F|, F_0 + |\Delta F|]$, avec $|\Delta F|$, l'amplitude maximale du champ créé par la distribution d'ions. L'élargissement des raies est donc proportionnel à l'amplitude "moyenne" du champ parasite $|\Delta F_m|$: $\Delta E \propto 2|\Delta F_m|$ en champ relativement élevé. Une étude plus exhaustive sera proposée au paragraphe 3. Notamment, l'explication avancée ci-dessus devrait tenir compte de la dynamique des charges pendant l'excitation.

Il est possible d'atténuer le laser pulsé ($6s \rightarrow 7p$) tout en maintenant une excitation relativement efficace dans l'état $7p$ et obtenir le résultat de la figure 2.19 avec des largeurs spectrales proches de celles attendues sans la présence des ions. L'ionisation par le laser Ti:Sa n'est vraiment gênante que pour des états de n élevés très sensibles aux champs électriques. Nous présentons une étude systématique de l'influence des ions au chapitre 3. Il apparaîtra que seulement quelques ions peuvent perturber suffisamment les spectres pour empêcher la caractérisation d'éventuels effets d'interactions du type dipôle-dipôle. On voit d'ores et déjà que ces ions ont un effet similaire au blocage dipolaire de l'excitation puisqu'ils peuvent être responsables d'une suppression drastique de l'excitation : aux centres des raies sur la figure 2.17, la probabilité d'excitation diminue d'un facteur 10 lorsque la puissance du laser pulsé passe de $5.1 \mu\text{J}$ à $17 \mu\text{J}$. Une différence importante entre l'effet joué par la présence d'ions (formés de manière non résonante avec l'excitation d'atomes de Rydberg) et l'effet du blocage dipolaire qu'on étudiera au chapitre 4 est que les ions entraînent un fort élargissement des raies.

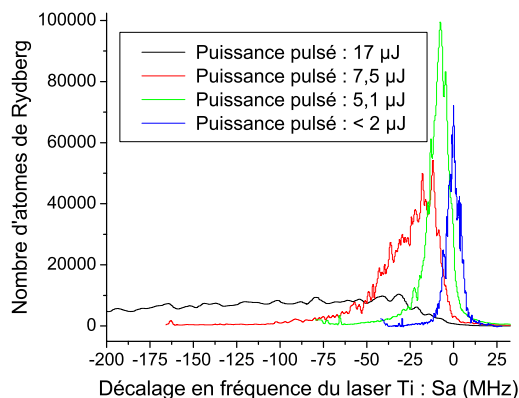


FIG. 2.17 – Spectres de l'état $37p_{3/2}$ en champ nul pour plusieurs puissances du laser pulsé et une puissance du laser Ti:Sa fixée à 120 mW. Les raies sont élargies du côté rouge en raison de la présence de photoions.

Une manière plus élégante de réaliser une spectroscopie avec très peu d'ions est d'utiliser le trou de dépompage apparaissant après un temps plus long d'expérience (cf Fig. 2.14). On voit par exemple sur la figure 2.20, où nous excitons l'état $23p_{3/2}$ pendant 300 ns (soit aux temps courts) en présence d'un champ électrique externe élevé (126 V/cm), une raie très large, ~ 100 MHz, caractéristique d'une présence importante d'ions aux temps courts. Sous l'effet du champ électrique externe, les ions sont accélérés en dehors du PMO après 400-500 ns et ne créent plus de champ électrique parasite aux temps longs. Après ce délai, il n'y plus non plus d'atomes dans l'état $7p$ et donc plus d'ionisation par le laser Ti:Sa. On comprend dès lors que

¹⁷Ceci est valable si le champ électrique est évalué dans une approche de champ moyen

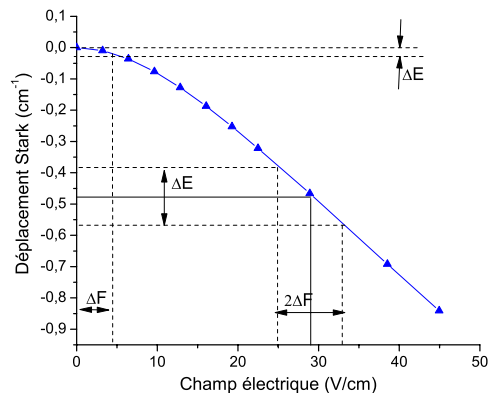


FIG. 2.18 – Déplacement Stark expérimental du niveau $33p_{3/2}$. Ce déplacement est quadratique à champ faible et devient linéaire très rapidement. Une distribution d'ions crée une charge d'espace et donc un champ inhomogène d'amplitude $|\Delta F|$. L'élargissement des raies correspondant est $\sim |\Delta E|$.

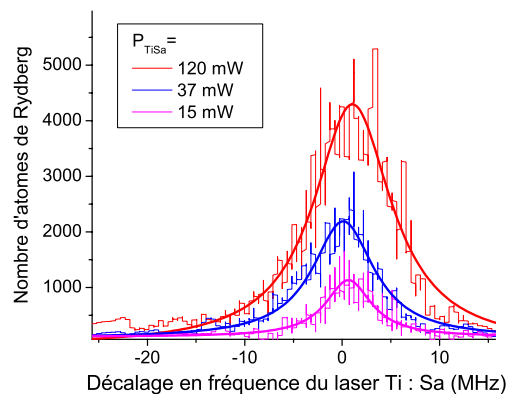


FIG. 2.19 – Spectres de l'état $37p_{3/2}$ en champ électrique nul, pour une très faible puissance du laser pulsé ($0.25 \mu\text{J}$) et différentes puissances du laser Ti:Sa : 15, 37 et 120 mW. Les largeurs des raies sont fines, respectivement 5.5 MHz, 7 et 10 MHz, probablement un peu élargies par puissance (elles sont ajustées par des lorentziennes). Le nombre d'ions est trop faible pour être significatif en champ nul.

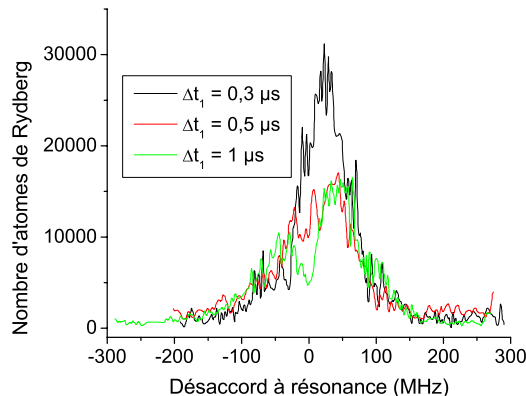


FIG. 2.20 – Spectres d'excitation de l'état $23p_{3/2}$ pour un champ électrique égal à 130 V/cm, une puissance du laser Ti:Sa égale à ~ 200 mW et différents temps d'excitation Δt_1 . Après un temps Δt_1 de l'ordre de 1 μ s, le trou de dépompage apparaît, beaucoup plus fin que la raie d'excitation car les ions ont été accélérés en dehors de la zone d'excitation.

hors résonance, si l'excitation d'atomes est permise par la présence d'un champ parasite créé par les ions, le couplage avec le laser n'est que temporaire du fait de la dynamique des ions. Rapidement, le laser est hors résonance pour la transition atomique et le dépompage est alors très peu efficace. Ce dépompage est en revanche observé de manière efficace à la résonance ; c'est pourquoi il apparaît un trou de dépompage comme observé sur la figure 2.20, de largeur beaucoup plus fine que la largeur de la raie d'excitation. L'étude des largeurs et positions des trous de dépompage constitue ce que nous avons appelé une "spectroscopie par creusement spectral". Nous en présentons une étude systématique et son utilisation à résonance de Förster au chapitre 5, dans une configuration d'utilisation cependant différente à celle-ci.

Cette excitation mêlant laser pulsé et laser continu a montré ses limites à cause des nombreux problèmes de formations d'ions. Elle nous a permis cependant de cerner le rôle et l'importance de ces problèmes pour une caractérisation claire du blocage dipolaire.

2.3.3 Excitation laser continue

Nous présentons maintenant la méthode d'excitation continue (cf Fig. 2.3) ayant permis de dépasser ces problèmes d'ions mais aussi, comme nous avons pu le soulever au paragraphe 2.2.2, les problèmes de fluctuations de fréquence du laser pulsé. La méthode d'excitation continue utilise un schéma d'excitation à 3 couleurs : une première transition $6s_{1/2}, F = 4 \rightarrow 6p_{3/2}, F = 5$ est effectuée avec les lasers du PMO, la deuxième transition $6p_{3/2}, F = 5 \rightarrow 7s_{1/2}, F = 4$ utilise une diode fonctionnant à 1470 nm (diode 1470) et la dernière transition $7s_{1/2}, F = 4 \rightarrow np_{3/2}$ est réalisée par le laser Ti:Sa. Cette méthode d'excitation de haute résolution a été utilisée pour la démonstration du blocage dipolaire de l'excitation. Une analyse approfondie du système à 4 niveaux est proposée dans cette section. Les problèmes de saturation laser de l'excitation et d'effet Autler-Townes sont étudiés attentivement.

2.3.3.1 Modèle décrivant l'excitation à trois couleurs

L'évolution temporelle de la matrice densité du système ρ est donnée par l'équation pilote (voir par exemple [G. S. Agarwal, 1974], chap. 15). De manière générale, elle peut être mise

sous la forme :

$$\frac{d\rho}{dt} = -\frac{i}{\hbar}[H, \rho] - \frac{1}{2}(\rho\Gamma + \Gamma\rho) + M_{PES} \quad (2.18)$$

Le commutateur $[H, \rho]$ décrit l'évolution du système et notamment le couplage avec les différents champs électriques en l'absence d'émission spontanée. En présence d'émission spontanée, il est nécessaire de tenir compte de la durée de vie de chacun des niveaux. Le taux de relaxation radiatif d'un état j vers un état i est donné par la formule établie au paragraphe 1.2.4 :

$$\gamma_{ij} = \frac{4e^2 |d_{ij}|^2 \omega_{ji}^3}{3\hbar c^3} \quad (2.19)$$

où ω_{ji} est la fréquence reliant les 2 états i et j , et d_{ij} est l'élément de matrice dipolaire de transition entre ces 2 états.

Il en résulte deux termes dans l'équation (2.18). Le premier terme $-\frac{1}{2}(\rho\Gamma + \Gamma\rho)$ caractérise proprement dit la relaxation des cohérences et des populations : chaque élément diagonal de la matrice Γ ($\Gamma_{ii} = \sum_{k, E_k < E_i} \gamma_{ki}$) donne la durée de vie du niveau i . M_{PES} est une matrice diagonale décrivant le peuplement par émission spontanée d'un niveau i par un niveau k ($E_k > E_i$), soit $M_{PES,ij} = \delta_{ij} \sum_{k, E_k > E_i} \gamma_{ik} \rho_{kk}$.

Pratiquement, nous passons en représentation d'interaction et appliquons l'approximation du champ tournant. Pour un système en échelons et pour deux états i et j "reliés" optiquement (comme sur la Fig. 2.3), nous avons : $\rho_{ij} = \tilde{\rho}_{ij} e^{i \sum_{k=i, (j-1)} \omega_{L,k} t}$, où $\omega_{L,k}$ est la fréquence optique du laser réalisant la transition $k \leftrightarrow (k+1)$ entre le niveau k et le niveau $(k+1)$. $\Delta_{ij} = (\sum_{k=i, (j-1)} \omega_{L,k}) - (\omega_j - \omega_i)$ est le désaccord entre la somme des fréquences laser par rapport à la transition $i \leftrightarrow j$.

Les éléments de matrice ρ_{ij} de la matrice densité ρ vérifient alors l'équation suivante :

$$si(j > i) \quad \frac{d\tilde{\rho}_{ij}}{dt} = -i\Delta_{ij}\tilde{\rho}_{ij} + i\frac{\Omega_{ij}}{2}(\rho_{ii} - \rho_{jj}) - \frac{1}{2}(\Gamma_{ii} + \Gamma_{jj})\tilde{\rho}_{ij} + K_{ij} \quad (2.20)$$

$$si(j = i) \quad \frac{d\tilde{\rho}_{ii}}{dt} = i \sum_k \left(\frac{\Omega_{ik}}{2}(\tilde{\rho}_{ik} - \tilde{\rho}_{ki}) \right) - \Gamma_{ii}\tilde{\rho}_{ii} + M_{PES,ii} \quad (2.21)$$

où Ω_{ij} est la fréquence de Rabi relative à une transition $i \leftrightarrow j$ couplée par un laser (elle est nulle sinon). Nous n'exprimons pas ici les éléments de matrice K_{ij} décrivant les "couplages" entre cohérences.

2.3.3.2 Simplification du système

Quatre états apparaissent¹⁸ sur le schéma d'excitation 2.3 (ceux couplés par laser) : les états $6s_{1/2}, F = 4$, $6p_{3/2}, F = 5$, $7s_{1/2}, F = 4$ et l'état Rydberg $np_{3/2}$. Nous négligeons l'émission spontanée de l'état Rydberg. Le modèle qui sera établi ne décrit que de manière imparfaite le système notamment parce que de nombreux états ne sont pas pris en compte, les sous-niveaux

¹⁸Il n'est en principe pas possible de négliger les états $6p_{1/2}, F = 3$ ou 4 et $6p_{3/2}, F = 3$ ou 4 (peuplés par émission spontanée depuis l'état $7s_{1/2}, F = 4$) et $6s_{1/2}, F = 3$ (peuplé par l'émission spontanée de l'état $7s$ après transit par les états $6p$). Cependant, le laser repompeur permet de repomper les atomes efficacement vers l'état $6s_{1/2}, F = 4$. En première approximation, nous introduisons artificiellement un terme de relaxation directement depuis l'état $7s_{1/2}, F = 4$ vers l'état $6s_{1/2}, F = 4$ égal à $0.39 \times \Gamma_{7s}$ sachant que le taux d'émission spontanée de l'état $7s_{1/2}, F = 4$ vers l'état $6p_{3/2}, F = 5$ est $0.61 \times \Gamma_{7s}$.

Zeeman par exemple. Le paragraphe suivant tente de caractériser de manière approchée les différentes transitions.

Suivons le même raisonnement qu'au paragraphe 2.3.1 où nous avons établi une fréquence de Rabi effective pour la transition $7s_{1/2}, F = 4 \leftrightarrow np_{3/2}$ (formule (2.15)). De même, la transition $6s_{1/2}, F = 4 \leftrightarrow 6p_{3/2}, F = 5$ fait intervenir toute la dégénérescence des sous-niveaux Zeeman. Cependant, nous supposons que la lumière des faisceaux pièges utilisés pour cette transition est dépolarisée¹⁹. D'après ([Steck, 2004]), tous les niveaux F, m_F ont la même probabilité d'absorption, la transition peut là aussi être décrite avec un système à deux niveaux dont le dipole effectif de transition est donné par :

$$|d_{eff}|^2 = \frac{1}{3} S_{FF'} |\langle J || r || J' \rangle|^2 \quad (2.22)$$

$$\text{où } S_{FF'} = (2F' + 1)(2J + 1) \left\{ \begin{array}{ccc} J & J' & 1 \\ F' & F & I \end{array} \right\} \text{ soit } S_{FF'} = 11/18 \text{ pour } F=4 \text{ et } F'=5.$$

Le cas de la transition $6p_{3/2}, F = 5 \leftrightarrow 7s_{1/2}, F = 4$ est plus délicat. La diode laser à 1470 nm est en effet polarisée linéairement selon l'axe de quantification qu'est le champ électrique externe appliqué entre les grilles. Nous branchons la diode laser 2 μ s avant le laser Ti:Sa, la population dans l'état $7s_{1/2}, F = 4$ atteint donc rapidement un état stationnaire (la durée de vie des cohérences est de 40 ns). Il est certain que les sous-niveaux Zeeman $7s_{1/2}, F = 4, m_F$ subissent une redistribution. Sont reportés dans le tableau suivant les carrés des coefficients de Clebsch-Gordan $\langle 6p_{3/2}, F = 5, m_F | 7s_{1/2}, F = 4, m_F \rangle$:

$ m_F $	0	1	2	3	4
$ \langle 6p_{3/2}, F = 5, m_F 7s_{1/2}, F = 4, m_F \rangle ^2$	0.55	0.53	0.46	0,36	0,19

Dans le cas d'un faible couplage, la transition $|6p_{3/2}, F = 5, m_F = 0\rangle \leftrightarrow |7s_{1/2}, F = 4, m_F = 0\rangle$ est du même ordre de grandeur que les transitions avec m_F égal à $|1|$ ou $|2|$ mais presque trois fois plus intense que la transition $|6p_{3/2}, F = 5, m_F = \pm 4\rangle \leftrightarrow |7s_{1/2}, F = 4, m_F = \pm 4\rangle$. Les états $|6p_{3/2}, F = 5, m_F = \pm 5\rangle$ ne sont même pas couplés.

Il apparaît assez difficile d'obtenir un résultat quantitatif précis sans modéliser le système complet. [Gao, 1993] a montré que la transition $6s_{1/2}, F = 4 \leftrightarrow 6p_{3/2}, F' = 5$ reliée par un champ électrique polarisé linéairement est équivalente en régime stationnaire à un système à deux niveaux couplés par un champ électrique dont la fréquence de Rabi est $\sqrt{g_p(2F + 1)}|\Omega_O|$, avec $g_p \propto 0.047$ (facteur géométrique dépendant seulement des valeurs de F et F') et $\Omega_O = -\frac{ES_{FF'}\langle J || er || J' \rangle}{\hbar}$ avec $S_{FF'}$ pour le cas étudié ici. La population dans l'état excité est distribuée

¹⁹Les six faisceaux deux à deux contrapropageants sont polarisés $\sigma+$ ou $\sigma-$ et sont optiquement deux à deux de même polarisation : polarisation circulaire droite dans les directions radiales par rapport aux bobines et circulaire gauche dans l'axe. Chaque doublet de faisceaux contrapropageants avec la même polarisation forme une onde de polarisation linéaire, dont la direction tourne de manière hélicoïdale autour de la direction de propagation. Les 6 faisceaux forment ainsi un réseau complexe et tridimensionnel d'intensité. L'intensité perçue par tous les atomes du PMO est très inhomogène, comprise entre 0 et $6 \times I_0$, où I_0 est l'intensité d'un seul des faisceaux. Nous ne tenons compte que de la valeur moyenne suivant les trois polarisations $\pi, \sigma+$ et $\sigma-$, ceci est évidemment problématique pour prendre en compte les effets multiphotoniques.

En projetant sur l'axe de quantification défini par la direction du champ électrique statique et les grilles, on trouve par exemple que l'intensité suivant la polarisation linéaire π peut varier entre 0 et $4I_0$ et qu'elle est en moyenne (spatiale) égale à I_0 . En moyenne, l'intensité est répartie à parts égales suivant les trois polarisations $\pi, \sigma+$ et $\sigma-$. En pratique, nous supposons que la lumière des faisceaux pièges est dépolarisée. Cela évidemment peut être problématique dans notre modèle car la répartition de l'intensité lumineuse totale suivant les différentes polarisations varie spatialement (de façon importante) et l'efficacité d'excitation varie aussi suivant chacune des polarisations.

de façon prépondérante dans l'état $m_{F'} = 0$ à l'état stationnaire. Il conviendrait dans notre cas de réaliser une telle analyse.

Nous supposons cependant²⁰ que la transition $|6p_{3/2}, F = 5\rangle \leftrightarrow |7s_{1/2}, F = 4\rangle$ peut être assimilée à un système à deux niveaux avec un couplage dont la fréquence de Rabi est $\Omega_{1470} = 0.58 \frac{E\langle F||er||F'\rangle}{\hbar}$ (la fréquence de Rabi est $0.74 \frac{E\langle F||er||F'\rangle}{\hbar}$ pour la transition la plus brillante $|6p_{3/2}, F = 5, m_F = 0\rangle \leftrightarrow |7s_{1/2}, F = 4, m_F = 0\rangle$).

2.3.3.3 Analyse des formes de raie expérimentales

Expérimentalement, les 6 lasers du PMO totalisent une puissance de 40 mW et sont collimatés au niveau du PMO avec un waist de 5 mm. Nous considérons une intensité totale moyenne égale à $3I_0 \sim 50 \text{ mW/cm}^2$ (l'intensité est considérée comme répartie à parts égales suivant chacune des polarisations π , $\sigma+$ et $\sigma-$, comme il a été précisé dans la note 19. Nous négligeons en particulier les inhomogénéités importantes d'intensités et de polarisation.), bien plus que l'intensité de saturation²¹ qui est de $\sim 2.7 \text{ mW/cm}^2$. Il apparaît alors un doublet Autler-Townes, les deux pics du doublet étant séparés d'une fréquence $\Omega_{eff} \sim 20 \text{ MHz}$, ce qui correspond à l'observation expérimentale (voir Fig. 2.21). Cependant, expérimentalement, le doublet observé est asymétrique, avec une prépondérance du pic décalé vers le bleu de la transition. Ceci est déjà été discuté dans les articles [Picque and Pinard, 1976, McClean and Swain, 1977] dans le cas du sodium. L'asymétrie est due à la présence des autres états de structure fine et notamment dans notre cas à la présence de l'état $|6p_{3/2}, F = 4\rangle$. Nous simulons le comportement asymétrique du doublet en présence de cet état, l'asymétrie calculée n'est que de l'ordre de 5% (les niveaux $|6p_{3/2}, F = 4\rangle$ et $|6p_{3/2}, F = 5\rangle$ sont distants de 250 MHz) et n'explique pas totalement notre observation. Comme cela est déjà mentionné dans [Picque and Pinard, 1976], une description totale du pompage optique s'avérerait nécessaire. Notamment dans notre cas, la fréquence est décalée linéairement depuis la fréquence de piégeage à -3Γ de la transition vers la fréquence désirée pendant un temps de l'ordre de 20 μs . Si nous décalons la fréquence

²⁰Nous supposons que les sous-niveaux Zeeman sont peuplés de manière équiprobable : nous prenons alors un coefficient d'absorption d'Einstein B proportionnel à moyenne des carrés des différents coefficients de Clebsch-Gordan, en considérant aussi que les états $|6p_{3/2}, F = 5, m_F = \pm 5\rangle$ peuplés dans le PMO sont des états noirs pour la diode 1470. Cette valeur, $\Omega_{1470} = 0.58 \frac{E\langle F||er||F'\rangle}{\hbar}$, est très proche de la valeur trouvée par [Gao, 1993] pour la transition $6s_{1/2}, F = 4 \leftrightarrow 6p_{3/2}, F' = 5$. Rigoureusement, l'hypothèse d'une répartition de la population équiprobable entre les sous-niveaux Zeeman implique que le coefficient d'émission stimulé B' depuis l'état $7s_{1/2}, F' = 4$ est légèrement différent, à un facteur $\frac{2F+1}{2F'+1}$ près, cependant proche de 1. Nous n'en tenons pas compte.

En présence d'un fort gradient de champ magnétique, il faut choisir le champ magnétique local comme axe de quantification : les atomes cycleraient principalement suivant l'une des deux transitions $\langle 6s_{1/2}, F = 4, m_F = \pm 4 | 6p_{3/2}, F' = 5, m_F = \pm 5 \rangle$ (c'est en effet de loin la transition la plus probable [Bleton, 1996, Steck, 2004]). Si le gradient est coupé juste avant l'excitation, en prenant l'axe de quantification suivant l'axe de polarisation des autres lasers et du champ électrique, les atomes se répartissent géométriquement dans le PMO suivant toutes les valeurs possibles de m_F ($m_F = \pm 4$ lorsque les deux axes coïncident, à savoir celui du champ magnétique local avant la coupure du gradient et celui du champ électrique). Ceci n'est pas le cas, la coupure du champ a lieu longtemps (1-2 ms) avant l'excitation pour permettre la stabilisation du courant dans les bobines, les atomes sont alors dépolarisés par les lasers du PMO.

Dans une partie des expériences, le champ magnétique n'est pas coupé mais les faisceaux lasers sont très focalisés au niveau du PMO (gradient de champ quasi-nul, l'élargissement des raies attendu par effet Zeeman $\sim 300 \text{ kHz}$ (cf. section 2.3.2) est négligeable et les lasers définissent l'axe de quantification, comme cela sera confirmé expérimentalement).

²¹L'intensité de saturation en régime stationnaire a pour expression, pour cette transition : $I_{sat} = \frac{c\epsilon_0\Gamma_{6p_{3/2}}^2\hbar^2}{4d_{eff}^2}$ où on a défini d_{eff} par la formule (2.22) et $\Gamma_{6p_{3/2}}$ est la durée de vie de l'état $6p_{3/2}$.

des lasers du piège vers le bleu de la transition, la fréquence traverse la résonance. Auquel cas deux phénomènes interviennent : d'une part, le pompage vers l'état $|6p_{3/2}, F = 5\rangle$ augmente, passant de 25% en régime de fonctionnement normal du PMO à quasiment 50% à résonance et d'autre part la probabilité d'excitation non désirée vers l'état $|6p_{3/2}, F = 4\rangle$ diminue. Le meilleur compromis semble être obtenu pour un décalage vers le bleu d'environ 8-10 MHz que nous avons utilisé dans un certains nombre d'expériences que nous discutons par la suite.

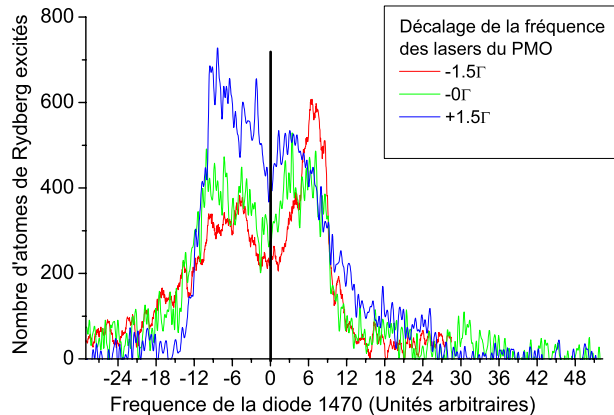


FIG. 2.21 – Spectres d'excitation Rydberg ($25p_{3/2}$) en fonction de la fréquence de la diode 1470. La fréquence du laser Ti:Sa est résonnante avec la transition $7s, F = 4 \leftrightarrow np_{3/2}$. Les lasers du PMO sont décalés en fréquence par rapport à la transition $6p_{3/2}, F = 5 \leftrightarrow 7s, F = 4$ de $-1.5 \times \Gamma$, $0 \times \Gamma$ et $1.5 \times \Gamma$ ($\Gamma \sim 2\pi \times 5.2$ MHz est le taux d'émission spontanée du niveau $6p_{3/2}$).

L'asymétrie d'amplitude des pics s'accompagne également d'un élargissement assez "anormal" des raies. L'étude de cet élargissement devrait prendre en compte le décalage différent des pics du doublet en fonction de la polarisation des atomes et surtout des inhomogénéités d'intensités du laser piège [Picque and Pinard, 1976]. Cet élargissement par le premier étage ne nous est pas dommageable, nous ne l'observons pas sur les spectres d'excitation Rydberg dans la mesure où usuellement la fréquence balayée est celle du laser Ti:Sa alors que la fréquence de la diode 1470 est maintenue fixe. Cet élargissement induit potentiellement une efficacité d'excitation vers l'état Rydberg non optimale.

Alors que pour sonder le doublet Autler-Townes sur l'état $6p_{3/2}$, la puissance de la diode 1470 était choisie très faible, elle est en général d'environ $1.1 \mu W$ et le faisceau est focalisé avec un waist de $105 \mu m$ sur le PMO, ce qui conduit à une intensité moyenne²² de $3.1 mW/cm^2$, de l'ordre de l'intensité de saturation²³ (égale à $2.7 mW/cm^2$ pour la transition considérée). La troisième étape de l'excitation est réalisée avec le laser Ti:Sa. Celui-ci est focalisé sur le PMO avec un waist de $70 \mu m$. Temporellement, l'excitation atteint très rapidement un état stationnaire. La figure 2.22 présente deux régimes d'excitation différents : un régime sous-critique lorsque la fréquence de Rabi associée à la transition $7s \rightarrow np_{3/2}$ est faible par rapport à la

²²Nous définissons l'intensité moyenne par la formule (2.17)

²³L'intensité de saturation est donnée en régime stationnaire, avec un taux de chargement constant de l'état $7s$ par l'expression :

$$I_{sat} = \frac{c\epsilon_0\hbar^2}{2d_{eff}^2} \frac{(\Gamma_{7s} + \Gamma_{6p_{3/2}})\Gamma_{7s}}{1 + \frac{\Gamma_{7s} - \gamma_{7s6p_{3/2}}}{\Gamma_{6p_{3/2}}}} \quad (2.23)$$

où on a défini d_{eff} dans le paragraphe précédent pour la transition $|6p_{3/2}, F = 5\rangle \leftrightarrow |7s_{1/2}, F = 4\rangle$, $\gamma_{7s6p_{3/2}}$ est le taux d'émission spontanée de l'état $7s$ vers l'état $6p_{3/2}$.

durée des cohérences de cette transition (exactement $\Omega_{TiSa} < \gamma_{7s}/2$) et un régime oscillant quand elle devient plus importante. De telles oscillations ne pourraient être observées expérimentalement en raison de l'inhomogénéité des faisceaux gaussiens utilisés (inhomogénéités spatiales du champ laser). Il est cependant préférable dans notre cas de nous placer dans le régime d'excitation sous-critique et donc incohérente. 300 ns est en général la durée des excitations que nous avons pratiquées, elle permet une excitation efficace pour l'ensemble des états avec la plage de puissances utilisées pour le faisceau du laser Ti:Sa (typiquement 0-200 mW). Nous présentons sur la Fig. 2.23 un spectre Rydberg typique obtenu pour l'état $36p_{3/2}$, avec une durée d'excitation de 300 ns et une puissance du laser Ti:Sa de 4 mW. Un champ électrique faible est appliqué ici, il permet de lever la dégénérescence des deux sous-niveaux magnétiques $|m_j| = 1/2$ et $|m_j| = 3/2$. L'effet Autler-Townes sur le premier étage de l'excitation est

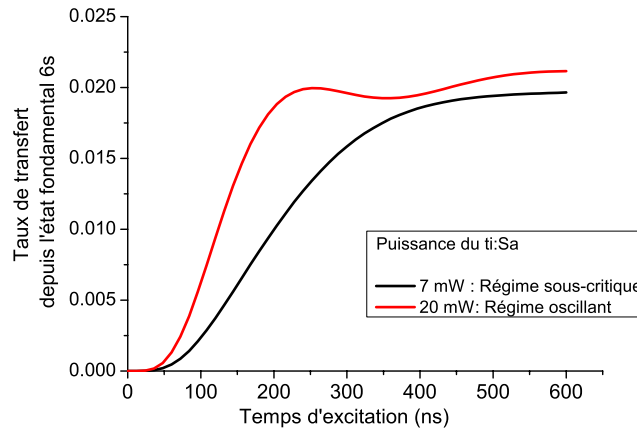


FIG. 2.22 – Comparaison de l'évolution temporelle théorique de l'excitation pour l'état $36p_{3/2}$, $|m_j| = 1/2$ pour deux puissances différentes du laser Ti:Sa.

responsable d'excitations parasites à deux ou trois photons. L'explication pour l'observation de telles excitations est donnée sur la Fig. 2.24. Des excitations multiphotoniques (2) et (3) vers l'état de Rydberg sont rendues possibles pour certaines fréquences du laser Ti:Sa, via les deux états du doublet $|+\rangle$ et $|-\rangle$. Si le décalage δ des lasers du PMO est positif (décalage vers le bleu de la transition piégeante), (2) est assimilée à une excitation biphotonique alors que (3) est assimilée à une excitation à 3 photons. Si la fréquence des lasers pièges est légèrement plus décalée vers le bleu, à ~ 10 MHz de la transition $6s_{1/2}$, $F = 4 \rightarrow 6p_{3/2}$, $F = 5$, la raie obtenue est déjà beaucoup plus symétrique, le décalage du niveau $|-\rangle$ devient négligeable : l'état $38p_{3/2}$ excité en champ nul est présenté Fig. 2.26 dans les conditions que nous utilisons pour la plupart des expériences concernant le blocage dipolaire. Finalement, en raison de l'effet Autler-Townes, si la diode 1470 est résonante avec la transition à 1 photon $7s \rightarrow np_{3/2}$, il n'est pas possible de transférer plus de 1 à 5% de la population du PMO dans l'état Rydberg sans élargissement par puissance.

Une analyse approfondie des formes de raie est proposée sur la Fig. 2.25 (a). Nous y relevons qu'un ajustement direct des formes de raie avec le modèle complet d'excitation (2.18) ne donne pas les bonnes amplitudes d'excitations multiphotoniques. Il faut en effet prendre en compte deux phénomènes, les inhomogénéités d'intensité des lasers pièges et surtout la cohérence des lasers. Notamment, l'excitation à 3 photons est une excitation très résonante et très sensible aux dérives de phase des lasers. Sur la Fig. 2.25 (b), il est montré que la

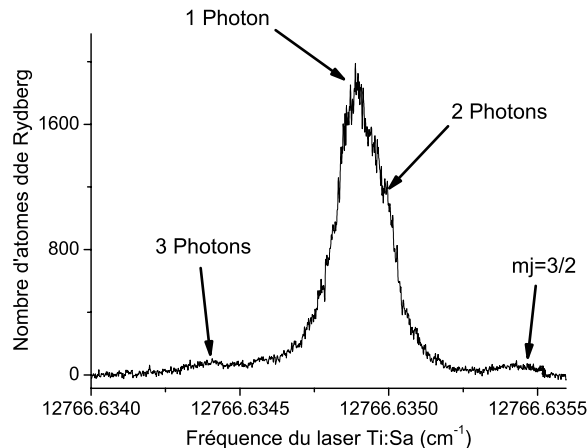


FIG. 2.23 – Spectre Rydberg de l'état $36p_{3/2}, |m_j| = 1/2$, avec une durée d'excitation de 300 ns et une puissance du laser Ti:Sa de 4 mW. Le décalage des lasers du PMO est de 8 MHz vers le bleu. La diode 1470 est résonante. On voit apparaître les raies d'excitation parasite à deux et trois photons (cf Fig. 2.24 pour l'explication) ainsi que l'état $36p_{3/2}, |m_j| = 3/2$.

diffusion de phase est responsable d'une chute drastique de l'excitation à 3 photons. Sa prise en compte permet d'obtenir un bien meilleur ajustement des formes de raie expérimentales. L'effet le plus important provient de la largeur spectrale de la diode laser DBR maître, $\Delta f \sim 3$ MHz, soit un temps de cohérence $\tau_C = \frac{1}{\pi \Delta f} \simeq 100$ ns. Ceci conduit à un déphasage de l'onde lumineuse au cours du temps $\Delta \Phi(\tau) = \Phi(t + \tau) - \Phi(t)$ dont la variance est $\langle \Delta \Phi^2(\tau) \rangle \simeq \frac{\tau}{\tau_C}$ moyennant une hypothèse de distribution de bruit blanc de fréquence²⁴ [Chardonnet, 1994, Aspect, 2005]. L'"ajustement" des raies expérimentales indique une largeur spectrale de la diode laser DBR légèrement plus faible, plutôt de l'ordre du MHz. Ceci n'est pas impossible car les données constructeur sont relativement imprécises concernant la largeur spectrale de cette diode et surtout les conditions de mesure de cette largeur. Nous n'avons pas considéré ici les inhomogénéités d'intensités des laser pièges, et notamment le fait que les 6 faisceaux forment un réseau complexe et tridimensionnel d'intensité (voir note 19) . Ce réseau tridimensionnel d'intensité pourrait même se déplacer légèrement durant l'excitation en raison de la diffusion de phase de la diode laser DBR. Comme nous le verrons dans les paragraphes suivants, la transition à deux photons est moins atténuée que la transition à 3 photons (la diode 1470 et le laser Ti:Sa ont une meilleure cohérence).

2.3.3.4 Saturation par puissance

Afin de mieux comprendre les éventuels problèmes de saturation de l'excitation, ramenons le système à un système à deux niveaux. Autrement dit, nous reprenons le système d'équations (2.9) développé au paragraphe 2.3.2. Cependant, le niveau $7s$ n'est plus peuplé via le niveau $7p$ mais nous introduisons un taux de chargement Λ par l'état $6p$. Cette approche est valide dans la mesure où ce taux de chargement est relativement faible en raison de l'effet Autler-Townes sur l'état $6p$. On peut donc réaliser une approximation de faible couplage entre l'état $6p$ et

²⁴La variable intéressante est la fréquence $f(t) = \frac{1}{2\pi} \dot{\phi}(t)$. L'hypothèse d'un bruit blanc de fréquence est une hypothèse courante pour les semiconducteurs.

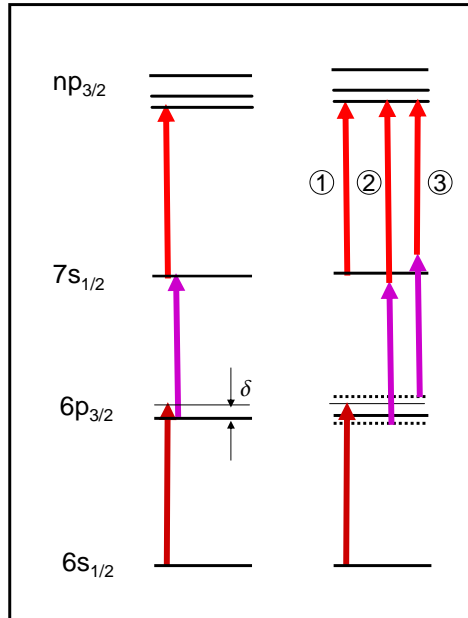


FIG. 2.24 – (gauche) Rappel du schéma d'excitation à 3 couleurs. Le décalage δ des lasers du PMO en régime de fonctionnement normal est de l'ordre de -15 MHz. Durant la phase d'excitation, il est en général ramené à $8-10$ MHz. (droite) En raison de l'effet Autler-Townes, la transition $6p_{3/2} \rightarrow 7s$ est dédoublée : les positions du doublet Autler-Townes se retrouvent aisément par l'approche de l'atome habillé, les états habillés sont les états $|+\rangle$ et $|-\rangle$. Lorsque le décalage δ augmente, l'un des pics du doublet se rapproche de la position résonante et décroît rapidement alors que l'autre s'en éloigne mais reste important (voir le schéma 2.8 pour la justification). Le premier pic correspond alors à une double étape d'excitation à un photon vers l'état $7s$, $6s \rightarrow 6p_{3/2} \rightarrow 7s$, alors que le deuxième correspond à une excitation à deux photons vers l'état $7s$, $6s \rightarrow 7s$. La diode 1470 choisie en général en résonance avec la transition $6p_{3/2} \rightarrow 7s$ n'est pas résonante avec les transitions $|+\rangle \rightarrow 7s$ et $|-\rangle \rightarrow 7s$. De ce fait, des voies d'excitation multiphotoniques (2) et (3) sont rendues non négligeables. (2) sera assimilée à une excitation à deux photons depuis l'état $|-\rangle$, (3) sera assimilée à une excitation à trois photons depuis l'état $6s$. La voie d'excitation (1) à un photon est en général celle qui nous intéresse. Sa position est fixe par rapport à la puissance et la fréquence des lasers des deux premiers étages.

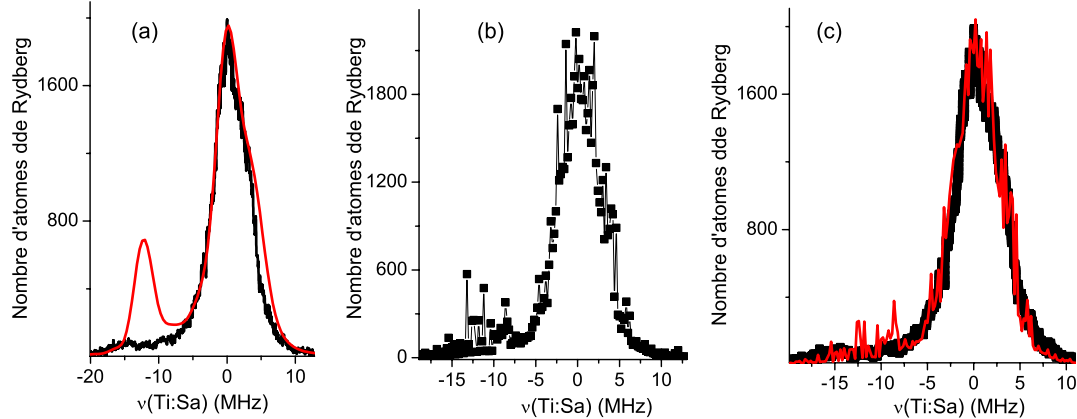


FIG. 2.25 – Ajustement théorique du spectre Rydberg de l'état $36p_{3/2}, |m_j| = 1/2$ présenté Fig. 2.23. (a) : Spectre expérimental auquel on superpose le résultat du modèle complet d'excitation (2.18). Le seul paramètre ajusté est l'amplitude du pic dans la mesure où nous ne connaissons qu'approximativement densité et nombre d'atomes. En toute rigueur, une intégration sur tout le volume gaussien d'excitation doit être effectuée. Il serait cependant extrêmement compliqué de tenir compte des inhomogénéités d'intensité des lasers du PMO. Le modèle n'utilise ici comme paramètres que des intensités moyennes. Les excitations multiphotoniques et surtout l'excitation à 3 photons apparaissent de manière trop marquée. Il existe deux raisons à cela. D'une part, les inhomogénéités d'intensités dans le PMO induisent une fréquence de résonance du laser Ti:Sa variable pour l'excitation à 3 photons (effet Autler-Townes variable). Les inhomogénéités dues à une excitation gaussienne doivent être prises en compte. D'autre part, les lasers ne sont pas totalement cohérents durant le temps d'excitation : la variance de la phase du champ électrique varie suivant l'expression $\langle \Delta\Phi^2(\tau) \rangle \simeq \frac{\tau}{\tau_C}$. Nous analysons l'influence de la cohérence sur les figures (b) et (c). (b) : modèle d'excitation prenant en compte cette variation de phase aléatoire pour le premier étage d'excitation notamment. Le temps de cohérence des lasers du PMO est supposé égal à 300 ns. Celle des autres lasers est supposée grande devant le temps d'excitation mais petite devant la période d'acquisition : l'exploration en fréquence coup sur coup (à chaque nouvelle période de l'acquisition) est supposée être de l'ordre de 400 kHz pour la diode 1470 et 200 kHz pour le laser Ti:Sa. Le spectre est échantillonné sur 250 points. Une diminution drastique de l'excitation à 3 photons apparaît. Cependant, quelques points marquant une excitation encore trop cohérente sont présents. Nous n'avons en effet supposé une variation aléatoire de la phase que sur un nombre discret d'intervalles de temps, en l'occurrence 7. (c) Superposition du spectre expérimental (a) et du spectre théorique (b) (auquel nous avons retiré quelques points "trop" cohérents). L'accord est meilleur. La perte de cohérence devrait être prise en compte de manière continue (bruit "blanc") et sur tous les niveaux d'excitation pour trouver un meilleur résultat. Ceci n'est cependant pas l'objet du travail que nous avons effectué. L'excitation à 3 photons semble être aussi possible pour des fréquences légèrement plus élevées que ce qu'on observe expérimentalement, nous attribuons ceci à l'inhomogénéité d'intensité des lasers pièges.

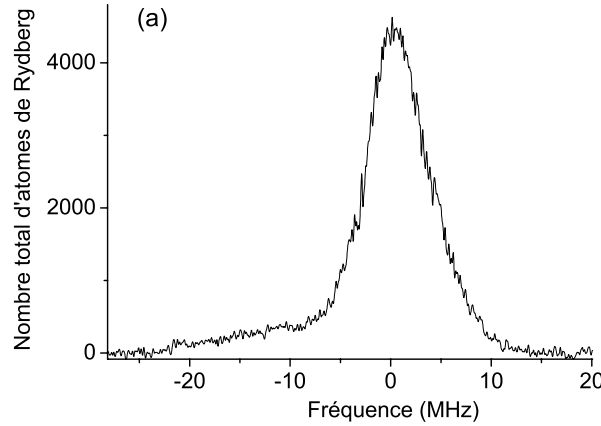


FIG. 2.26 – Spectre Rydberg de l'état $38p_{3/2}$ en champ nul, avec une durée d'excitation de 300 ns et une puissance du laser Ti:Sa de 8 mW. Le décalage des lasers du PMO est de 10 MHz vers le bleu. La diode 1470 est résonante. On ne voit que faiblement apparaître les raies d'excitation parasite à deux et trois photons.

l'état $7s$ par la diode 1470 : la population dans le réservoir varie faiblement²⁵. La population transférée dans l'état $7s$ en régime stationnaire est Λ/γ_{7s} , de même que la population transférée dans l'état de Rydberg (on considère une durée de vie quasi-infinie pour l'état de Rydberg), quel que soit le décalage de la fréquence du laser Ti:Sa par rapport à la transition $7s \rightarrow np$. Ce résultat peut sembler surprenant mais la durée de vie quasi infinie de l'état Rydberg ne limite pas le temps nécessaire à l'excitation et il est toujours possible de transférer un maximum de population dans l'état Rydberg. Le régime stationnaire s'établit après un temps qui dépend de l'efficacité de l'excitation, i.e. du décalage de la fréquence du laser Ti:Sa, de la durée de vie de l'état $7s$ et de la fréquence de Rabi associée à la transition $7s \rightarrow np$.

En réalisant une autre approximation du type adiabatique, explicitement dans le système 2.9 nous supposons $\gamma_{7s} \gg \Omega_{TiSa}$ et $\gamma_{7s} \gg \delta$ où δ est le décalage du laser Ti:Sa, on obtient l'expression simple :

$$\rho_{Ryd}(t) = \frac{\Lambda}{\gamma_{7s}}(1 - e^{-\frac{t}{\tau}}) \quad (2.24)$$

où le temps caractéristique τ d'établissement du régime stationnaire est donné par l'expression $\tau^{-1} = \frac{\gamma_{7s}\Omega^2/4}{\delta^2 + \gamma_{7s}^2/4 + \Omega^2/4}$.

A temps courts (i.e. si $t \ll \tau$), cette expression devient :

$$\rho_{Ryd}(t) = \Lambda t \frac{\frac{\Omega^2}{4}}{\delta^2 + \frac{\gamma_{7s}^2}{4} + \frac{\Omega^2}{4}} \quad (2.25)$$

La forme de raie à temps courts est donc Lorentzienne. On peut définir en première approximation une intensité de saturation, à partir de laquelle la raie d'excitation s'élargit. A

²⁵Il est possible de détailler un peu plus en étudiant l'interaction du système $7s - np$ avec un réservoir contenant les atomes dans les états $6s$ et $6p$ dont la population totale est ρ_R et $\alpha\rho_R$ est la population dans l'état $6p$. Typiquement, $\alpha = 0.32$ pour un décalage de 8 MHz des lasers du PMO. Le chargement Λ est alors $\sim \alpha\rho_R B$ où B est la probabilité d'excitation vers l'état $7s$ en présence de la diode 1470. Le paramètre Λ est calculé en régime stationnaire en considérant le système complet.

partir de l'expression (2.24), on établit que pour un temps d'excitation t , elle est de l'ordre de $\frac{\epsilon_0 c \hbar^2 \gamma_{7s}^2}{2d_{eff}^2 (t\gamma_{7s} - 1)}$ où d_{eff} est le dipôle effectif de la transition $7s \rightarrow np$ défini par la formule (2.13). Pour l'état $36p$ et $t = \frac{6}{\gamma_{7s}}$, cette expression donne 15 W/cm^2 (le calcul exact à 4 niveaux donne une valeur 3 fois supérieure). La largeur de raie donnée par l'expression (2.25) est égale à γ_{7s} , le calcul exact donne une valeur proche de $\gamma_{7s} + \frac{2\pi}{T}$, avec T la durée de l'impulsion du laser Ti:Sa, soit de l'ordre de 5 MHz (le modèle adiabatique n'est pas valable sur tout le spectre, il n'est en effet valide que si la supposition $\gamma_{7s} \gg \delta$ est vérifiée).

Elargissements par puissance et temporels

La figure 2.27 montre l'évolution des raies d'excitation expérimentales de l'état $36p_{3/2}$ en fonction de la puissance du laser Ti:Sa. A partir d'une puissance de l'ordre de 31 mW, la saturation est quasi-complète au centre de la raie. On note également que la raie se décale vers le bleu à forte puissance, l'excitation à 2 photons n'est donc pas négligeable. Cet élargissement

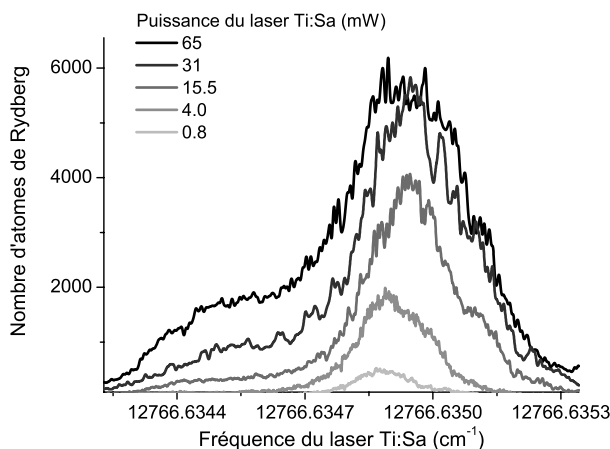


FIG. 2.27 – Etude de l'excitation de l'état $36p_{3/2}$ pour différentes puissances du laser Ti:Sa et une durée d'excitation de 300 ns. On voit apparaître l'élargissement par saturation de l'excitation et l'effet des excitations multiphotoniques à 2 et 3 photons.

est relativement similaire à celui qu'on peut observer temporellement. Une caractéristique de cette excitation est en effet la longue durée de vie de l'état Rydberg responsable d'un élargissement à temps "longs" d'excitation. Les données expérimentales ne sont pas reproduites ici mais l'élargissement est proche de celui observé sur la figure 2.27.

Description correcte des élargissements par puissance et temporels

Il nous sera nécessaire de décrire correctement ces élargissements lors de l'étude du blocage dipolaire. Nous montrons dans ce paragraphe qu'il n'est pas possible de se satisfaire d'une description à 2 niveaux. Sur la figure 2.28, nous comparons le modèle à deux niveaux exact et le modèle complet pour différents temps d'excitation.

Les taux d'excitation dans les deux modèles sont qualitativement en bon accord. Cependant, les formes de raie diffèrent beaucoup d'un cas à l'autre. Le schéma complet fait apparaître les voies d'excitation à 2 et 3 photons, qui ont pour effet d'élargir les raies d'excitation. Les formes de raie expérimentales sont assez proches de lorentziennes à faibles intensités du laser Ti:Sa (voir Fig. 2.26) mais suivant les cas (i. e. le décalage des lasers du PMO) il est quand

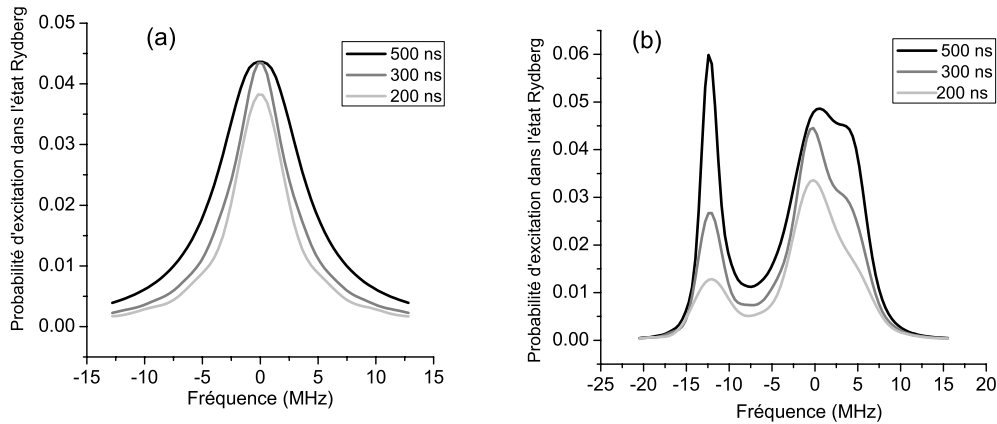


FIG. 2.28 – Nous comparons ici le modèle d'excitation complet (b) avec un modèle très simplifié à 2 niveaux (a), pour différentes durées d'excitation de l'état $36p_{3/2}$ (décalage de 8 MHz vers le bleu des lasers du PMO). Les résultats sont assez différents du point de vue de la forme des raies, mais les taux d'excitation à 1 photon restent relativement similaires.

même nécessaire de prendre en compte la présence de l'excitation 2 photons (la diode 1470 et le laser Ti:Sa ont donc une bonne cohérence). L'excitation 3 photons quant à elle est très atténuée.

L'approche à deux niveaux permet de comprendre la provenance de l'élargissement par saturation mais elle est insuffisante pour une description quantitative : l'évolution temporelle du signal Rydberg ainsi que les dépendances en intensité sont aussi liées à la durée de vie très faible de l'état $6p$ (30 ns), d'autant que nous travaillons toujours en régime proche de saturation. Nous illustrons ce problème Fig. 2.29 où nous voyons que le modèle complet est beaucoup mieux à même de décrire la saturation par puissance de l'excitation en comparaison avec l'expérience, dans le cas de l'excitation de l'état $36p_{3/2}$.

Remarque concernant les ions Un point sensible concerne les champs inhomogènes créés par une assemblée d'ions. Comme il sera détaillé au paragraphe 3, une charge d'espace créée par un ensemble d'ions au cours de l'excitation est responsable d'un blocage de l'excitation qui peut mimer et complètement noyer l'effet du blocage dipolaire. Dans le cas de l'excitation continue, ces ions proviennent principalement de collisions entre atomes, notamment entre atomes de Rydberg. Nous verrons au chapitre 6 que les taux d'ionisation observés augmentent avec n (avec un pic observé pour $n = 43$) et sont largement plus grands que les taux d'ionisation induite par le rayonnement du corps noir²⁶ qui eux diminuent avec n . Pour éviter des problèmes de suppression d'excitation par charge d'espace, nous avons dès le départ choisi des temps d'excitation très courts, ~ 300 ns. Ceci ne pose pas de problème en terme d'efficacité d'excitation comme nous avons pu le voir précédemment.

2.3.3.5 Conclusion : possibilité d'une excitation cohérente

Finalement, le schéma d'excitation continu à 3 couleurs permet d'obtenir une excitation relativement propre et assez bien comprise. Le seul inconvénient réside actuellement dans

²⁶Le rayonnement du corps noir permet des transitions directement vers le continuum d'états libres.

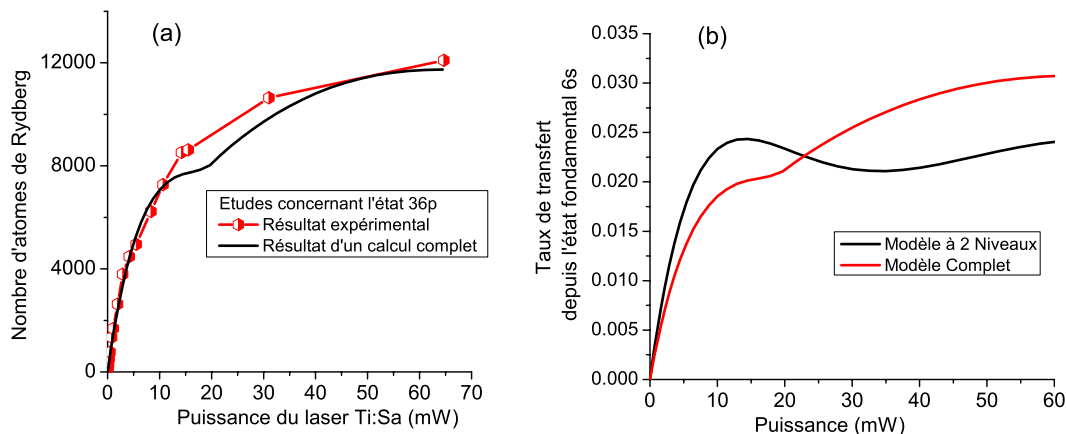


FIG. 2.29 – (a) Comparaison de la saturation théorique et de la saturation expérimentale en fonction de la puissance du laser Ti:Sa dans le cas de l'excitation de l'état $36p_{3/2}$. L'évolution non "uniforme" est due à l'apparition d'oscillations de Rabi pour des fortes intensités d'excitation. La forme gaussienne du laser Ti:Sa empêche d'observer un tel phénomène. La forme gaussienne est probablement responsable aussi de la non complète saturation observée expérimentalement : la saturation n'apparaît pas uniformément dans tout le volume d'excitation. (b) Comparaison des saturations théoriques lorsque nous prenons en compte le système complet et lorsque nous ne considérons qu'un schéma à deux niveaux. La saturation est beaucoup plus rapide avec un modèle à deux niveaux.

la présence de l'effet Autler-Townes sur le premier étage de l'excitation. Celui-ci limite les densités accessibles sans la présence d'un élargissement par puissance.

Une amélioration possible est de tirer parti de l'excitation à 3 couleurs et des excitations multiphotoniques pour réaliser une excitation complètement cohérente. L'expérience s'oriente en ce moment vers cette possibilité. Nous présentons le résultat du calcul Fig. 2.30 lorsque les lasers diode des deux premiers étages sont très décalés de résonance avec de fortes puissances pour favoriser l'excitation à 3 photons. Expérimentalement, le même résultat est obtenu mais un facteur 20 fois moindre pour l'excitation à 3 photons. La limitation provient de la cohérence des lasers piège mais il est déjà possible expérimentalement d'obtenir une excitation aussi efficace à 3 photons avec de fortes puissances et forts décalages que dans les expériences présentées dans cette thèse (utilisant essentiellement la transition à un photon depuis l'état $7s$). Le remplacement des lasers du piège par une diode très fine montée en cavité étendue va probablement permettre un bien meilleur taux d'excitation. Il sera possible de réaliser des oscillations de Rabi avec cette excitation à trois photons et donc potentiellement possible de réaliser des transitions π avec transfert complet de la population dans l'état de Rydberg.

2.4 Spectroscopie d'états très excités

2.4.1 Motivation

En raison de leurs très grandes polarisabilités, l'étude d'états de Rydberg très excités ($n > 100$) permet de sonder et contrôler la qualité des champs externes appliqués. Des niveaux du barium allant jusqu'à $n = 290$ ont pu être excités et résolus spectralement en jet atomique avec un champ contrôlé à mieux que le mV/cm [Rinneberg et al., 1985], ou encore des niveaux jusqu'à $n \sim 1000$ avec des molécules de Rydberg SF₆ et CCl₄ en jet moléculaire.

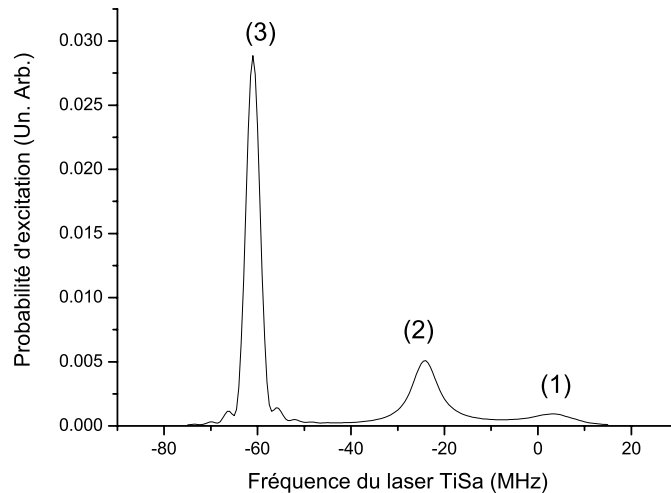


FIG. 2.30 – Calcul pour l'état $50p_{3/2}$ de la probabilité d'excitation dans le cas où les lasers du PMO et la diode 1470 sont fortement décalés vers le bleu (à 35 et 50 MHz des transitions atomiques respectivement). La puissance de la diode 1470 est égale à $40 \mu\text{W}$ et celle du laser Ti:Sa est égale à 50 mW . On voit apparaître les transitions à (1), (2) et (3) photons. L'écart d'énergie entre les pics (1) et (2) est dû à l'effet Autler-Townes sur l'état $7s$.

laire [Frey et al., 1994]. Plus récemment, l'utilisation de transitions micro-ondes entre états de Rydberg du krypton a permis de déterminer des champs électriques à mieux que $20 \mu\text{V}/\text{cm}$ [Osterwalder and Merkt, 1999]. Nous parvenons dans notre expérience à résoudre spectroscopiquement l'excitation des atomes froids de césium jusqu'à $n \sim 300$ (soit à moins de 30 GHz du seuil d'ionisation).

L'autre intérêt de cette spectroscopie d'états très excités est d'étudier la possibilité de former des états moléculaires stables à très longue distance internucléaire. Différentes études théoriques portent sur la possibilité de photoassocier de tels molécules [Boisseau et al., 2002, Flannery et al., 2005, Greene et al., 2000, Hamilton et al., 2002, Khuskivadze et al., 2002, Liu and Rost, 2006]. De telles molécules sont extrêmement sensibles à leur environnement et pourraient constituer un outil de spectroscopie très fine. Il est notamment possible d'obtenir des dimères d'alcalins ayant de façon surprenante un très fort moment dipolaire permanent [Greene et al., 2000].

La proposition de [Boisseau et al., 2002] démontre la présence de potentiels moléculaires à très longue distance dans le cas de l'interaction entre deux atomes dans l'état np . À grande distance internucléaire R ($R > R_{lr}$, où $R_{lr} \sim 10^3 a_0$ est la distance internucléaire limite donnée par le rayon de Leroy-Bernstein), nous avons vu (cf. section 1.3.1) que le potentiel d'interaction peut se développer suivant un développement en puissance de $1/R$. Dans le cas d'une excitation d'atomes np , il prend la forme :

$$V(R) \simeq -\frac{C_5}{R^5} - \frac{C_6}{R^6} - \frac{C_8}{R^8} \quad (2.26)$$

À l'asymptote $np - np$ d'un dimère homonucléaire, il existe 6 paires de potentiels moléculaires possibles $^1\Delta_g - ^3\Delta_u$, $^1\Pi_g - ^3\Pi_u$, $^3\Pi_g - ^1\Pi_u$, $^3\Sigma_g^- - ^1\Sigma_u^-$ et enfin deux paires de potentiels $^1\Sigma_g^+ - ^3\Sigma_u^+$ (dans la base du cas (a) de Hund, lorsque l'interaction spin-orbite est négligée).

L'une des paires $^1\Sigma_g^+ - ^3\Sigma_u^+$ correspond à des potentiels stables mais à courte distance. À de

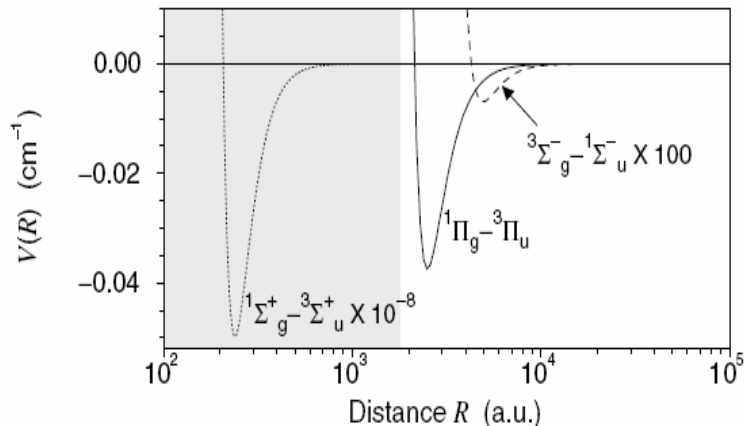


FIG. 2.31 – Potentiels attractifs à la limite asymptotique $np - np$ pour le rubidium (dans la base du cas (a) de Hund). Cette figure est extraite de [Boisseau et al., 2002]. La zone grisée correspond à une zone où le calcul asymptotique n'est plus valable. Les potentiels $^1\Pi_g$ et $^3\Pi_u$ (dégénérés asymptotiquement) pourraient permettre la formation de molécules froides. Les potentiels $^1\Sigma_g^+$ et $^3\Sigma_u^-$ sont trop superficiels.

telles distances, le développement 2.26 n'est pas suffisant, il faut prendre en compte les interactions d'échange et de recouvrement de charge²⁷. La lettre [Boisseau et al., 2002] se focalise sur l'étude à grandes distances. Dans cet article, il est montré que les potentiels moléculaires $^1\Pi_g$ et $^3\Pi_u$ présents à très longue distance peuvent permettre la formation de molécules stables (voir Fig. 2.31). Cette stabilité provient d'une compensation d'une interaction Van der Waals répulsive à courte distance (en $-C_6/R_6$) par une interaction dipôle-quadrupôle (en C_5/R_5) attractive à longue distance. Il apparaît cependant que de tels potentiels moléculaires stables à très longue distance sont accessibles pour des états peu élevés : pour $n = 20$, la profondeur d'un tel puits n'est que de 300 MHz et la profondeur du puits suit une loi d'échelle $D_e \propto n^{-7}$ (et les différents puits sont de plus en plus couplés). Ce qui éventuellement pourrait être observé dans notre expérience est une asymétrie des raies d'excitation vers le rouge, ce qui correspondrait à une distribution non résolue d'états vibrationnels. Cependant, pour vraiment observer une telle distribution de niveaux, il vaudrait mieux d'abord exciter un ensemble d'atomes de Rydberg de manière pulsée et ensuite balayer un deuxième laser vers le rouge de la résonance atomique.

Dans [Flannery et al., 2005], un calcul exact est proposé pour décrire l'interaction entre deux atomes d'hydrogènes placés en champ électrique (les atomes ont alors un moment permanent, le terme dominant du développement multipolaire est en $-C_3/R_3$). De même, certaines symétries font apparaître des potentiels moléculaires stables à très longue distance. La stabilité provient cette fois-ci d'une compensation à "courtes distances" de l'interaction dipôle-dipôle par l'interaction dipôle-quadrupôle. De même, il apparaît plus probable de pouvoir photoassocier de telles molécules lorsque n n'est pas trop grand, car la profondeur des potentiels devient de plus en plus faible quand n augmente (typiquement $D_e < 5 \text{ cm}^{-1}$ pour $n > 50$) et la densité de potentiels moléculaires couplés (dont certains sont répulsifs) devient très grande.

Dans notre expérience, il est peu probable d'observer des états moléculaires formés de deux atomes de Rydberg très distants comme ceux présentés dans les références précédentes.

²⁷Voir au sujet des intégrales d'échange et de recouvrement le complément G_{XI} dans [Cohen-Tanoudji et al., 2000]

Il faudrait en effet pouvoir exciter simultanément les deux atomes avec une excitation à deux photons, mais ceci nécessite une assez forte puissance laser.

Une équipe du Connecticut [Farooqi et al., 2003] a observé des résonances moléculaires provenant d'un couplage à plus courte distance entre le potentiel $^1\Sigma_g^+$ relié asymptotiquement à l'état $70p+70p$ et les potentiels reliés asymptotiquement à l'état $69d+70s$ (voir Fig. 2.32). Ce couplage se situe à environ 2 GHz vers le rouge de la transition atomique $5s \rightarrow 70p$ du rubidium. Les potentiels $^1\Sigma_g^+$ et $^3\Sigma_u^+$ ont leur dernier niveau vibrationnel très proche de la position de ce couplage²⁸, celui-ci peut entrer en résonance avec le continuum d'états des potentiels reliés asymptotiquement à l'état $69d + 70s$. D'où l'observation d'une résonance atomique importante. Nous pourrions espérer observer de tels couplages moléculaires (toutefois, dans l'expérience [Farooqi et al., 2003], l'excitation est pulsée et une telle résonance est obtenue via une excitation à 2 photons : cette résonance moléculaire est en effet très éloignée spectralement de la résonance atomique.).

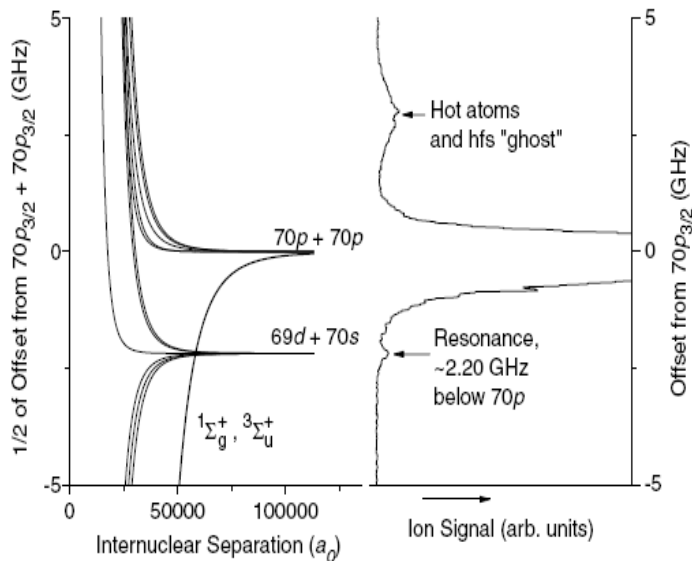


FIG. 2.32 – Potentiels moléculaires reliés aux asymptotes $70p - 70p$ et $69d - 70s$. Les potentiels $^1\Sigma_g^+$ et $^3\Sigma_u^+$ reliés à l'asymptote $70p - 70p$ sont couplés par interaction dipôle-dipôle aux états moléculaires reliés à l'asymptote $69d - 70s$. La probabilité d'excitation d'une paire d'atomes "69d - 70s" devient non négligeable, d'où l'observation d'une résonance atomique à environ 2.2 GHz de la résonance atomique $70p$ (le continuum d'états libres des potentiels reliés à l'asymptote $69d - 70s$ peuvent être excités grâce au couplage dipôle-dipôle).

Les autres propositions [Greene et al., 2000, Hamilton et al., 2002, Khuskivadze et al., 2002] concernent la possibilité de former des dimères associant un atome de Rydberg et un atome dans l'état fondamental. [Greene et al., 2000] ont montré qu'il est possible de former des trilobites (voir Fig. 2.33) : pour un tel état, la probabilité de présence de l'électron de valence de l'atome de Rydberg est concentrée autour de l'atome neutre dans l'état fondamental (il tend à graviter autour de celui-ci). Ceci conduit donc à un transfert de charge vers l'atome neutre et donc à la constitution d'un moment dipolaire permanent très grand. La taille typique d'un tel trilobite est celle d'un atome de Rydberg. L'existence de telles structures a été confirmée théoriquement par des calculs plus

²⁸Les états $^1\Sigma_g^+$ et $^3\Sigma_u^+$ sont profonds et étroits, il en résulte un espacement important des niveaux vibrationnels.

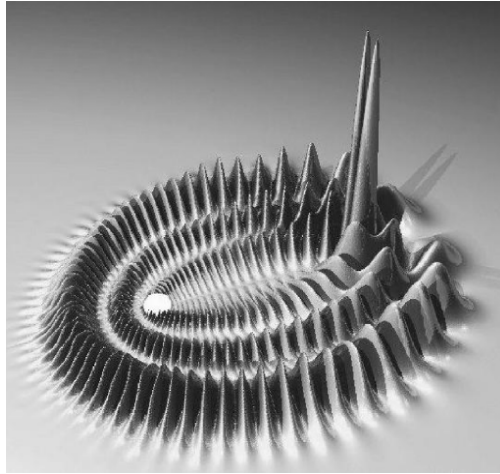


FIG. 2.33 – Trilobite. Densité de probabilité de présence de l'électron de valence d'un atome de Rydberg dans l'état $n = 30$ (superposition de différents l) placé au voisinage d'un atome de rubidium dans son état fondamental ($Rb5s$). La fonction d'onde de l'électron est "localisée" au niveau de l'atome dans son état fondamental ($Rb5s$ est placé sous les deux obélisques), l'ion Rb^+ est représenté par une boule blanche.

exacts [Khuskivadze et al., 2002]. Leur observation expérimentale demeure un challenge. Cette observation nécessite d'exciter des atomes de Rydberg de relativement haut moment angulaire (état f, g ou h par exemple). Les densités d'atomes dans l'état fondamental doivent être grandes aussi, pour que la séparation interatomique puisse être de l'ordre de la taille d'un atome de Rydberg (la distance internucléaire d'équilibre est $\sim 1200 a_0$ pour $n = 30$, correspondant à une densité d'environ 10^{14} at/cm³). Les propositions théoriques portent sur des états de n relativement bas car de même les potentiels considérés deviennent très superficiels quand n augmente. Il devrait être possible également de former des molécules polyatomiques, où un atome de Rydberg est associé à plusieurs atomes dans l'état fondamental [Liu and Rost, 2006].

2.4.2 Compensation des champs électriques parasites

La compensation des champs électriques parasites (constants) est relativement aisée lorsqu'on utilise des états de grands n . Typiquement, nous comparons sur la Fig. 2.34 l'état $148p$ avec compensation et sans compensation.²⁹

Sans compensation, les états $148s$ (non présents sur la figure), $149s$ et $147d$ auxquels l'état $148p$ est fortement couplé en champ électrique sont présents dans le spectre d'excitation. La forte amplitude³⁰ des états $147d$ et $149s$ caractérise la présence d'un champ parasite important ($\tan^2 \theta \sim 9$). Pour compenser expérimentalement le champ électrique parasite constant, il suffit de minimiser l'amplitude des états s et d (ou de minimiser le décalage Stark de l'état p) en appliquant des champs électriques de compensation dans les 3 directions de l'espace (nous ne

²⁹Pour toutes les expériences présentées dans ce paragraphe, la diode 1470 est quasiment collimatée au niveau du PMO et l'intensité au niveau du PMO est proche de l'intensité de saturation. Le laser Ti:Sa est lui focalisé sur un waist d'environ $200 \mu m$, avec une puissance d'environ 200 mW.

³⁰On remarque sur la figure 2.34 que l'amplitude de l'état $149s$ même plus importante que celle de l'état $148p$: l'excitation de l'état $148p$ est peut être limitée par un phénomène d'interaction, de type dipôle-dipôle ou de type charge-dipôle (il n'est pas possible de distinguer ions et atomes de Rydberg dans notre expérience à partir de $n = 100$).

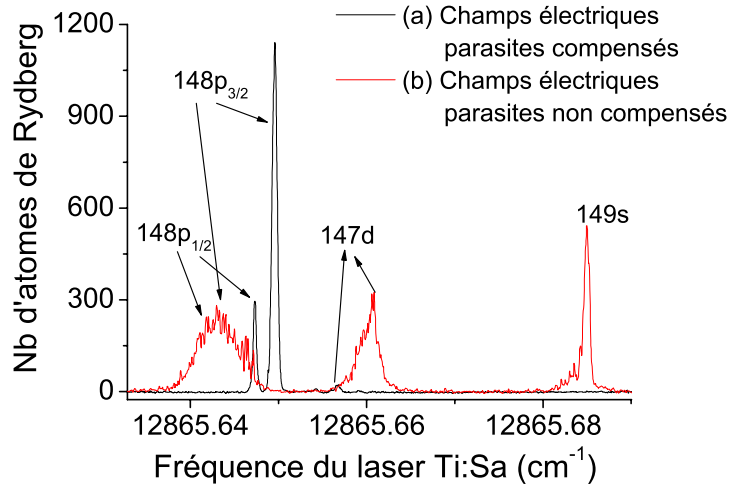


FIG. 2.34 – Spectres de l'état $148p$, lorsque le champ électrique est compensé (a) et lorsqu'il ne l'est pas (b). En (b), la forte amplitude des états $147d$ et $149s$ caractérise la présence d'un champ parasite important ($\tan^2 \theta \sim 9$). En (a) Le champ électrique est compensé, les états $148p_{1/2}$ et $148p_{3/2}$ sont résolus. Il demeure un résidu d'état $148d$ (il est à peine possible de résoudre la structure fine de l'état d , car elle n'est que de 12 MHz en champ nul).

pouvions contrôler que deux d'entre elles, mais par chance, le champ parasite résiduel dans la troisième est très faible).

Nous travaillons désormais avec un champ électrique compensé, et nous exposons maintenant différents résultats permettant d'aller plus loin encore. La figure 2.35 compare l'évolution des maxima d'amplitude et des largeurs de raie des spectres des états $np_{1/2}$ et $np_{3/2}$. L'amplitude semble diminuer plus rapidement que la variation supposée en n^{-3} , notamment pour les états $np_{3/2}$. Il est possible que cette saturation soit due à la présence d'interactions, notamment dipôle-dipôle. Il n'est cependant pas possible de conclure à ce stade dans la mesure où l'évolution exacte avec n de la force d'oscillateur n'est pas bien connue, notamment pour les grands n . Il peut en effet exister des anomalies pour l'excitation depuis un état fortement lié (voir paragraphe 1.2.3). La largeur de raie semble également augmenter avec n . Comme on le voit sur la Fig. 2.36, l'élargissement effectif est en fait faible quand on superpose les spectres des états $170p_{3/2}$ et $148p_{3/2}$ (corrigé de la variation en n^{-3}). L'augmentation des largeurs à mi-hauteur observées Fig. 2.35 pourrait provenir d'un phénomène de saturation par interactions plus important au centre des raies que sur les ailes (moins d'atomes sont excités sur les ailes, les interactions y sont donc plus faibles, il n'y a donc pas de saturation) : l'élargissement n'est qu'apparent et provient de la méthode de mesure car nous mesurons la largeur à mi-hauteur. Nous reviendrons en détails sur tous ces points au chapitre 4.

On voit également sur la Fig. 2.36 la présence d'une résonance vers le bleu de l'état $148p$. En fait, deux résonances dénommées P1 et P2 sont présentes entre les états np et $(n-1)d$, que l'on distingue mieux Fig. 2.37 dans le cas de l'excitation de l'état $166p$.

L'étude systématique de la position de ces pics par rapport à l'état $(n-1)d$ est présentée Fig. 2.38 : ces deux résonances sont situées à 113 et 72 MHz de l'état $(n-1)d$ et correspondent à des fréquences de modulation de modulateurs acousto-optique utilisés pour contrôler la durée des impulsions laser (une modification de la fréquence de modulation de la diode laser 1470 décale le pic P2 situé à 72 MHz de l'état $(n-1)d$). Ces résonances ne correspondent en fait qu'à des excitations à 2 photons vers l'état $(n-1)d$, un photon provient du laser Ti:Sa et un

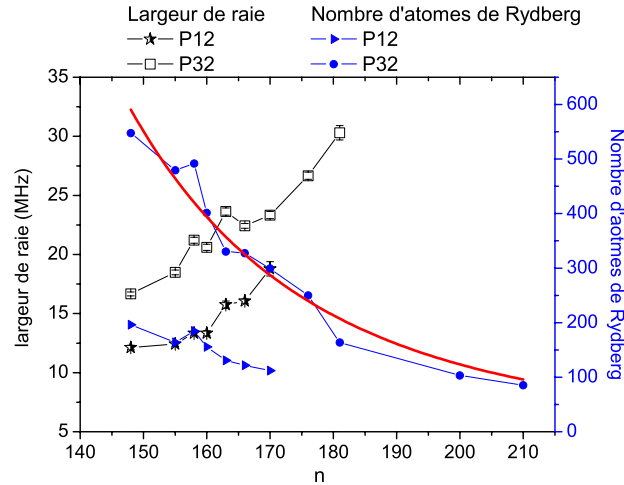


FIG. 2.35 – Analyse des spectres d’excitation d’états de Rydberg $np_{1/2}$ et $np_{3/2}$ pour n variant de 148 à 210. La structure fine de l’état p n’est pas résolue pour $n > 180$, ce qui justifie l’absence de certaines données. Sont présentées les largeurs de raie (étoiles vides pour les états $p_{1/2}$ et carrés vides pour les états $p_{3/2}$) et les maxima d’amplitude (triangles pour les états $p_{1/2}$ et disques pour les états $p_{3/2}$). L’amplitude des états $p_{3/2}$ est ajustée via une loi de puissance $\propto n^{-5.2}$. La diminution est donc beaucoup plus rapide que la variation attendue $\propto n^{-3}$ (voir paragraphe 1.2.3).

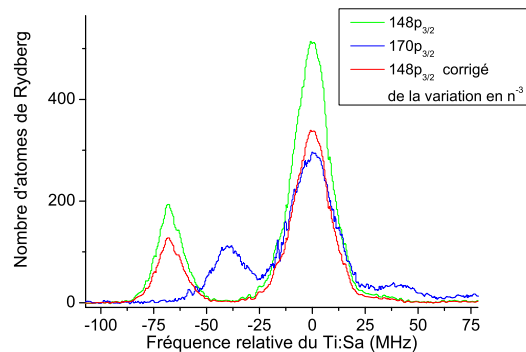


FIG. 2.36 – Superposition du spectre des états $170p_{3/2}$ et $148p_{3/2}$ (la fréquence du laser Ti:Sa est rapportée à 0 au centre des raies correspondant aux états $np_{3/2}$ pour chacun des spectres). L’état $170p_{3/2}$ est par ailleurs comparé à l’état $148p_{3/2}$ corrigé de la variation supposé en n^{-3} des forces d’oscillateur. La diminution du signal entre les états $148p_{3/2}$ et $170p_{3/2}$ est donc plus grande que celle attendue : il est possible que ce soit un effet d’interaction du type dipôle-dipôle.

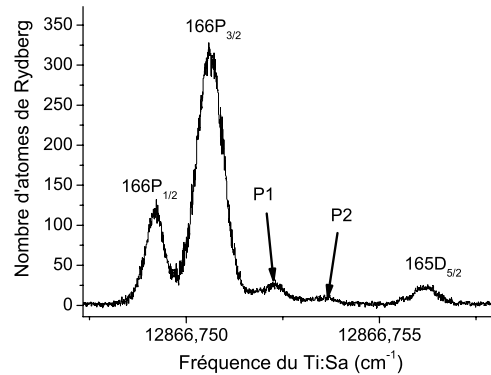


FIG. 2.37 – (a) Spectres typiques de l'état 166p lorsque les champs parasites sont compensés mais pas protégés des bruits radiofréquences. En plus des états $np_{1/2}$, $np_{3/2}$ et $(n-1)d$, il apparaît deux pics P1 et P2, dont l'origine est élucidée via l'étude présentée Fig. 2.38. Ces deux pics ont pour origine des transitions à deux photons $7s \rightarrow nd$, un photon provenant du laser Ti:Sa et un photon provenant d'une radiofréquence parasite.

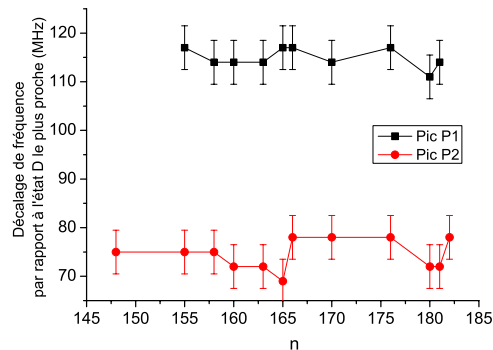


FIG. 2.38 – Positions relatives (en MHz) par rapport à l'état d des Pics P1 et P2 observés Fig. 2.40 entre les états p et d . Ces pics sont décalés respectivement d'environ 113 MHz et 72 MHz de l'état d le plus proche. Il s'agit là d'une transition à 2 photons vers l'état d , un photon laser plus un photon radiofréquence provenant d'un modulateur acousto-optique. Pour le pic P1, il s'agit du modulateur acousto-optique contrôlant l'injection des lasers pièges. Pour le pic P2, la radiofréquence provient du modulateur acousto-optique contrôlant l'envoi de la diode 1470. Du fait de moments dipolaires de transition très élevés entre états voisins, un très faible bruit radiofréquence (amplitude du champ électrique radiofréquence inférieure à $3mV/cm$) suffit pour que l'observation de tels effets soit possible. Ils peuvent être en partie éliminés, ce que nous verrons Fig. 2.39.

photon provenant d'un bruit radiofréquence.

La suppression des bruits radiofréquences permet d'obtenir des spectres de meilleur qualité comme celui présenté sur la Fig. 2.39. Le couplage avec l'état $(n - 1)d$ n'apparaît que pour $n \sim 150$. A partir de $n \sim 190$, notre excitation ne permet plus de résoudre la structure fine. Pour $n \sim 200$, le couplage avec les états ns apparaît.

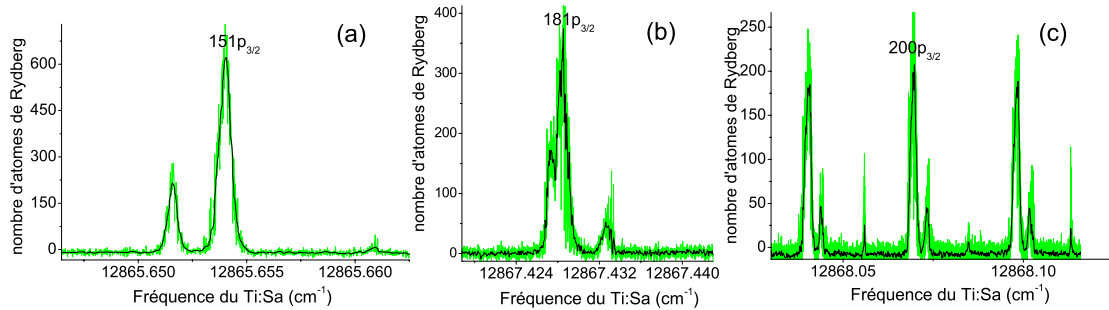


FIG. 2.39 – Spectres typiques obtenus lorsque les champs parasites sont compensés et le système de contrôle du champ électrique protégé des bruits radiofréquences. (gauche) Etat 151p, la structure fine de l'état np est bien résolue, l'état 150d apparaît. (centre) Etat 181p, la structure fine de l'état np (~ 38 MHz) est à peine résolue. (droite) Autour de l'état 200p : le couplage avec l'état ns apparaît.

A partir des amplitudes relatives des états np et $(n - 1)d$ observées Fig. 2.39 (b), nous évaluons le champ résiduel à $800 \mu\text{V}/\text{cm}$.

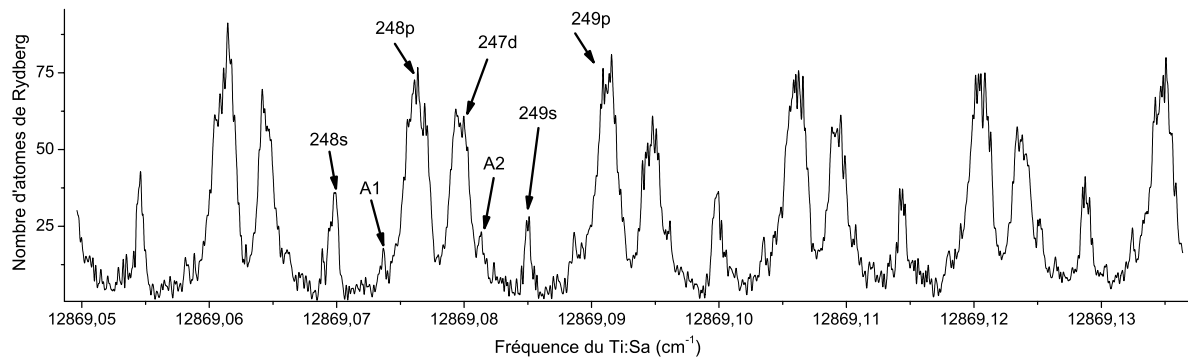


FIG. 2.40 – (a) Spectre autour de l'état 249p. On voit apparaître systématiquement le triplet ns , np , $(n - 1)d$ issu du couplage Stark de l'état np avec les états ns et $(n - 1)d$. Il apparaît également des structures A1 et A2 de chaque côté de l'état ns . Les positions de ces structures par rapport à l'état ns sont analysées Fig. 2.41.

Nous avons entrepris d'exciter des états de nombre quantique principal plus élevé encore. Un spectre autour des états tels que $n \sim 249$ est présenté sur la Fig. 2.40. On perçoit systématiquement les triplets ns , np et $(n - 1)d$ issus du couplage Stark. Mais il apparaît également des résonances A1 et A2 de chaque côté des états np et $(n - 1)d$. L'interprétation en est donnée Fig. 2.41 : il s'agit cette fois-ci de transition à 2 photons radiofréquence vers les états ns et

$(n+1)s$ situés de part et d'autre de l'état np . Le photon de radiofréquence parasite à 110 MHz provient du modulateur acousto-optique contrôlant l'injection de la diode des lasers pièges. La protection contre les bruits électromagnétiques n'est donc pas encore optimale.

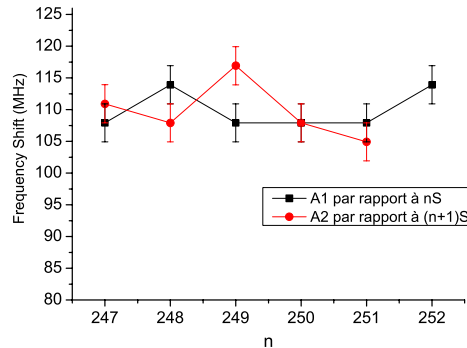


FIG. 2.41 – Positions relatives (en MHz) des pics A1 et A2 observés Fig. 2.40 de part et d'autre de l'état np par rapport aux états ns et $(n+1)s$ respectivement. Ces pics sont toujours décalés d'environ 110 MHz de l'état s le plus proche. Il s'agit là encore d'une transition à 2 photons vers l'état s , un photon laser plus un photon radiofréquence provenant du modulateur acousto-optique contrôlant le laser d'injection des lasers du PMO.

Une structure de doublet apparaît pour les états p autour de $n = 271$ (voir Fig. 2.42). Ce type de structure pourrait être dû à l'interaction dipôle-dipôle entre les états $|np, np\rangle$ et $|ns, (n+1)s\rangle$: l'écartement énergétique entre ces deux états est très faible pour les grands n , il est inférieur à 6,5 MHz pour $n=270$, l'excitation de l'état p se fait donc en présence d'interaction dipôle-dipôle résonante.

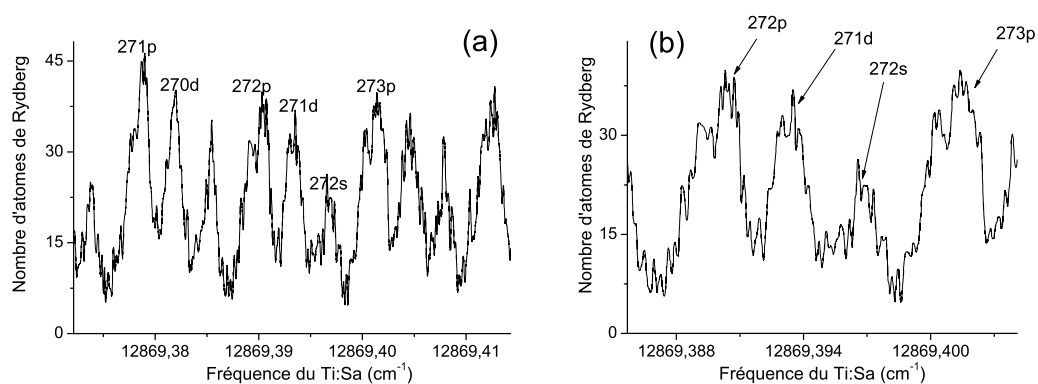


FIG. 2.42 – (a) Spectre d'états de Rydberg autour de l'état $270p$: nous distinguons les structures s , p , d . Les états p présentent une structure caractéristique de résonance noire au centre des raies qui pourrait être attribuée à l'interaction dipôle-dipôle $np, np \longleftrightarrow ns, (n+1)s$ (voir paragraphes 1.3.4.2 et 4.4). (b) Zoom sur les états $271p$ et $272p$.

Une étude systématique devrait être entreprise, notamment pour déterminer la dépendance par rapports aux densités atomiques. Nous voyons en effet que moins de 50 atomes sont excités

dans un volume de l'ordre de $(4\pi)^{3/2}(50\mu m)^3$ (volume gaussien³¹ en première approximation), soit une distance internucléaire moyenne de l'ordre de $20\mu m$, suffisante pour que de fortes interactions aient lieu (~ 100 MHz). Sur la Fig. 2.42, l'écart entre les pics des doublets est d'environ 40 MHz.

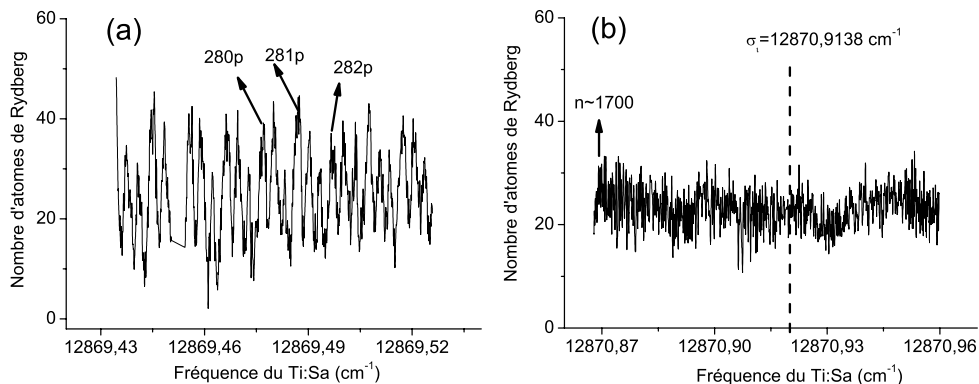


FIG. 2.43 – (a) Spectre autour de l'état 281p : la structure *s*, *p*, *d* se distingue toujours, mais de plus en plus le spectre apparaît comme continu. (b) Spectre continu autour du seuil d'ionisation.

Enfin, nous étudions le spectre d'excitation autour du seuil d'ionisation. Le laser Ti:Sa est balayé autour de la fréquence $\sigma = 12870.9138\text{ cm}^{-1}$ (cf Fig. 2.43 (b)). Ce spectre est continu car sous le seuil d'ionisation il n'est pas possible de résoudre les différents états. Ce spectre devient progressivement continu entre $n=280$ (Fig. 2.43 (a)) et $n \sim 310$. Il n'est pas possible d'affirmer que nous détectons bien des atomes de Rydberg et non pas des ions (les champs d'ionisation des atomes de Rydberg sont très faibles). Cependant, pour $n \sim 3500$, le rayon d'un atome est d'environ $100\mu m$, soit la taille de l'échantillon d'excitation. Dès lors, les fonctions d'onde des atomes excités se recouvrent, ce qui conduit à une ionisation très rapide [Ryabtsev et al., 2005].

En conclusion, il est possible d'affirmer qu'un très bon contrôle de l'excitation vers des états de Rydberg est possible grâce au schéma d'excitation continue qui a été mis en place. La stabilité et la grande résolution spectrale de cette excitation a permis une compensation des champs électriques et surtout un contrôle accru des bruits électromagnétiques parasites, qui sont une des clés de l'observation possible du blocage dipolaire en champ électrique. Différentes particularités liées à l'excitation de grands n , par exemple l'observation d'un doublet pour l'état 271p mériteront de plus amples investigations dans l'avenir.

³¹Le volume d'excitation est calculé via l'expression $V^{-1} = \int f^2(\vec{r})d\vec{r}$ où $f(\vec{r})$ est la fonction de répartition reliée à la densité d'atomes excités n_{ryd} et au nombre total d'atomes excités N_{tot} par l'expression $n_{ryd}(\vec{r}) = N_{tot}f(\vec{r})$.

Chapitre 3

Suppression de l'excitation Rydberg par charge d'espace

Un grand nombre de paramètres expérimentaux doivent être contrôlés proprement pour l'étude du blocage dipolaire et en général pour l'étude d'interactions entre atomes de Rydberg : les champs électromagnétiques parasites liés aux bruits de l'environnement extérieur, la stabilité spectrale des lasers, les problèmes de saturation de l'excitation par puissance... Nous avons rencontré au chapitre précédent l'effet délétère d'une distribution de charges créée par les ions sur l'excitation Rydberg. Ces charges sont connues pour être responsables d'élargissements de raie importants ainsi que d'une suppression d'excitation en raison de l'effet Stark inhomogène non désiré.

L'influence de ces ions est en particulier étudiée dans ce chapitre : nous analysons la limitation de l'excitation par une charge d'espace, pouvant mimer un effet de blocage dipolaire de l'excitation. Par ailleurs, la dynamique des ions (notamment l'explosion coulombienne) est responsable de formes de raies d'excitation Rydberg très spécifiques. Un modèle simple d'excitation en présence d'explosion coulombienne est proposé. Nous n'abordons pas le problème des collisions froides ionisantes dans ce paragraphe, ce point sera développé plus précisément aux chapitres 4.4.5 et surtout 6.

3.1 Processus de photoionisation

Au chapitre 2.3.1, plusieurs mécanismes de photoionisation ont été rencontrés. L'un d'eux correspond à une ionisation résonante par l'intermédiaire de l'état $7p$ dans le cas de l'excitation dite pulsée-continue ou PC (cf schéma 2.16). Dans cette section, les taux d'ionisation obtenus expérimentalement sont comparés à des prédictions théoriques d'ionisation à deux fois un photon par l'intermédiaire d'un niveau d'énergie résonant. Nous étudions également le problème de l'ionisation par l'intermédiaire d'un niveau Rydberg résonant lorsque l'excitation d'atomes vers ce niveau est réalisée de manière pulsée (par exemple depuis le niveau $6p$). Enfin, une dernière source de photoionisation est abordée, correspondant à une ionisation directe à un photon avec le laser Ti:Sa depuis l'état $7p$.

3.1.1 Sections efficaces de photoionisation

Les sections efficaces sont bien adaptées pour décrire les processus d'absorption de la lumière. Le taux de photoionisation $\Gamma(n, l, m, \omega)$ d'un état $|n, l, m\rangle$ sous l'effet d'un rayonnement (flux de photons Φ) de fréquence ω est directement relié à la section efficace d'ionisation

$\sigma_I(n, l, \omega)$:

$$\Gamma(n, l, m, \omega) = \Phi \sigma_I(n, l, m, \omega) \quad (3.1)$$

Cette section efficace a l'expression suivante pour une polarisation linéaire, où $\Psi(\mathcal{E}, l', m')$ dénote l'état du continuum d'énergie \mathcal{E} :

$$\sigma_I(n, l, m, \omega) = \frac{4}{3} \pi^2 \alpha \omega \sum_{l'=l\pm 1} |\langle \Psi(n, l, m) | \hat{z} | \Psi(\mathcal{E}, l', m) \rangle|^2 \quad (3.2)$$

Souvent les sections efficaces sont moyennées sur un ensemble statistique de sous-niveaux m et sur l'ensemble des polarisations possibles (voir par exemple [Friedrich, 1998], chap. 3). La section efficace $\sigma_I(n, l, \omega)$ s'exprime alors simplement en fonction des intégrales radiales $R_{\mathcal{E}, l-1}$ et $R_{\mathcal{E}, l+1}$, utilisant les parties radiales des fonctions d'onde de l'état lié $\mathcal{U}_{nl}(r)$ et de l'état du continuum $\mathcal{U}_{\mathcal{E}, l\pm 1}$ (voir [Kennedy and Manson, 1972] pour un rappel concernant l'expression exacte de la fonction d'onde du continuum) :

$$R_{\mathcal{E}, l\pm 1} = \int_0^\infty r^3 \mathcal{U}_{nl}(r) \mathcal{U}_{\mathcal{E}, l\pm 1}(r) \quad (3.3)$$

La dépendance avec la structure fine n'est pas considérée, il est cependant connu que les forces d'oscillateur et donc les sections efficaces en dépendent (le défaut quantique détermine directement la position des noeuds de la fonction d'onde).

Pour les états $6p$ et $7p$ du césium, un certain nombre de travaux théoriques sont disponibles [Msezane, 1983, Lahiri and Manson, 1986], confortant les résultats expérimentaux obtenus pour l'état $6p$ [Maragò et al., 1998]. La figure 3.1 issue de [Msezane, 1983] montre que la section efficace d'ionisation diminue lentement à partir du seuil d'ionisation. Elle est égale à $\sigma_I \approx 3 \times 10^{-22} \text{ m}^2$ pour la longueur d'onde du laser pulsé en excitation PC ($\lambda = 455,8 \text{ nm}$, soit $\lambda^{-1} \approx 0.2R_y$) et $\sigma_I \approx 10 \times 10^{-22} \text{ m}^2$ pour $\lambda = 780 \text{ nm}$ (soit $\lambda^{-1} \approx 0.1R_y$).

Pour d'autres états, la section efficace peut présenter un minimum de Cooper, c'est à dire elle qu'elle peut s'annuler pour une longueur d'onde particulière. Par exemple, pour l'état $7s$, il y aurait annulation de la section efficace d'ionisation pour une longueur d'onde d'excitation proche de 450 nm [Lahiri and Manson, 1986].

Pour les états de Rydberg, les valeurs des intégrales radiales sont données dans [Hoogenraad and Noordam, 1998] pour une excitation dans l'infrarouge lointain ($\sigma = 0 - 500 \text{ cm}^{-1}$). Elles permettent de retrouver les sections efficaces d'ionisation dans cette plage de longueur d'onde. Il est possible d'affirmer qu'elles constituent encore un ordre de grandeur raisonnable dans le visible, la variation de la section efficace d'ionisation avec l'énergie de la transition étant lente (elle diminue lentement sur la figure 3.1). Dans le césium, la transition d'un état Rydberg np lié vers un état d du continuum admet cependant un minimum de Cooper proche du seuil d'ionisation qui diminue quelque peu la qualité de l'extrapolation pour des fréquences de transition plus grande. En utilisant les calculs et les valeurs des intégrales radiales (au seuil d'ionisation) trouvés dans [Hoogenraad and Noordam, 1998], nous traçons Fig. 3.2 les sections efficaces d'ionisation en fonction de n pour des atomes dans l'état $|ns, m = 0\rangle$ (fréquence de transition transition autour de $510\text{-}515 \text{ nm}$).

3.1.2 Photoionisation par l'intermédiaire d'un niveau résonant

Ionisation via le niveau $7p$

La source la plus importante d'ions dans l'excitation PC (cf schéma 2.16) provient de l'ionisation résonante via le niveau $7p$, avec le laser pulsé de longueur d'onde $\lambda = 455,8 \text{ nm}$.

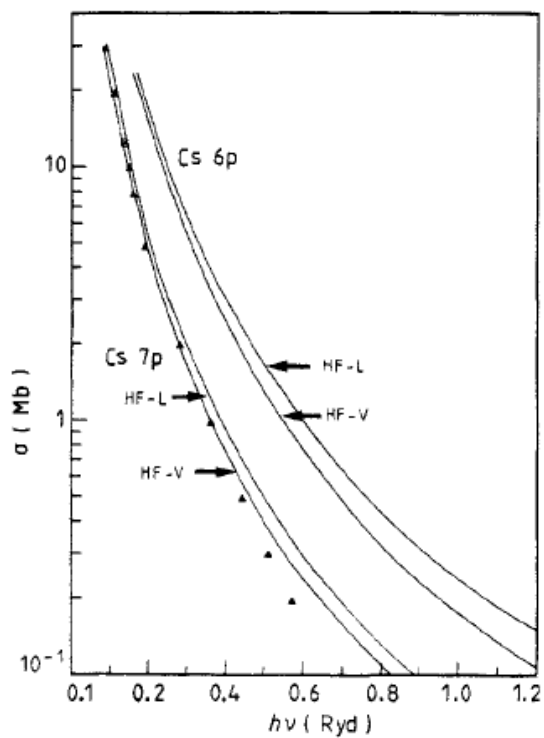


FIG. 3.1 – Tracé des sections efficaces d'ionisation depuis les états $6p$ et $7p$ (en Mb avec $1 \text{ barn} = 10^{-28} \text{ m}^{-2}$) en fonction de l'énergie du photon de photoionisation (extrait de [Msezane, 1983]).

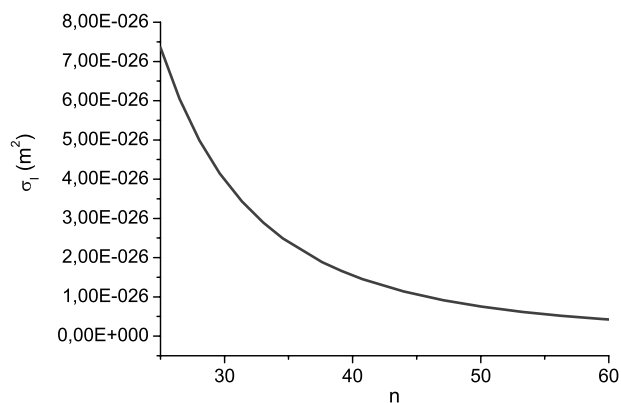


FIG. 3.2 – Sections efficaces d'ionisation par une lumière de longueur d'onde $\lambda = 510 \text{ nm}$ depuis un état Rydberg ns en fonction de n .

Afin d'étudier ce phénomène de manière théorique, nous allons nous baser sur une étude de la RIS (resonance ionization spectroscopy) proposée dans l'article de revue [Hurst et al., 1979] et notamment appliquée à l'ionisation via le niveau $7p$ dans le césium (en présence de collisions avec un gaz rare). Dans cet article, le calcul est effectué dans le cadre de l'approximation du champ tournant. Il est montré que pour un laser pulsé large bande (au moins $\Delta\nu_L = 3$ GHz dans notre cas), des équations de taux sont relativement satisfaisantes dans la limite $\Omega_R \ll \Gamma_L$, Γ_L étant relié au temps de cohérence¹ du laser τ_L , Ω_R est la fréquence de Rabi associée à la transition.

En principe, ces équations de taux ne sont pas valables à fortes puissances mais elles fournissent de relativement bons résultats au-delà des conditions de leur établissement. D'après [Hurst et al., 1979], le système d'équations s'écrit simplement :

$$\begin{aligned}\frac{dn_1}{dt} &= -\bar{\sigma}_a \Phi n_1 + \bar{\sigma}_s \Phi n_2 + \Gamma_{21} n_2 \\ \frac{dn_2}{dt} &= \bar{\sigma}_a \Phi n_1 - \bar{\sigma}_s \Phi n_2 - \Gamma_{21} n_2 - \beta n_2 \\ \frac{dn_I}{dt} &= -\sigma_I \Phi n_2\end{aligned}\tag{3.4}$$

Où n_1 et n_2 sont les densités d'atomes dans les états $|1\rangle \equiv 6s, F=4$ et $|2\rangle \equiv 7p_{3/2}$ respectivement. $n_I(t)$ est la densité d'atomes ionisés. $\Gamma_{12} = 2.7 \times 10^6 \text{ rad.s}^{-1}$ est le taux de désexcitation radiative du niveau $|2\rangle$ vers le niveau $|1\rangle$, $\beta \approx 6 \times 10^6 \text{ rad.s}^{-1}$ est le taux de désexcitation radiative vers les autres états. Alors que le taux "global" d'émission spontanée ne dépend pas du niveau de structure hyperfine du niveau $7p_{3/2}$, les rapports de branchement en dépendent. Les taux d'émission spontanée depuis un sous-niveau de structure hyperfine du niveau $7p_{3/2}$ sont évalués en supposant une répartition équiprobable de l'excitation dans les sous-niveaux Zeeman (le temps de vie radiatif du niveau de structure fine $7p_{3/2}$ est obtenu d'après les calculs de l'article [Warner, 1968]). $\Phi = \frac{I_P}{h\nu_P}$ est le flux de photons par unité de surface exprimé en fonction de l'intensité du laser pulsé I_P et de la fréquence optique ν_P . $\bar{\sigma}_s \approx \frac{\lambda_P^2 \Gamma_{12}}{8\pi \Delta\nu_L}$ est la section efficace d'émission stimulée pour la transition de l'état $|2\rangle$ vers l'état $|1\rangle$ moyennée sur tout le spectre d'excitation $\int d\nu \sigma_s(\nu) \phi(\nu) = \bar{\sigma}_s \Phi$, en supposant la largeur de raie très inférieure à la largeur du laser. Nous choisissons $\bar{\sigma}_a = \bar{\sigma}_s$ la section efficace d'absorption moyennée (elle devrait en fait tenir compte des trois niveaux de structure hyperfine.).

Cette équation est très simplifiée puisqu'il faudrait tenir compte de manière correcte de tous les niveaux. Nous travaillons par ailleurs à fortes intensités où il peut être nécessaire de tenir compte de l'évolution des cohérences malgré la grande largeur spectrale de l'excitation. Elle nous permet cependant de confirmer les ordres de grandeur des nombres d'atomes et d'ions détectés. Les résultats sont présentés Fig. 3.3. Le nombre d'ions varie quadratiquement en fonction de l'intensité laser à faibles intensités, puis linéairement lorsque la transition $1 \rightarrow 2$ devient saturée. La saturation est obtenue très rapidement dans notre schéma d'excitation pour des impulsions laser d'énergie inférieures à $0.2 \mu\text{J}$ (focalisées avec un waist de $300 \mu\text{m}$ sur le PMO). Il semble qu'expérimentalement, nous parvenions à saturation pour des puissances un peu plus élevées (beaucoup d'incertitudes sont à prendre en compte, dont notamment la taille

¹ Γ_L n'est pas directement $2\pi\Delta\nu_L$, le laser n'est pas en effet limité par transformée de Fourier. Le champ électrique pour un tel laser large bande est une somme de plusieurs modes longitudinaux sans relation de phase entre eux et peut se mettre sous la forme $E(t) = E_0(t) \cos(\omega_0 t + \phi(t))$, où la phase $\phi(t)$ et l'amplitude $E_0(t)$ varient de manière stochastique et compliquée. $2\pi\Delta\nu_L$ peut être pris comme une borne supérieure pour Γ_L , d'autant meilleure que le nombre de modes est élevé.

du waist laser). Nous avons travaillé en général en régime saturé (plus de 50 % des atomes sont excités dans l'état $7p_{3/2}$) comme le dénote la figure 3.3 donnant le nombre d'ions en fonction de la puissance laser. En utilisant la valeur de la section efficace d'ionisation en excitation depuis l'état $7p$ à 455.8 nm donnée au paragraphe 3.1.1, nous retrouvons le même ordre de grandeur pour les taux de formations d'ions en fonction de la puissance du laser pulsé. De 20000 à 50000 ions peuvent être formés avec des impulsion très énergétiques. Ce résultat dépend bien sûr d'un grand nombre de paramètres dont le nombre d'atomes initialement dans le PMO, l'ajustement délicat de la longueur d'onde du laser sur la transition, la mesure de la puissance qui dépend de l'énergie par impulsion et de sa durée, 9 ns, ou encore le taux d'ASE qui peut être extrêmement important, car la durée de vie du colorant utilisé, la Coumarine 450, est seulement de quelques heures (avant qu'il ne devienne trop absorbant), etc...

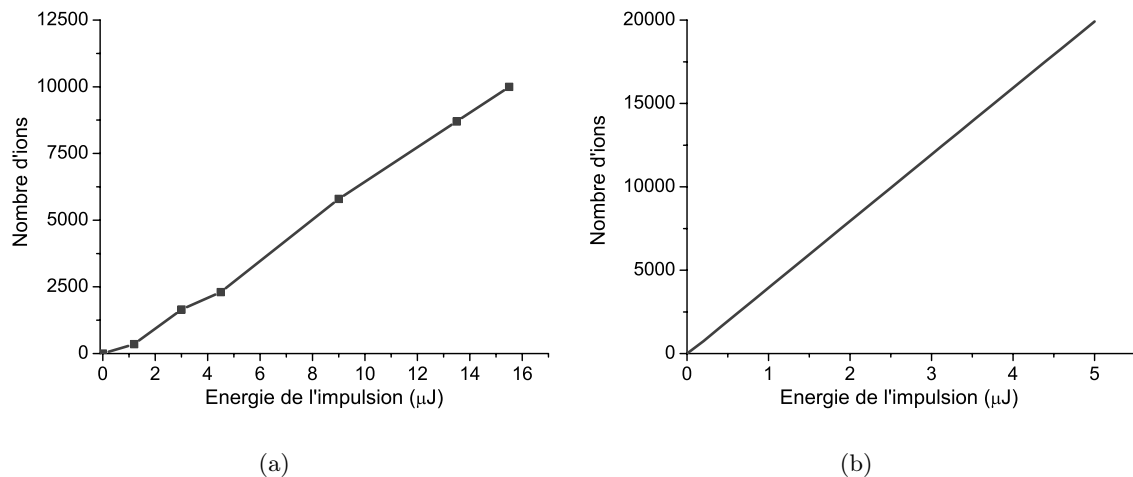


FIG. 3.3 – Comparaison des nombres d'ions obtenus expérimentalement et par le calcul à 2 fois un photon via le niveau résonant $7p$ en excitation PC, en fonction de l'énergie du laser. La variation linéaire est due à la complète saturation de l'excitation. Il semble qu'il y ait un facteur 5 entre l'expérience et le calcul. Cependant, il existe de très nombreuses incertitudes : section efficace d'ionisation, waist, puissance exacte du laser, section efficace d'absorption vers l'état $7p$, densité dans le PMO....

Ionisation via un niveau Rydberg résonant

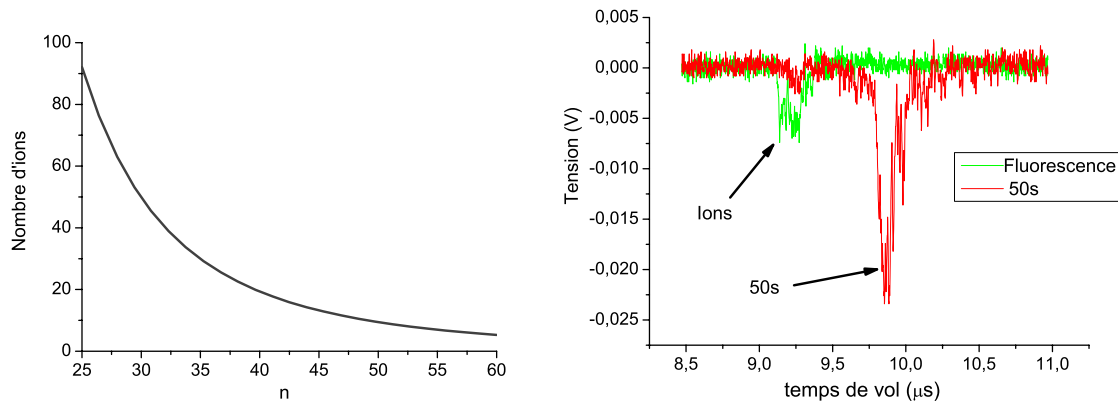
Etudions à présent la possibilité de former des ions de manière résonante lors d'une excitation pulsée vers des états de Rydberg. L'équation (3.4) est intéressante car elle donne une borne supérieure² du nombre d'ions qu'il est possible de former à deux fois un photon via un niveau résonant après un temps t d'excitation : $N_{ions}(t) < N_2(t)\sigma_I\Phi t$.

Nous évaluons ce nombre pour une excitation pulsée d'atomes de Rydberg en excitation depuis l'état $6p$ avec un laser de longueur d'onde ~ 510 nm (énergie par impulsion $50 \mu J$). Les résultats sont reportés Fig. 3.4(a) en utilisant les sections efficaces évaluées au paragraphe 3.1.1. Moins d'un d'ion est formé par l'intermédiaire d'un niveau Rydberg pour 1000 atomes excités dans cet état.

En fait, les ions formés lors de cette excitation pulsée proviennent principalement de la fluorescence, ou plus exactement de l'émission spontanée amplifiée. Le spectre d'émission du colorant utilisé est en effet large et toute une plage du spectre de fluorescence est de fréquence

²Il est supposé aussi une variation monotone croissante du nombre d'atomes excités.

suffisamment élevée pour permettre une ionisation directement à un photon depuis l'état $6p$. Le placement d'un réseau en sortie de cavité pour sélectionner spectralement la longueur d'onde laser et enlever les fréquences optiques trop élevées peut être relativement efficace, comme cela est montré sur la figure 3.4(b). Après écartement de l'ionisation par fluorescence, il demeure un faible taux d'ionisation que l'on peut attribuer à des collisions froides et que nous étudierons ultérieurement. La configuration expérimentale utilisée pour la Fig. 3.4(b) n'est pas particulièrement bonne du point de vue de la fluorescence puisqu'un taux de fluorescence de près de 10% est observé. Dans les expériences, le nombre d'atomes ionisés par fluorescence reste en général inférieur à 2% du nombre d'atomes excités.



(a) Nombre maximum d'atomes ionisés de façon résonante par l'intermédiaire d'un état Rydberg lorsque 100000 atomes ont été excités dans cet état par un laser pulsé de longueur d'onde ~ 510 nm.

(b) Spectres de temps vol (temporellement, le signal de détection électronique correspondant aux ions libres arrive avant le signal correspondant aux atomes de Rydberg). Un des spectres correspond à une excitation hors résonance et sans filtrage spectral (courbe appelée fluorescence) et l'autre à une excitation à résonance (transition $6p \rightarrow 50s$), en présence d'un filtrage spectral de la fluorescence par un réseau.

FIG. 3.4 – Ions créés par le laser colorant pulsé en excitation directe des atomes de Rydberg depuis l'état $6p$.

3.1.3 Photoionisation par le laser continu Ti:Sa

Nous revenons dans ce paragraphe à la deuxième source importante d'ions dans l'excitation PC (cf schéma 2.16), l'ionisation directe des atomes présents dans l'état $7p$ par le laser Ti:Sa.

Le nombre d'ions après un temps t d'excitation est³ :

$$N_{ions}(t) = \frac{\sigma_I \Phi}{\gamma_{7p} + \sigma_I \Phi} n_{7p}(0) (1 - e^{-\gamma_{7p} t}) \quad (3.5)$$

Le flux $\Phi = \frac{P_{TiSa}}{\pi \omega_{TiSa} h \nu_{TiSa}}$, est évaluée pour l'intensité "moyenne" $\frac{P_{TiSa}}{\pi \omega_{TiSa}}$ ($P_{TiSa} = 200$ mW et $\omega_{TiSa} \sim 200 \mu\text{m}$). $n_{7p}(0)$ est le nombre d'atomes initialement excités dans l'état $7p$ par le laser pulsé. Avec ces hypothèses, nous voyons sur la Fig. 3.5 qu'après 300 ns d'excitation, un nombre conséquent d'ions est formé, jusqu'à quelques milliers, ceci en accord avec les expériences.

³Il est supposé que des équations de taux donnent aussi le bon nombre d'ions excités en excitation continue.

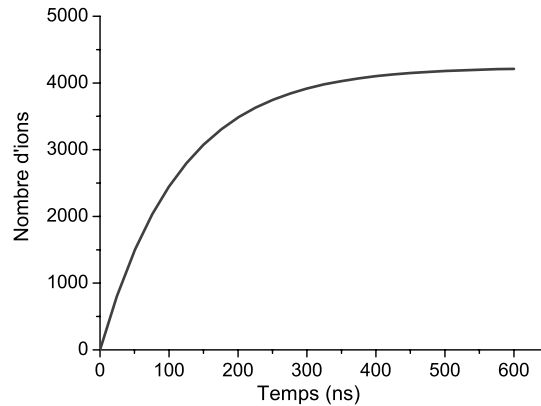


FIG. 3.5 – Nombre d'ions formés en excitation directe de l'état $7p$ par le laser Ti:Sa (waist de $200 \mu\text{m}$ et $P_{\text{Ti:Sa}} = 200 \text{ mW}$). Il est supposé que 10^7 atomes sont excités dans l'état $7p$, ce qui est raisonnable compte-tenu de la saturation extrêmement rapide de l'excitation avec le laser pulsé. La courbe présentée est théorique, mais correspond aux observations expérimentales.

En conclusion, les ions créés dans le schéma d'excitation PC proviennent principalement d'une ionisation par l'intermédiaire du niveau $7p$ résonant lors de l'excitation de l'état $7p$ avec le laser à colorant pulsé. Une deuxième source d'ions dans ce schéma d'excitation correspond à la possibilité d'ioniser les atomes dans l'état $7p$ directement à un photon avec le laser Ti:Sa. Le problème de la photoionisation se posera essentiellement avec la méthode d'excitation PC. Par contre, le problème ne se posera quasiment pas pour l'excitation à 3 couleurs où la formation d'ions sera essentiellement due aux collisions froides.

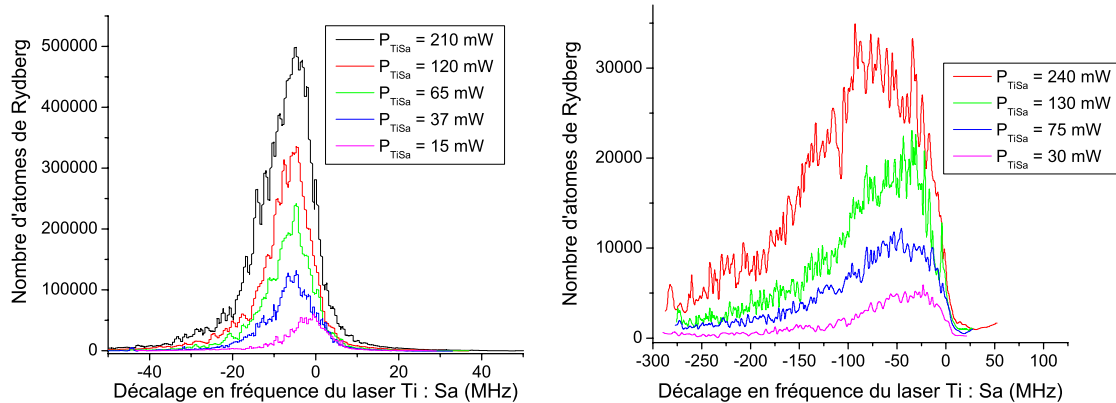
3.2 Suppression de l'excitation Rydberg en présence d'ions

3.2.1 Elargissements de raie

Les élargissements de raie sont très différents suivant la valeur du champ électrique externe. L'explication en a été donnée au chapitre 2.3.3.3. Pour les états ayant un défaut quantique non nul, la dépendance du décalage Stark avec le champ électrique est quadratique à champ électrique faible mais linéaire à champs plus élevés (voir Fig. 2.18 p. 93). Ainsi, pour les états np du césium, les raies sont élargies vers le rouge en champ nul ou faible et de façon symétrique à champs plus élevés.

Les résultats que l'on obtient en champ nul sont résumés par les Fig. 3.6 et 3.7 pour l'état $37p_{3/2}$ pour différents nombres d'ions et un temps d'excitation d'environ 400 ns avec le laser Ti:Sa (allumé juste après l'excitation pulsée dans l'état $7p$). La principale source d'élargissement provient des ions créés par le laser pulsé. L'augmentation d'un ordre de grandeur des largeurs des spectres en champ nul entre les Fig. 3.6(a) et 3.6(b) est expliquée par une variation d'un facteur 3 sur le nombre d'ions (~ 3000 et ~ 10000 pour des puissances de 4.5 et 15 μJ respectivement). L'augmentation du nombre d'ions fait chuter l'excitation Rydberg et peut mimer un effet de blocage dipolaire de l'excitation (le nombre d'atomes excités dans l'état $7p$ varie très peu en régime d'excitation saturée entre les courbes 3.6(a) et 3.6(b), mais le nombre d'atomes excités dans l'état Rydberg chute d'un facteur 10). Pour une puissance donnée du laser pulsé, un élargissement en fonction de la puissance du laser Ti:Sa est également visible Fig. 3.6(b), dû à la photoionisation induite par le laser Ti:Sa (l'élargissement par puissance est

aussi présent mais beaucoup plus faible que l'élargissement par champ électrique inhomogène dû aux ions, comme nous l'avons vu au chapitre 2.3.3.3, p. 90).



(a) $P_P = 4.5 \mu\text{J}$. P_{TiSa} varie de 15 à 210 mW.

(b) $P_P = 15 \mu\text{J}$. P_{TiSa} varie de 30 à 240 mW.

FIG. 3.6 – Spectres de l'état $37p_{3/2}$ en champ nul pour différentes puissances du laser pulsé (P_P) et différentes puissances du laser Ti:Sa (P_{TiSa}).

L'effet d'élargissement est encore plus net en champ électrique. Des spectres caractéristiques en champ électrique (5.7 V/cm) obtenus en excitation de l'état $37p_{3/2}$, $|m_j| = 1/2$ pour différentes énergies d'impulsion du laser pulsé (donc différents nombre d'ions) sont présentés Fig. 3.7(a). L'élargissement est très grand dès une faible énergie d'impulsion et atteint près de 500 MHz pour $15 \mu\text{J}$. L'évolution des largeurs à mi-hauteur des spectres de différents états $np_{3/2}$ est donnée sur la Fig. 3.7(b). Alors que le nombre d'ions est très faible (< 500) et ne permet pas d'observer un élargissement en champ nul, l'élargissement en champ électrique est important, jusqu'à 70 MHz pour l'état $40p_{3/2}$ pour un champ de quelques V/cm. Seule est présentée Fig. 3.7(b) la zone dans laquelle le décalage Stark varie de manière quadratique, ce qui explique la variation d'abord quadratique des largeurs de raie. Nous avons en effet précisé p. 91 et 92 que l'élargissement en champ nul (ou très faible) est de la forme $\Delta E = -\frac{1}{2}\alpha(\Delta F)^2$, où ΔF est le champ inhomogène créé par les ions. α est la polarisabilité et varie comme n^7 , ce qui explique que les élargissements sont fortement croissants en fonction de n .

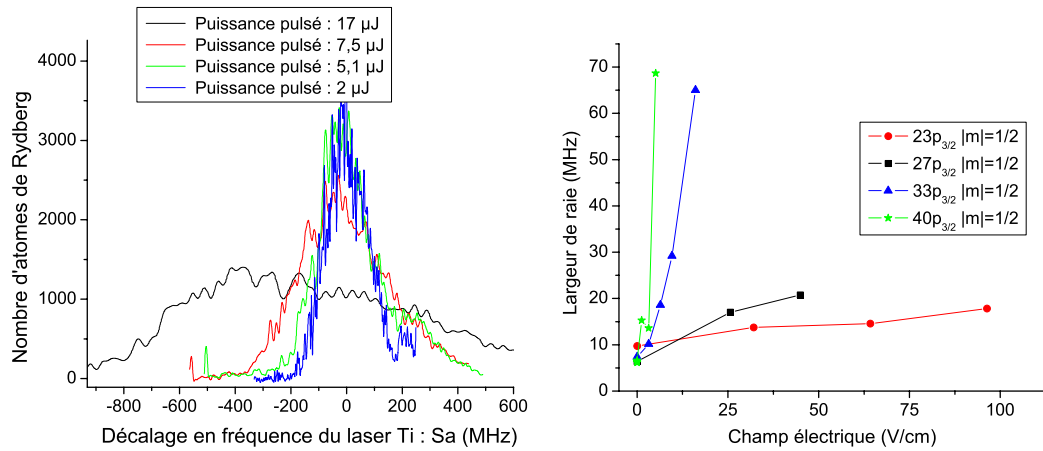
3.2.2 Spectroscopie Rydberg en présence de champs électriques importants

Dans la section précédente, nous n'avons pas mentionné d'effets possibles de mouvement des porteurs de charge pendant l'excitation. Pourtant, l'accélération par le champ externe et l'explosion coulombienne peuvent conduire à un mouvement d'ensemble des ions pendant l'excitation et ceci a une influence sur la forme des raies.

L'accélération par un champ externe et uniforme déplace les ions dans l'axe du champ électrique (cf Fig. 3.8). Après un temps t , les ions ont parcouru la distance⁴ $Z(t) = \frac{1}{2} \frac{U_0 q_i}{dm} t^2$, U_0 étant la tension appliquée entre les grilles séparées d'une distance $d=1.575$ cm, q_i et m sont respectivement la charge et la masse d'un ion.

Pour un nuage d'ions représenté par une distribution d'ions à symétrie sphérique $\rho(r)$, le

⁴Il est supposé que la vitesse initiale des ions est nulle.



(a) Spectres de l'état $37p_{3/2}$ pour différentes puissances du laser pulsé pour un champ électrique de 5.7 V/cm.

(b) Largeurs à mi-hauteur des spectres d'excitation de différents états $np_{3/2}$ en fonction du champ électrique.

FIG. 3.7 – Elargissement de spectres en présence d'un champ électrique externe.

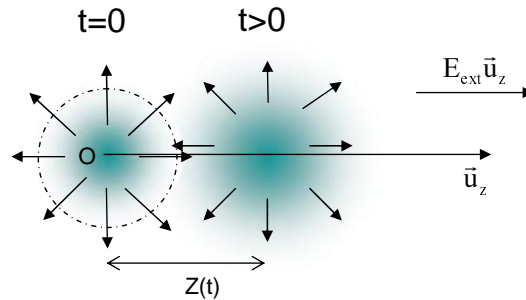
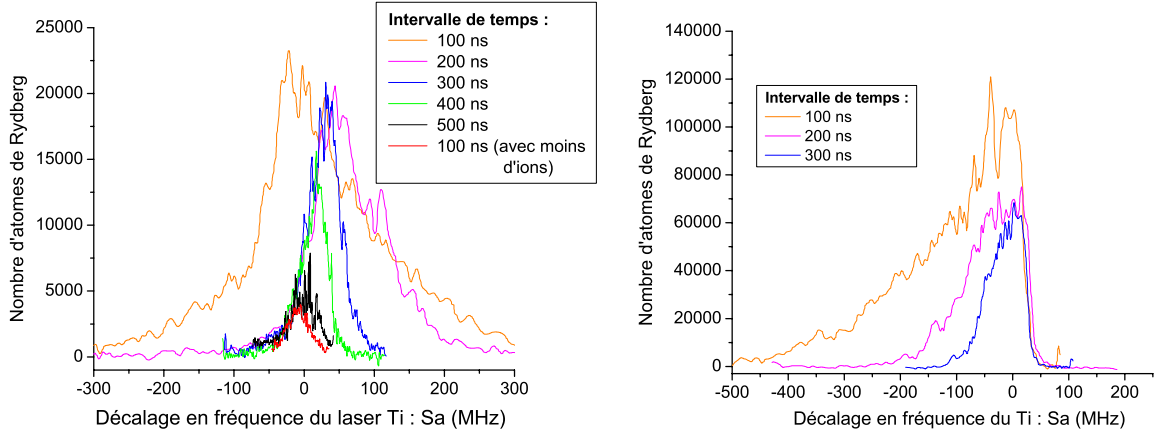


FIG. 3.8 – Nuage d'ions en expansion. Une fois le nuage déplacé par le champ extérieur, le champ radial créé par les ions s'oppose au champ externe au niveau du PMO (représenté par le cercle pointillé).



(a) Excitation de l'état $23p_{3/2}$ en champ électrique (127 V/cm). Le Laser Ti:Sa (waist $160 \mu\text{m}$ et puissance ~ 200 mW) est branché à délais variables par rapport au laser pulsé (100, 200, 300 et 400 ns) pendant 50 ns. Un spectre obtenu avec très peu d'ions est superposé à ces différents spectres.

(b) Excitation de l'état $23p_{3/2}$ en champ électrique nul. Le Laser Ti:Sa (waist $160 \mu\text{m}$ et puissance ~ 200 mW) est branché à délais variables par rapport au laser pulsé (0,100 et 200 ns) pendant 50 ns.

FIG. 3.9 – Spectres d'excitation de l'état $23p_{3/2}$ permettant de sonder la présence et la dynamique des champs inhomogènes créés par les ions.

champ électrique à symétrie sphérique $E(r)\vec{u}_r$ créé en \vec{r} est d'amplitude $E(r)$:

$$E(r) = \frac{\int_0^r \rho(r') 4\pi r'^2 dr'}{4\pi\epsilon_0 r^2} \quad (3.6)$$

Comme le montre la Fig. 3.8, d'un côté du PMO, le champ parasite créé par les ions s'oppose au champ externe alors que de l'autre côté, il s'y ajoute, d'où les élargissements spectraux mentionnés au paragraphe précédent.

En excitation PC, les temps d'excitation sont limités par la durée de vie de l'état $7p$ ($\tau_{7p_{3/2}} \sim 116$ ns) à au plus quelques 400 ns. Cependant, un champ externe fort peut déplacer le nuage d'ions pendant ce temps (pour une tension de 200 V, ce déplacement est de $415 \mu\text{m}$ en 300 ns, $737 \mu\text{m}$ en 400 ns). Les ions se déplacent dans la direction du champ électrique et tendent d'abord à créer un champ parasite s'opposant au champ électrique externe puis s'éloignent. En champ fort, les raies sont déplacées vers le bleu de la transition lorsque l'effet Stark est négatif (cas des états $np_{3/2}$). Les spectres de la figure 3.9(a), correspondant à l'excitation de l'état $23p_{3/2}$ pendant 50 ns toutes les 100 ns pour une tension de 200 V illustrent bien la dynamique des ions sous l'action d'un champ externe. L'excitation pendant un temps très court (50 ns) permet de sonder la distribution des champs électriques dans la région du PMO due à la présence d'ions parasites (ayant dans ce cas pour origine le laser pulsé principalement).

3.2.3 Spectroscopie Rydberg en présence d'un nuage d'ions en expansion

Les spectres Rydberg ont déjà été utilisés comme un moyen de sonder les champs électriques parasites, et notamment pour caractériser l'expansion d'un nuage d'ions sous l'effet de l'explosion coulombienne [Dutta et al., 2000]. Lorsque le nombre d'ions devient important,

le nuage tend à exploser sous l'effet des forces électrostatiques entre les différents ions et la densité d'ions au centre du nuage diminue rapidement. Pour un nuage d'ions à symétrie sphérique, l'accélération que subit un ion placé en $\vec{r}(t) = (r(t), \Theta(t), \phi(t))$ est donnée par la relation fondamentale de la dynamique, se réduisant à une équation radiale dans notre cas⁵ :

$$\frac{D^2 r}{Dt^2} = \frac{e^2 N(r)}{mr^2} \quad (3.7)$$

La dérivée est donc proportionnelle au nombre d'ions présents $N(r(t))$ à l'intérieur de la boule de rayon $r(t)$. La résolution complète d'un tel problème se fait de manière numérique [Dutta et al., 2000].

Néanmoins, une approche analytique développée dans [Kaplan et al., 2003] et reprise dans l'annexe B permet de retrouver avec une bonne approximation les résultats numériques. Cette méthode suppose simplement que le nombre d'ions $N(r(t))$ à l'intérieur de la boule de rayon $r(t)$ est constant, i.e. $N(r(t)) = N(r(0))$. Les ions empruntant une même trajectoire sont supposés ne pas pouvoir se dépasser l'un l'autre. Cette hypothèse n'est valide qu'à temps courts (ou densités faibles), mais suffisamment longs pour décrire correctement l'excitation Rydberg en présence d'explosion coulombienne dans notre expérience. Le modèle d'excitation est décrit au paragraphe 3.3.

3.2.4 Spectroscopie Rydberg en présence d'un plasma

La présence d'électrons peut minimiser l'effet de l'explosion coulombienne du nuage d'ions. L'expansion d'un plasma est en effet plus faible. Pour un plasma neutre, elle est simplement gouvernée par la pression cinétique des électrons sur les ions. Un tel plasma peut se former lorsque le nombre d'ions est suffisant pour piéger des électrons. Cette affirmation est explicitée dans le paragraphe suivant, avant l'étude des formes de raie proprement dites.

Après photoionisation des atomes de césium, les électrons acquièrent une énergie cinétique ΔE_{ph} donnée en première approximation par :

$$\Delta E_{ph} = k_B T_{ph} = h\nu - hc \frac{R_y}{(n^*)^2} \quad (3.8)$$

Où T_{ph} définit une *pseudo-température de photoionisation*, $\frac{R_y}{(n^*)^2}$ est l'énergie de liaison d'un atome de Rydberg (exprimée en m^{-1}).

La température de photoionisation T_{ph} est élevée (sauf pour une excitation quasiment au seuil d'ionisation), près de 20000 K pour une photoionisation avec le laser pulsé. Dans ce cas, l'électron s'éloigne très rapidement de l'ion après photoionisation et quitte la zone d'interaction du PMO (en quelques nanosecondes), ne restant ainsi que l'ion. L'électron s'échappe à la condition toutefois que la charge d'espace créée par l'ensemble des ions isolés et présents dans la zone du PMO soit insuffisante pour le piéger. En première approximation, l'électron est au contraire piégé si l'énergie totale (somme des énergies cinétique ΔE_{ph} et potentielle d'interaction avec tous les ions) est négative, soit pour un électron au centre du nuage d'ions :

$$\Delta E_{ph} + \int_0^\infty \frac{-q^2}{4\pi\epsilon_0 r} n_i(r) 4\pi r^2 dr < 0 \quad (3.9)$$

⁵La vitesse initiale est supposée nulle (ou tout au moins radiale), la symétrie sphérique est donc conservée.

Pour une distribution d'ion gaussienne $n_i(r) = \frac{N_i}{(2\pi\sigma^2)^{3/2}} e^{-\frac{r^2}{2\sigma^2}}$ (de rayon caractéristique σ à $1/\sqrt{e}$), la condition de piégeage de l'électron s'exprime par :

$$N_{th} = \frac{\Delta E_{ph}}{\sqrt{\frac{2}{\pi} \frac{e^2}{\sigma}}} \quad (3.10)$$

où N_{th} est le nombre d'ions à partir duquel un premier électron peut être piégé. Ce nombre est de seulement 4000 pour l'excitation pulsée pour un nuage d'extension caractéristique $300 \mu\text{m}$. A partir de ce seuil de nombre d'ions, la photoionisation d'autres atomes entraîne le piégeage des électrons. Il se forme ainsi un plasma.

Le premier plasma obtenu par photoionisation d'atomes ultra-froids a été réalisé par photoionisation d'atomes froids de xénon [Killian et al., 1999]. La température des ions juste après l'excitation est très faible (celle des atomes avant l'ionisation). Par contre, les électrons peuvent avoir des températures d'agitation thermique importantes, dépendant principalement de la température de photoionisation. L'étude plus détaillée des propriétés du plasma et de la possibilité de le refroidir est présentée au chapitre 6. Dans cette section, nous sommes intéressés par l'effet de cette dynamique sur les formes de raie d'excitation Rydberg. L'expansion de tels plasmas est rapide sous les effets conjugués de la pression cinétique des électrons et de l'explosion coulombienne (il existe toujours un défaut d'électrons dû ne serait-ce qu'à l'effet de seuil ou à un phénomène d'évaporation).

Expérimentalement, nous avons sondé la distribution du champ électrique en faisant une excitation courte avec le laser Ti:Sa (50 ns) décalée dans le temps par rapport à l'excitation avec le laser pulsé (cf Fig. 3.9(b)), en champ nul. L'élargissement des spectres diminue rapidement en fonction du délai entre les deux excitations, dénotant une expansion très rapide : en moins de 500 ns, l'ensemble des charges disparaît de la zone d'interaction du PMO.

L'étude de ces courbes devrait permettre de mesurer les nombres d'ions ou le défaut du nombre d'électrons par rapport au nombre d'ions d'un plasma et les vitesses d'expansion. Les formes de raie, notamment en présence d'un plasma sont étudiées depuis longtemps en astrophysique. Une étude exhaustive de cet élargissement dans un plasma peut se trouver dans le livre [Griem, 1974], résumée dans [Sobel'man, 1972], paragraphe 38. Dans un plasma neutre (ou de grande dimension), il est causé par les microchamps créés par les ions (le champ moyen est nul) et par les collisions électrons-atomes. Dans les plasmas chauds, ces deux phénomènes d'élargissement peuvent être découplés, les ions étant considérés comme peu mobiles, au contraire des électrons (les plasmas étudiés ici sont relativement chauds, avec une température de l'ordre de 20000 K). La contribution principale provient alors des ions [Romanovsky and Ebeling, 2006, Griem, 1974]. La fonction de répartition $f(E)$ des microchamps électriques créés par les ions, dite distribution de Holtsmark⁶ suit une loi établie au début du siècle dernier pour les études de spectres en présence d'ions [Sobel'man, 1972, Lewis and Margenau, 1958, Romanovsky and Ebeling, 2006] :

$$f(E) = \frac{2}{\pi E} \int_0^\infty x \sin x \exp \left[- \left(\frac{x E}{E_0} \right)^{3/2} \right] dx \quad (3.11)$$

⁶Voir [Romanovsky and Ebeling, 2006] pour une revue complète des distributions possibles des microchamps électriques. La loi de Holtsmark est établie en supposant qu'il n'existe pas de corrélation de position entre les ions. Alors que dans un plasma fortement corrélé, cette approximation est fautive, elle sied parfaitement à notre cas. Cela est d'autant plus vrai que juste après photoionisation, il n'existe aucune corrélation de position entre les différents ions. La distribution de Holtsmark établit la statistique des microchamps possibles en un point de champ moyen nul, créés par un ensemble d'autres ions distribués aléatoirement dans un volume \mathcal{V} , et fixes en position.

E_0 est une constante dépendant de la densité n_i : $E_0 = 2\pi \left(\frac{4}{15}\right)^{2/3} \frac{q}{4\pi\epsilon_0} n_i^{2/3}$. Cette distribution est nulle pour $E = 0$ et $E \rightarrow \infty$ et présente un maximum pour $E \sim 1.607E_0$.

De tels microchamps peuvent être importants ($E_0 = 0.26$ V/cm pour un nuage d'ions de densité $n_i = 10^8$ at/cm⁻³, 5.81 V/cm pour $n_i = 10^{10}$ at/cm⁻³). Dans un nuage ionique de forme gaussienne, ils sont négligeables en comparaison du champ moyen (maximum) par plus d'un ordre de grandeur. Par contre, pour un plasma, le champ moyen créé par les ions est plus faible du fait de la présence des électrons. Champs moyen et local sont du même ordre de grandeur lorsque le défaut d'électrons est d'environ 10%. Le fait que la fonction de répartition $f(E)$ diminue lentement à champs élevés, en $(E/E_0)^{-5/2}$ ($f(5E_0) \approx 0.1f(1.607E_0)$ par exemple), pourrait rendre possible l'observation de ces microchamps sur les ailes des raies d'excitation. Nous allons voir dans la section suivante que les élargissements en présence d'ions uniquement (plasmas à une composante) sont relativement aisés à modéliser. Par contre, le calcul des formes de raie en présence d'un plasma, qui plus est en rapide expansion comme sur la figure 3.9(b), est plus compliqué et toujours en cours. L'importance des microchamps devra être particulièrement étudiée. Un sujet d'étude très intéressant sera sans doute la spectroscopie en présence d'un plasma très froid (température des électrons inférieure à 100 K) car il semble alors que les électrons peuvent jouer un plus grand rôle et peuvent conduire à un élargissement important des raies [Gigosos et al., 2006].

3.3 Modélisation de la dynamique des élargissements de raie

Le modèle utilise une approche perturbative et simplifiée, basée essentiellement sur des équations de taux. Nous allons voir que cette approximation est cependant relativement bonne pour décrire l'excitation en présence d'ions.

3.3.1 Calculs des formes de raie

Equations de taux

En se limitant à une description par équations de taux, la densité d'atomes dans l'état Rydberg $n_2(\vec{r}, t)$ est reliée à la densité d'atomes dans l'état $7s$, $n_1(\vec{r}, t)$, par :

$$\frac{dn_2(\vec{r}, t)}{dt} = g(\nu, \vec{r})n_1(\vec{r}, t) \quad (3.12)$$

Le terme $g(\nu, \vec{r})n_1(\vec{r}, t)$ décrit l'absorption par le laser Ti:Sa. Dans ce modèle à 2 niveaux, $g(\nu, \vec{r}) = B\varphi(\nu)\omega(\vec{r})$, où $\omega(\vec{r}) = \epsilon_0 \mathcal{E}(\vec{r})^2/2$ est la densité volumique d'énergie, $B\omega(\vec{r}) = \frac{\Omega(\vec{r})^2}{4}$ avec B le coefficient d'absorption d'Einstein et $\varphi(\nu) = \frac{1/\gamma_{7s}}{1 + (\frac{2\pi(\nu - \nu_0)}{\gamma_{7s}/2})^2}$ est le profil de raie normalisé tenant compte du décalage à résonance. Le couplage avec le laser Ti:Sa étant considéré de manière perturbative, le terme d'émission stimulée $-g(\nu, \vec{r})n_2(\vec{r}, t)$ est négligé et $n_1(\vec{r}, t)$ est supposée inchangée par rapport à la formule suivante établie au chapitre (2.3.1) en l'absence du laser Ti:Sa :

$$n_1(\vec{r}, t) = n_{7p}(0) \frac{\gamma_1}{\gamma_{7s} - \gamma_{7p_{3/2}}} (e^{-\gamma_{7p_{3/2}}t} - e^{-\gamma_{7s}t}) \quad (3.13)$$

où $n_{7p}(0)$ est la densité d'atomes initialement excités dans l'état $7p$, γ_1 le taux de transfert radiatif vers l'état $7s$.

L'hypothèse de faible couplage revient à supposer $\rho_{22} \ll \rho_{11}$ dans le modèle des équations de Bloch optiques (2.9). Cette hypothèse n'est pas valide à temps longs devant la durée de vie du

niveau $7p$ (dans ce cas, la raie n'est plus du tout lorentzienne et le niveau Rydberg se vide). Nous supposons que les temps d'excitation sont suffisamment courts, toutefois suffisamment longs pour avoir négligé les cohérences dans l'expression (3.12) ($g(\nu)$ s'obtient simplement à partir des équations de Bloch optiques (2.9) en supposant que les cohérences sont nulles : $\dot{\rho}_{12} = \dot{\rho}_{21} = 0$).

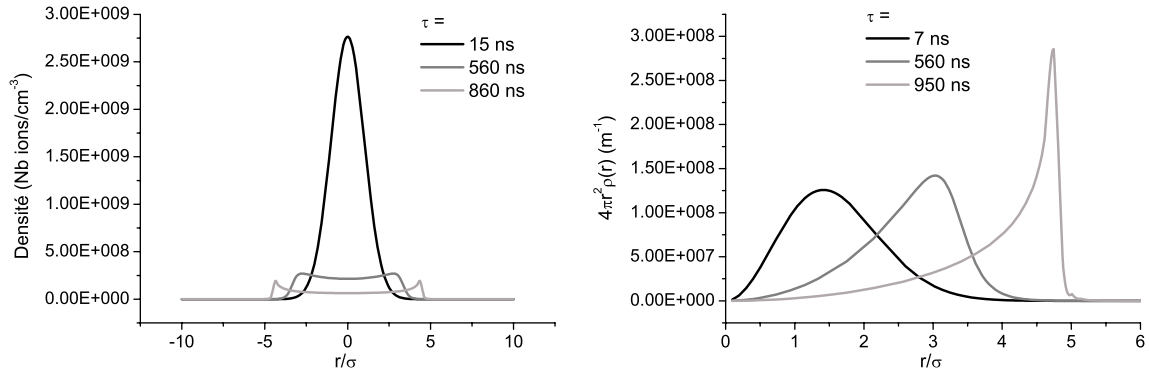
En pratique, les puissances utilisées sont assez élevées. L'hypothèse perturbative ne devrait pas s'appliquer. Pour des plus fortes puissances, les raies sont élargies à temps courts (cf Fig. 2.15 p. 90), et conservent un profil proche d'une lorentzienne. Nous supposons que l'expression (3.12) reste valide en écrivant $\varphi(\nu) = \frac{1/(2\pi\Delta\nu)}{1+(\frac{\nu-\nu_0}{\Delta\nu/2})^2}$, où $\Delta\nu$ est la largeur à mi-hauteur du profil de raie. Les largeurs de raie en présence d'ions sont beaucoup plus grandes et dépendent peu de $\Delta\nu$, finalement choisie égale à 6 MHz.

En présence d'une distribution dynamique d'ions, la fréquence centrale de la transition $\nu_0(\vec{r}, t)$ est modifiée au cours du temps par effet Stark, elle dépend de l'amplitude du champ électrique local $E(r, t)$. Le coefficient d'absorption g dépend donc du temps. Le nombre d'atomes excités dans un état Rydberg après un temps d'excitation t en présence d'ions est donné par l'intégrale de l'équation (3.12) sur le temps et sur le volume du PMO \mathcal{V} :

$$N_{Ryd}(t, \nu) = \int_{\mathcal{V}} d^3\vec{r} \int_0^t dt' g(\nu, \vec{r}, t') n_1(\vec{r}, t') \quad (3.14)$$

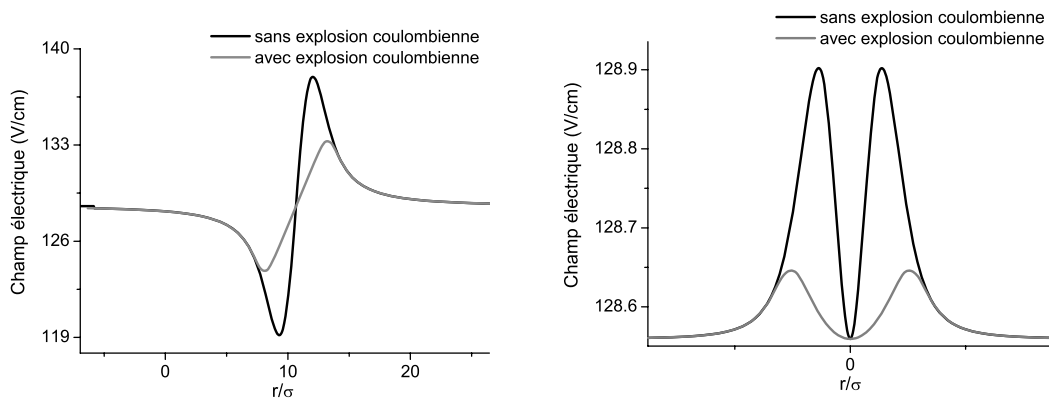
Distribution des champs électriques en présence d'explosion coulombienne

La détermination de la fréquence centrale de la transition $\nu_0(\vec{r}, t)$ nécessite de déterminer l'évolution du champ électrique au niveau de chacun des atomes en fonction du temps. L'explosion coulombienne (décrite au paragraphe 3.2.3) se caractérise par un mouvement centrifuge des ions décrit par l'équation (3.7) et résolu dans l'annexe B. A ce mouvement se superpose le mouvement d'ensemble sous l'effet du champ externe (les deux mouvements sont découplés et sont traités séparément). Les distributions spatiales des ions et du champ électrique sont représentées Fig. 3.10 et 3.11 pour un champ externe nul à différents temps.



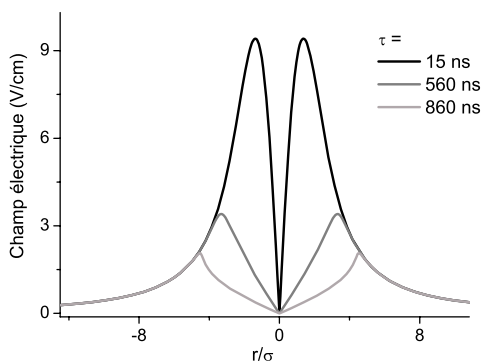
(a) Profil de la densité d'ions le long de l'axe z $\rho(z)$. (b) Nombre d'ions par unité de longueur $4\pi r^2 \rho(r)$ à une distance r du centre du nuage.

FIG. 3.10 – Profils de densité d'ions après différents délais d'expansion τ pour un nuage de départ gaussien (rayon caractéristique $70 \mu\text{m}$ et nombre d'ions 15000) et sans champ électrique externe.



(a) Amplitude du champ électrique total suivant l'axe (Oz) en présence d'un champ électrique de 127 V/cm suivant cette axe, après 400 ns. Les deux distributions de champ, avec et sans prise en compte de l'explosion coulombienne, sont comparées.

(b) Amplitude du champ électrique total suivant un axe perpendiculaire à (Oz) en présence d'un champ électrique de 127 V/cm suivant l'axe (Oz), après 400 ns. Les deux distributions de champ, avec et sans prise en compte de l'explosion coulombienne, sont comparées.



(c) Amplitude du champ électrique en champ externe nul, suivant un axe méridien.

FIG. 3.11 – Distribution spatiale de l'amplitude du champ électrique, après différents délais d'expansion τ pour un nuage de départ gaussien (rayon caractéristique $70 \mu\text{m}$ et nombre d'ions 15000), avec et sans champ électrique externe. On remarquera la différence d'amplitude entre les courbes (b) et (c).

Au départ, le nuage d'ions est gaussien. La fonction de distribution radiale des ions $4\pi r^2 n_i(r, t = 0)$ admet un maximum pour $r_{max} = \sqrt{2}\sigma$, le champ électrique admet aussi un maximum pour $r \approx \sqrt{2}\sigma$ égal à $E_{max} \approx 2.38 n_i(0, 0)\sigma\sqrt{2}\frac{q_i}{4\pi\epsilon_0}$. L'accélération des ions (proportionnelle au champ électrique) est plus faible à la périphérie du nuage, ceux-ci sont donc rejoints après un certain temps par des ions situés au départ plus à l'intérieur du nuage. Une onde de choc se produit conduisant à la formation d'un pic dans la distribution d'ions ("ion spike") et dans la distribution du champ électrique. En présence d'un champ électrique externe dirigé suivant (Oz), le nuage d'ions en expansion se déplace. Le champ résultant, $\vec{E} = E_z\vec{u}_z + E_\rho\vec{u}_\rho$ est la somme d'un champ radial et d'un champ longitudinal représentés sur la Fig. 3.11. Cette approche ne tient compte que du champ moyen (les distributions d'ions sont continues). Au paragraphe 3.2.3, nous avons discuté le fait qu'au centre du nuage du nuage d'ions, la fonction de répartition des microchamps électriques est décrite par la distribution de Holtsmark. Elle ne concerne cependant qu'un petit nombre d'ions, les autres voyant un champ moyen beaucoup plus grand. Cette description est bien adaptée au cas d'ions formés par le laser pulsé, mais pas au cas d'ions formés en continu pendant l'excitation par le laser Ti:Sa. Nous discutons plus avant ce cas au paragraphe 3.3.3.

3.3.2 Photoionisation préalable à l'excitation

Les formes de raie sont calculées pour une expérience similaire à l'expérience présentée Fig. 3.9. Expérimentalement, un nombre d'ions important est créé, ~ 20000 , avec le laser pulsé, dans un volume d'excitation cylindrique (le waist du laser est d'environ $140 \mu\text{m}$). Après un délai variable, le laser Ti:Sa (axe de propagation confondu avec celui du laser pulsé) est allumé pendant 50 ns typiquement et permet l'excitation de l'état $23p_{3/2}$ (pour un champ de 127 V/cm). La photoionisation par le laser Ti:Sa peut être considérée comme négligeable pendant un temps si court et le calcul des distributions de champ du paragraphe précédent est bien adapté. Les résultats du calcul sont superposés aux résultats expérimentaux sur la figure 3.12.

Le calcul est en bon accord avec l'expérience. Différents points sont à mentionner concernant ce calcul. L'excitation par le laser pulsé est fortement saturée, le volume d'excitation des atomes dans l'état $7p$ est donc mal connu (ce n'est pas le cas du nuage d'ions car en régime fortement saturé, il est simplement proportionnel au flux du laser pulsé). Un rayon caractéristique $\sqrt{2}$ fois plus grand qu'en régime non saturé semble être une bonne valeur. L'hypothèse d'un nuage gaussien pose problème car l'excitation se fait suivant un cigare. Ceci conduit à trouver par le calcul un nombre d'ions bien plus petit que par l'expérience, ~ 2000 au lieu de 20000. En supposant un PMO gaussien de rayon caractéristique $350 \mu\text{m}$, le nombre d'ions calculé serait proche de 10000. La mesure n'est pas précise à mieux qu'un facteur 2, le nombre calculé est donc raisonnable. A noter que l'explosion coulombienne est ici prise en compte, mais avec 2000 atomes, elle ne conduit qu'à une diminution du champ électrique maximum d'un facteur $1/5$ après 300 ns (la diminution serait d'un facteur 2 avec 10000 ions). Enfin, un décalage $z_d = 60 \mu\text{m}$ en position des deux lasers est pris en compte (le décalage vers le rouge de la raie à temps nul est justifié par un tel décalage en position).

3.3.3 Photoionisation au cours de l'excitation

La dynamique des ions en présence d'une source d'ionisation continue (en l'occurrence le laser Ti:Sa) est plus délicate à calculer. Pour simplifier, le champ électrique est évalué sans prendre en compte le phénomène d'explosion coulombienne. Dans l'expérience décrite, cette hypothèse est valide car le nombre d'ions reste faible (~ 2000) dans un volume d'excitation

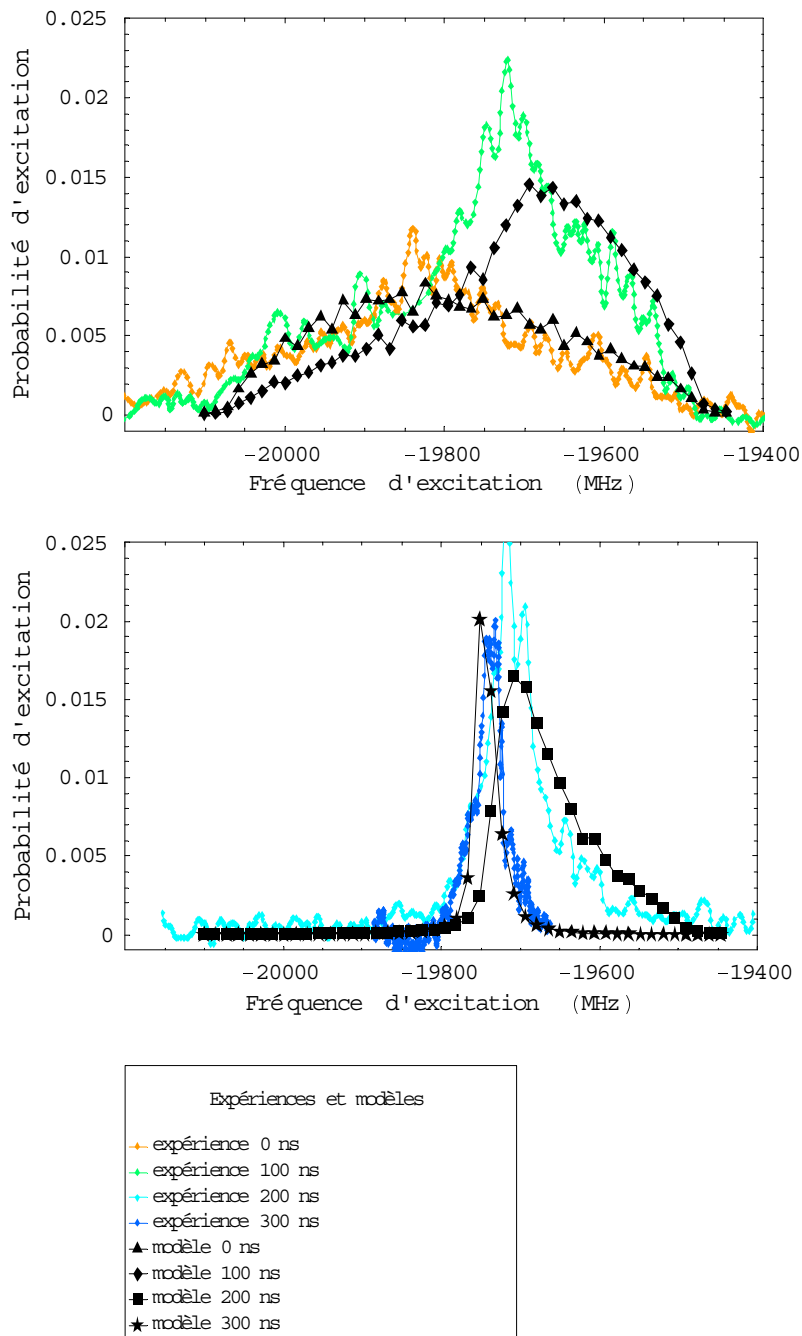


FIG. 3.12 – Excitation de l'état $23p_{3/2}$ en champ électrique (127 V/cm). Le Laser Ti:Sa (waist $160 \mu\text{m}$ et puissance $\sim 200 \text{ mW}$) est branché pendant 50 ns après différents délais par rapport au laser pulsé (0,100, 200 et 300 ns).

relativement grand. Le calcul est détaillé, il utilise tout simplement le principe d'addition des champs électriques. Le champ créé pendant dt par le laser, en supposant le nuage d'ions créé à symétrie sphérique est simplement :

$$\vec{E}(\vec{r}) = q_i \frac{dN_i(r, t)}{4\pi\epsilon_0 r^2} \vec{u}_r \quad (3.15)$$

avec :

$$dN_i(r, t) = \sigma_I \phi dt \int_0^r n_{7p}(r', t) 4\pi r'^2 dr' \quad (3.16)$$

le nombre d'atomes photoionisés dans la boule de rayon de r pendant dt , $n_{7p}(r, t)$ étant la densité d'atomes dans l'état $7p$.

Ce champ est à ajouter aux champs créés aux instants précédents et s'étant déplacés sous l'effet du champ électrique externe (l'expression exacte est développée dans l'annexe B).

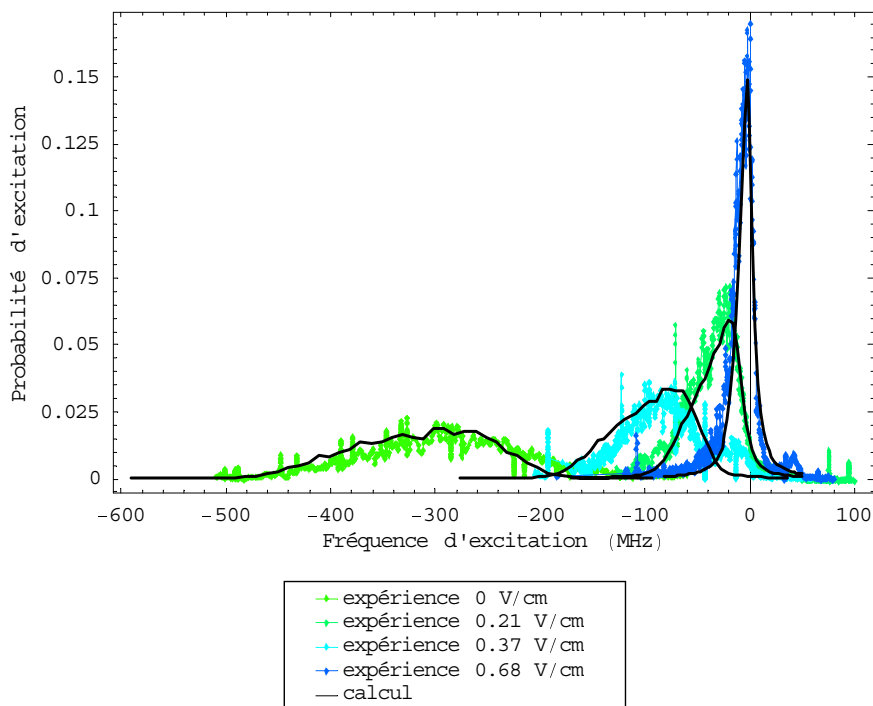


FIG. 3.13 – Spectres d'excitation de l'état $50p_{3/2}$ pour plusieurs champs électriques. Le Laser Ti:Sa (waist $320 \mu\text{m}$ et puissance $\sim 200 \text{ mW}$) est allumé pendant $\sim 300 \text{ ns}$. Le laser pulsé et le laser Ti:Sa sont croisés dans cette expérience.

Le calcul est superposé à l'expérience sur la Fig. 3.13. L'état $50p_{3/2}$ est excité pendant 300 ns par le laser Ti:Sa (puissance 200 mW, les lasers pulsé et Ti:Sa sont croisés et forment un nuage approximativement gaussien de rayon σ) pour différents champs électriques (faibles). Le résultat est bon accord avec l'expérience, pour un nombre d'ions détectés assez proche, $N_i \sim 1800$ (la principale inconnue est le champ parasite maximum déterminant la largeur de raie. Ce champ est proportionnel au rapport $\frac{N_i}{\sigma^2}$, et en l'absence d'une forte mobilité des ions, les formes de raie dépendent uniquement de ce paramètre. L'ajustement permet de trouver un waist d'environ $2\sigma \sim 320 \mu\text{m}$ pour ~ 1800 ions.).

3.4 Conclusion

Des élargissements de raie importants ont été obtenus avec des nombres d'ions relativement faibles. Cet effet est dramatique en présence d'un champ électrique statique. Ce résultat montre l'importance d'éliminer au maximum la présence d'ions pour mettre en évidence le blocage dipolaire. Ce chapitre montre aussi le potentiel que peut présenter une spectroscopie d'états de Rydberg pour analyser un plasma, notamment son expansion. Les formes de raies obtenues en présence d'un plasma sont difficiles à modéliser et demandent une étude approfondie. Cette spectroscopie est probablement très intéressante pour l'étude des plasmas froids, à la fois pour mesurer l'expansion du plasma mais aussi parce qu'il est attendu alors que les formes de raies dépendent de la température des électrons [Gigosos et al., 2006].

Nous revenons maintenant au blocage dipolaire avec une excitation continue permettant d'écartier les problèmes d'ionisation et donc plus adaptée.

Chapitre 4

Blocage dipolaire de l'excitation d'atomes vers des états de Rydberg : Contrôle par champ électrique et par résonance de Förster

4.1 Introduction

Le blocage dipolaire est envisagé comme un moyen de "jouer" avec un ensemble d'atomes lors de leur excitation vers un état de Rydberg. Il devrait permettre de réaliser des portes quantiques, élément de base de ce que pourrait être un ordinateur quantique ou bien d'obtenir des états collectifs ne comprenant qu'un nombre déterminé d'excitations atomiques.

L'utilisation de l'interaction dipôle-dipôle entre atomes de Rydberg pour réaliser une porte quantique de phase conditionnelle (cf paragraphe 1.4.2) a été proposée par [Jaksch et al., 2000]. L'état de Rydberg serait utilisé comme état relais entre les deux états de base d'un atome formant un qubit. L'expérience pourrait être réalisée en champ électrique statique pour générer une interaction dipôle-dipôle forte entre atomes. Les atomes de Rydberg sont en effet connus pour avoir de très grandes polarisabilités ; le champ électrique polarise les atomes grâce au couplage Stark qu'il induit entre états de Rydberg et chaque atome excité dans l'état Rydberg peut alors posséder un très grand dipôle permanent. L'interaction dipôle-dipôle entre atomes est ainsi contrôlée. L'un des modèles proposé par [Jaksch et al., 2000] consisterait à utiliser le blocage dipolaire de l'excitation Rydberg pour un ensemble de deux atomes. Schématiquement, lorsque deux atomes sont assez proches pour interagir via l'interaction dipôle-dipôle, l'excitation d'un des atomes empêche l'excitation suffisamment monochromatique de l'autre atome car l'interaction dipôle-dipôle induit un décalage énergétique de la transition pour le second atome.

Le blocage dipolaire peut aussi être utilisé afin de coder un qubit non pas sur deux états propres d'un seul atome mais sur deux états collectifs d'un ensemble mésoscopique d'atomes [Lukin et al., 2001]. Les deux états de base du qubit sont d'une part un état sans excitation (tous les atomes dans l'état fondamental) et d'autre part un état superposition cohérente d'états ne comportant qu'une seule excitation Rydberg. Aucun état collectif comportant deux excitations Rydberg n'est possible dans une situation de blocage dipolaire idéal. Dans un ensemble "trop" grand d'atomes de Rydberg, un blocage total de l'excitation n'est pas attendu, on attend plutôt une suppression partielle de l'excitation. Ceci est d'autant plus vrai

que l'excitation n'est jamais totalement monochromatique. Un second atome peut être excité si le décalage énergétique dû à l'interaction dipôle-dipôle entre les deux atomes reste plus faible que la largeur spectrale de l'excitation. Une démonstration expérimentale du blocage dipolaire n'avait pas été obtenue jusqu'en 2006. Différentes expériences avaient mis en avant une saturation de l'excitation en raison d'une interaction du type dipôle-dipôle du deuxième ordre [Tong et al., 2004, Singer et al., 2004, Liebisch et al., 2005]. Dans ces expériences, un ensemble d'atomes de Rubidium sont excités chacun dans un état nl pur, en champ électrique nul. Il n'existe pas en champ nul d'interactions de type dipôle-dipôle entre atomes de Rydberg avec une interaction à longue portée $\propto 1/R^3$. Des interactions dipôle-dipôle se manifestent seulement comme une perturbation du deuxième ordre $\propto 1/R^6$. Ces interactions bien qu'à plus courtes portées conduisent également à un blocage local de l'excitation (que nous dénommerons blocage Van der Waals) et limitent l'excitation. L'un des enjeux de nos expériences était l'utilisation de l'interaction dipôle-dipôle du premier ordre en $\propto 1/R^3$ pour augmenter considérablement l'efficacité du blocage de l'excitation.

Diverses expériences de spectroscopie ont caractérisé des propriétés de l'interaction dipôle-dipôle entre atomes de Rydberg, sans qu'elles ne parviennent à montrer l'effet du blocage dipolaire. Notamment, la dépendance angulaire du transfert résonant d'excitation a été étudiée dans la référence [Carroll et al., 2004] lorsque le volume d'excitation des atomes de Rydberg est cylindrique et très allongé : la modification de l'orientation du champ électrique par rapport à l'axe internucléaire le plus probable permet de faire varier l'interaction dipôle-dipôle dans le schéma de transfert résonant de Förster (une variation d'un facteur 4 a été obtenue pour l'efficacité du transfert résonant d'excitation). L'interaction dipôle-dipôle entre atomes de Rydberg excités via une excitation large bande (donc sans blocage) a pu être sondée au moyen d'une excitation microonde [Afrousheh et al., 2004, Li et al., 2005]. Dans [Afrousheh et al., 2004], un échantillon d'atomes dans l'état $45d_{5/2}$ est sondé avec ou sans la présence d'atomes dans l'état $46p_{3/2}$. La présence des atomes dans l'état $46p_{3/2}$ conduit à un élargissement des raies de quelques 50 kHz (les densités sont faibles, $\sim 10^6$ at/cm⁻³, et n est relativement peu élevé, les élargissements observés demeurent donc faibles). L'excitation microonde permet une spectroscopie très précise mais nécessite une première excitation vers l'état Rydberg. Si cette première excitation est pulsée, l'excitation de paires d'atomes relativement proches peut conduire à des collisions ionisantes [Li et al., 2005].

Nos expériences ont permis la mise en évidence du blocage dipolaire dans deux configurations distinctes, avec le schéma d'excitation continue à 3 couleurs, décrit au paragraphe 2.3.3. Dans une première expérience, nous avons tiré parti de l'interaction dipôle-dipôle entre atomes de Rydberg en présence de champ électrique. Une suppression d'excitation par blocage dipolaire pouvant atteindre jusqu'à 60% a été mise en évidence avec l'excitation d'atomes dans des états $np_{3/2}$ avec n relativement élevé, typiquement $50 < n < 120$. Un modèle de champ local développé pour décrire l'excitation d'une assemblée d'atomes en présence d'interaction dipôle-dipôle permet de retrouver les principaux résultats expérimentaux. Dans une deuxième expérience, nous tirons parti de l'interaction dipôle-dipôle à résonance de Förster en utilisant le couplage résonnant entre les états $|np, np\rangle$ et $|ns, (n+1)s\rangle$, possible pour $n < 42$. Les résultats obtenus, publiés dans [Vogt et al., 2006] font état d'un blocage de l'excitation de 30%. Une principale limitation de l'efficacité du blocage dipolaire mise en évidence est la saturation laser par puissance. En effet, elle élargit les raies d'excitation et donc limite la résolution spectrale de l'excitation qui doit être inférieure au décalage dipôle-dipôle pour que le blocage soit efficace. Un autre effet important provient des couplages $|ns, np\rangle \rightarrow |np, ns\rangle$ et $|(n+1)s, np\rangle \rightarrow |np, (n+1)s\rangle$ résonants quelque soit le champ électrique et responsables pour cette raison d'élargissements des raies de résonance en champ électrique, car ils perturbent la

distribution des niveaux d'énergie même pour un champ éloigné de la résonance de Förster.

Ce chapitre est introduit par une description du blocage Van der Waals et des expériences correspondantes. La suite du chapitre est dédiée à l'observation du blocage dipolaire proprement dit. La première description concerne le blocage dipolaire en champ électrique, avec le couplage très fort entre les états np et $(n-1)d$ du césium (décrit dans la section 1.3.2.1). Ensuite sont présentés les résultats du blocage dipolaire à résonance de Förster utilisant le couplage de la réaction $np, np \leftrightarrow ns, (n+1)s$. L'ensemble des résultats expérimentaux et leur analyse sont présentés dans ce chapitre. Les taux d'ionisation sont discutés de manière précise afin de pouvoir écarter l'hypothèse d'un rôle possible du blocage de l'excitation par charge d'espace. Un des points importants déjà mentionnés est la nécessité de rester en deçà de tout effet de saturation par puissance de l'excitation susceptible d'élargir les raies d'excitation.

4.2 Blocage dipolaire du deuxième ordre

4.2.1 Expérience du Connecticut

L'expérience [Tong et al., 2004] est la première ayant mis clairement en évidence une saturation de l'excitation par des interactions entre atomes de Rydberg. Dans cette expérience, des atomes de Rubidium dans un PMO sont excités par absorption d'un photon depuis l'état $5s$ à l'aide d'un laser pulsé monomode fonctionnant dans l'ultra-violet. La largeur de l'impulsion laser est de l'ordre de 100 MHz, quasi limitée par transformée de Fourier, la densité d'atomes dans l'état $5s$ est $\sim 6.5 \times 10^{10}$ at/cm⁻³ et de l'ordre de 20% des atomes peuvent être excités lorsque l'intensité de saturation est atteinte au centre du faisceau gaussien (l'intensité de saturation est définie ici telle que l'atome effectue une transition π).

4.2.1.1 Résultats et interprétation de l'expérience

Le résultat de cette expérience est présentée sur la Fig. 4.1. Pour une excitation de l'état $30p$, le taux d'atomes excités est linéaire en fonction de l'intensité laser. Par contre, dans le cas des états $70p$ et $80p$, l'excitation apparaît comme saturée, avec un blocage de près de 80% pour l'excitation de l'état $80p$.

Cette saturation est attribuée principalement au blocage dû l'interaction Van der Waals. Afin de quantifier cette interaction, il est nécessaire de reprendre les premiers termes du développement multipolaire à l'asymptote $np - np$, entrevu au paragraphe 2.4 :

$$V(R) \simeq -\frac{C_5}{R^5} - \frac{C_6}{R^6} - \frac{C_8}{R^8} \quad (4.1)$$

Ces différents coefficients sont donnés dans l'article [Singer et al., 2005] dérivés des calculs de Marinescu et al. [Marinescu and Dalgarno, 1995, Marinescu, 1997]. Comme nous l'avons précisé au paragraphe 2.4, il existe 12 potentiels dégénérés 2 à 2 reliés à l'asymptote $np - np$ (ces couples ont les mêmes coefficients de dispersion mais la dégénérescence est levée par l'interaction d'échange). Parmi ces couples de potentiels, il existe deux paires de potentiels $^1\Sigma_g^+ - ^3\Sigma_u^+$. Pour l'une d'entre elles, nommée $^1\Sigma_g^+ - ^3\Sigma_u^+(A)$, l'interaction est fortement attractive ($C_6 \sim 2.6 \cdot 10^{22}$ a. u. à l'asymptote $70p - 70p$ d'après [Tong et al., 2004]), le coefficient C_6 est deux ordres de grandeur plus grand que pour les autres potentiels. Pour l'autre, $^1\Sigma_g^+ - ^3\Sigma_u^+(R)$, l'interaction est faiblement répulsive.

Parce que l'excitation des atomes dans le PMO est effectuée depuis l'état $5s$, seulement les états Σ^+ ou Π sont accessibles pour l'excitation de paires d'atomes car les potentiels corrélés à l'asymptote $5s - 5s$ sont les états $^1\Sigma_g^+$ et $^3\Sigma_u^+$, et les règles $+ \leftrightarrow +$, $u \leftrightarrow g$, $\Delta\Lambda = 0, \pm 1$ prévalent

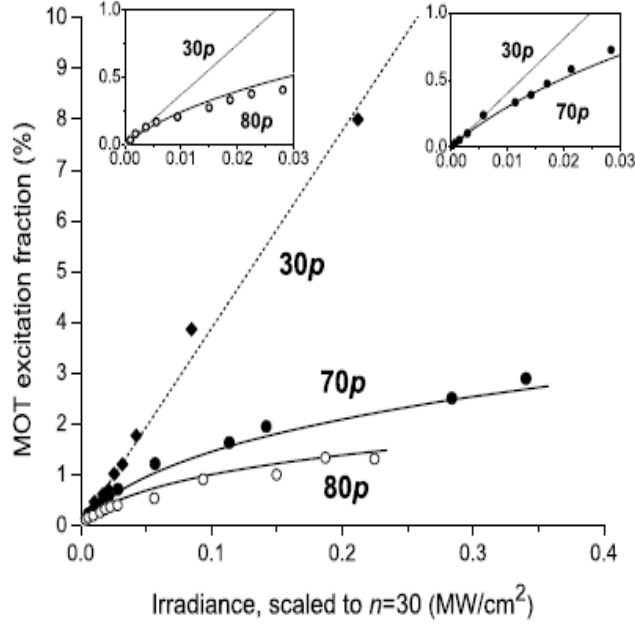


FIG. 4.1 – Figure extraite de l'article [Tong et al., 2004]. Elle présente le pourcentage d'atomes du PMO excités en fonction de l'intensité laser (l'intensité laser I (Irradiance) est redimensionnée pour prendre en compte la variation $\propto I \times (n^*)^3$ du taux d'excitation en l'absence de blocage).

lorsque la description en cas (a) de Hund est valide. En toute rigueur, cette description n'est pas valide du fait de l'interaction hyperfine dans l'état fondamental et en raison de l'interaction spin-orbite dans les états Rydberg. La représentation des fonctions d'ondes [Marinescu, 1997, Singer et al., 2005] correspondant aux potentiels $^1\Sigma_g^+ - ^3\Sigma_u^+(A)$ et $^1\Sigma_g^+ - ^3\Sigma_u^+(R)$ montre que tous deux peuvent être excités, dans des proportions différentes suivant l'angle entre la polarisation du laser et l'axe internucléaire. Cette représentation est en effet la suivante:

$$^1\Sigma_g^+ - ^3\Sigma_u^+(A) \Leftrightarrow \sqrt{\frac{2}{3}}|n10, n10\rangle + \sqrt{\frac{1}{6}}|n11, n1-1\rangle + \sqrt{\frac{1}{6}}|n1-1, n11\rangle \quad (4.2)$$

$$^1\Sigma_g^+ - ^3\Sigma_u^+(R) \Leftrightarrow \sqrt{\frac{1}{3}}|n10, n10\rangle + \sqrt{\frac{1}{3}}|n11, n1-1\rangle + \sqrt{\frac{1}{3}}|n1-1, n11\rangle \quad (4.3)$$

Les fonctions d'onde électroniques sont exprimées avec les fonctions d'onde atomiques $|n, l, m\rangle$. L'axe de quantification est ici l'axe internucléaire. Cette description ne considère pas la structure fine et se limite au modèle perturbatif utilisé pour calculer l'expression des potentiels (4.1).

On notera également que pour l'état $^1\Sigma_g^+ - ^3\Sigma_u^+(A)$, le coefficient C_5 s'annule, il est répulsif pour l'état $^1\Sigma_g^+ - ^3\Sigma_u^+(R)$ (pour l'état $^1\Sigma_g^+ - ^3\Sigma_u^+(R)$ à l'asymptote $70p - 70p$, l'interaction dipôle-quadrupôle en $\frac{-C_5}{R^5}$ est plus importante que l'interaction Van der Waals lorsque la distance internucléaire R est plus grande que $12 \mu\text{m}$, mais alors elle est déjà inférieure à 30 kHz.).

Notons que le développement perturbatif (4.1) est valable seulement aux grandes distances internucléaires, notamment parce que la différence d'énergie $\delta_{ppss'}$ entre les niveaux nnp et $ns(n+1)s$ est très faible (cf. Fig. 4.2), ce qui rend les couplages dipôle-dipôle élevés. Cette

différence d'énergie $\delta_{ppss'}$ est de l'ordre de 213 MHz pour $n = 70$.

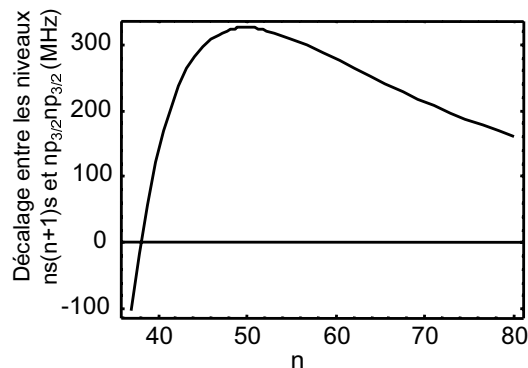


FIG. 4.2 – Décalage d'énergie $-\delta_{ppss'}$ entre les états $ns(n+1)s$ et $np_{3/2}np_{3/2}$ pour le Rubidium ^{85}Rb , en fonction de n . Les défauts quantiques sont extraits de [Li et al., 2003]. On voit que pour $n > 38$, le niveau d'énergie $ns(n+1)s$ est situé au-dessus du niveau $np_{3/2}np_{3/2}$, mais cet écart énergétique reste toujours très faible (< 320 MHz).

C'est la raison pour laquelle le coefficient C_6 est beaucoup plus grand pour le couple de potentiels $^1\Sigma_g^+ - ^3\Sigma_u^+(A)$ que les valeurs trouvées pour d'autres asymptotes [Singer et al., 2005]. La valeur du C_6 donnée par [Tong et al., 2004] pour ce potentiel implique un rayon d'interaction Van der Waals R_{VdW} de l'ordre de $6.4 \mu\text{m}$. Ce rayon est défini¹ tel que $\frac{-C_6}{R_{VdW}^6} = \frac{\delta_{ppss'}}{4}$. Pour une distance internucléaire plus courte, le système n'est plus dans une configuration Van der Waals mais dans un cas dipôle-dipôle résonant (il faut alors diagonaliser l'hamiltonien total, en prenant éventuellement en compte l'interaction de spin-orbite, le terme dominant du développement en puissances de $1/R$ des niveaux d'énergie serait un terme dipôle-dipôle résonant en $1/R^3$). C'est l'approche suivie dans la publication [Stanojevic et al., 2006] pour simuler les résultats de l'expérience de résonances moléculaires [Farooqi et al., 2003]). Les densités atteintes², de l'ordre de $1.4 \times 10^{10} \text{ at/cm}^3$ pour $n = 70$ au centre du nuage d'atomes de Rydberg, impliquent un espacement internucléaire moyen d'à peine $2.7 \mu\text{m}$. Dans ces conditions, le modèle perturbatif (4.1) n'est normalement pas acceptable pour les états $^1\Sigma_g^+ - ^3\Sigma_u^+(A)$ lorsque sont atteintes les fortes densités.

4.2.1.2 Modèle de champ moyen

Le modèle utilisé pour l'ajustement des données expérimentales de la Fig. 4.1 est basé sur une théorie d'interaction de champ moyen et repose sur plusieurs hypothèses. Elles sont

¹Pratiquement, dans un modèle à deux niveaux de l'interaction dipôle-dipôle $pp \leftrightarrow ss'$, le développement perturbatif de l'état propre $|-\rangle$ relié asymptotiquement à l'état pp (cf définition (1.78) p. 54) est donné par $\frac{\delta_{ppss'}}{2} \left(\sqrt{1 + \left(\frac{W}{\delta_{ppss'}/2} \right)^2} - 1 \right) \approx \frac{W^2}{\delta_{ppss'}} - \frac{W^4}{\delta_{ppss'}^3} \dots$. Il n'est valable que si le couplage dipôle-dipôle W vérifie $W < \frac{|\delta_{ppss'}|}{2}$. Avec le résultat $\frac{-C_6}{R^6} = \frac{W^2}{\delta_{ppss'}}$, nous retrouvons bien que le développement perturbatif dans la base d'états non perturbés est valide si $R > R_{VdW}$, où R_{VdW} est donné par $\frac{-C_6}{R_{VdW}^6} = \frac{\delta_{ppss'}}{4}$.

²La densité est ici calculée sans tenir compte de la limitation de l'excitation par le blocage de l'excitation au centre du faisceau d'excitation, ce qui évidemment n'est pas valable. En fait, la densité est limitée par l'interaction $pp \leftrightarrow ss'$. Pour qu'il y ait blocage, il faut que le décalage induit par l'interaction Van der Waals soit supérieur à la largeur spectrale laser ~ 100 MHz, ce qui implique un couplage dipôle-dipôle moyen de l'ordre de $\delta_{ppss'}$ pour $n = 70$. Le blocage de l'excitation est donc plutôt de type dipôle-dipôle.

discutées succinctement dans ce paragraphe. Une justification plus exacte de cette théorie de champ moyen est développée au chapitre 4.3.3.

Une première hypothèse est donc faite d'un blocage de type Van der Waals, dû à une interaction en $\frac{-C_6}{R^6}$, hypothèse normalement valable seulement aux faibles densités lorsque les atomes sont suffisamment éloignés les uns des autres. Si on considère un système à deux atomes, il faut que le décalage induit par l'interaction Van der Waals soit supérieur à la largeur spectrale laser ~ 100 MHz pour qu'il y ait blocage de l'excitation d'un deuxième atome en première approximation (nous revenons sur ce point ultérieurement). Dans un volume contenant N atomes excités, le décalage en fréquence δ à prendre en compte pour l'excitation d'un autre atome est la somme des termes d'interaction Van der Waals ϵ_i de cet atome avec chacun des atomes déjà excités pris isolément : $\delta = \sum \epsilon_i$. Ce résultat provient directement de la théorie des perturbations.

Prenons en effet l'exemple d'un système à 4 atomes dont 3 sont déjà dans l'état Rydberg. Pour le système des trois atomes au départ dans l'état de Rydberg, l'énergie E_{ppp} de l'état ppp perturbé (d'énergie $E_{ppp}(0)$ en l'absence de perturbations) est calculée au deuxième ordre de la théorie des perturbations, en tenant compte des couplages dipôle-dipôle $\hbar v_{ij} \propto \frac{1}{R^3}$ avec les états $\frac{ss'p+s'sp}{\sqrt{2}}$, $\frac{s'sp+sp's'}{\sqrt{2}}$, et $\frac{ps's+ps's'}{\sqrt{2}}$, i et j désignant les deux atomes interagissant :

$$E_{ppp} = E_{ppp}(0) + \frac{1}{\delta_{ppss'}} \sum_{i=1}^3 \sum_{j,j<i} (\hbar v_{ij})^2 \quad (4.4)$$

Pour un système à quatre atomes, l'énergie de l'état $pppp$ non perturbé devient :

$$E_{pppp} = E_{pppp}(0) + \frac{1}{\delta_{ppss'}} \sum_{i=1}^4 \sum_{j,j<i} (\hbar v_{ij})^2 \quad (4.5)$$

Un certain nombre des termes dans la somme (4.5) sont les mêmes que dans l'expression (4.4), exactement tous les termes de couplage $pp \leftrightarrow \frac{ss'+s's}{\sqrt{2}}$ ne faisant pas intervenir le quatrième atome excité. Lorsqu'on étudie la possibilité d'excitation d'un quatrième atome, le décalage δ entre la fréquence de transition d'un atome perturbé par l'excitation de trois autres atomes dans son environnement et la fréquence de la transition atomique non perturbée est donc le suivant :

$$\delta = \frac{1}{\delta_{ppss'}} \sum_{i=1}^4 \sum_{j,j<i} (\hbar v_{ij})^2 - \frac{1}{\delta_{ppss'}} \sum_{i=1}^3 \sum_{j,j<i} (\hbar v_{ij})^2 = \frac{1}{\delta_{ppss'}} \sum_{j<4} (\hbar v_{4j})^2 \quad (4.6)$$

Finalement, seuls doivent être pris en compte les couplages dipôle-dipôle impliquant directement ce quatrième atome pour calculer le décalage d'énergie. Ce résultat se généralise à un système plus complexe avec n atomes et des couplages avec plusieurs états moléculaires possibles.

Le modèle considère ensuite un volume sphérique d'excitation dans lequel un seul atome est excité en moyenne. La rayon de cette sphère de rayon R_d (voir Fig. 4.3) varie au cours du temps d'excitation lorsque la densité d'atomes excités augmente. Le volume correspondant V_d vérifie la relation $V_d \rho_e(r, t) = 1$, où $\rho_e(r, t) = \rho(r) \times |c_e(r, t)|^2$, avec $\rho(r)$ la densité d'atomes dans l'état fondamental supposée non perturbée par l'excitation et $c_e(r, t)$ l'amplitude de la fonction d'onde d'un atome dans l'état excité, en représentation d'interaction ($\Psi(r, t) = c_g(r, t)e^{-iE_g t/\hbar}|g\rangle + c_e(r, t)e^{-iE_e t/\hbar}|e\rangle$).

La deuxième hypothèse formulée par ce modèle suppose que la possibilité d'exciter un deuxième atome dans ce volume dépend du décalage Van der Waals induit par tous les autres atomes à l'extérieur de ce volume. Suivant la position de ce deuxième atome à l'intérieur de ce volume, le décalage varie beaucoup : il est faible au centre de la sphère mais beaucoup plus élevé s'il se trouve à la périphérie. L'équation d'évolution de $c_e(r, t)$ et $c_g(r, t)$ est la suivante:

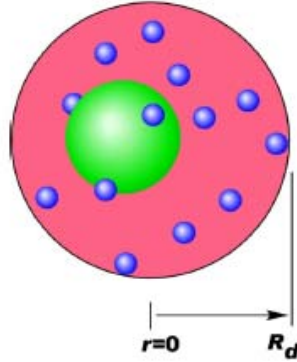


FIG. 4.3 – Figure extraite de l'article [Tong et al., 2004]. Le modèle proposé dans cette publication considère une boule V_d de rayon R_d dans laquelle un seul atome de Rydberg a été excité.

$$i \frac{d}{dt} c_e(r, t) = \frac{\Omega}{2} c_e(r, t) \quad (4.7)$$

$$i \frac{d}{dt} c_g(r, t) = -\tilde{C}_6 g(r/R_d) \rho^2 \left| \int_{V'} |c_e(r, t)|^2 4\pi r^2 dr \right|^2 c_e(r, t) + \frac{\Omega}{2} c_g(r, t) \quad (4.8)$$

Où $\tilde{C}_6 = \frac{6}{70} C_6$ est un coefficient effectif moyenné sur tous les angles possibles et toutes les symétries possibles. $g(r/R_d)$ est une fonction normalisée prenant en compte la variation du décalage Van der Waals suivant la position de l'atome à l'intérieur de la sphère. Le résultat $|c_e(r, t)|^2$ est ensuite moyenné sur les différentes positions possibles à l'intérieur de cette sphère. R_d^6 dans l'expression du décalage $\frac{\tilde{C}_6 g(r/R_d)}{R_d^6}$ est relié à la densité via l'expression $\frac{1}{4/3\pi R_d^3} = \rho_e(r, t)$.

En pratique, cette équation est résolue en remplaçant r par $y = r/R_d$, ce qui permet d'obtenir une équation en $\tilde{c}_e(y, t)$ et $\tilde{c}_g(y, t)$ indépendante de R_d . Ce modèle soulève plusieurs questions. L'hypothèse est faite que dans le volume V_d , l'état du système est un état collectif comportant une excitation Rydberg. Considérer l'excitation d'un deuxième atome à l'intérieur de ce volume sans prendre en compte comme cela est supposé l'interaction avec ce premier atome (i.e. à l'intérieur de la sphère) est une approximation un peu grossière. Nous discutons cette hypothèse plus avant dans le modèle de la section 4.3.3. Du fait du grand nombre de potentiels à l'asymptote $np - np$, dont un certain nombre ne sont presque pas décalés en énergie par l'interaction de type Van der Waals, la description est assez complexe. Ce modèle n'est pas applicable au cas de l'interaction dipôle-dipôle en champ électrique par exemple. Dans ce cas, le décalage dipôle-dipôle à prendre en compte pour l'excitation d'un n -ième atome lorsque $(n - 1)$ atomes ont été excités dans l'état Rydberg est au premier ordre de la théorie des perturbations :

$$\delta = \sum_{k=1}^n \sum_{l, l < k} \hbar v_{kl} - \sum_{i=1}^{n-1} \sum_{j, j < i} \hbar v_{ij} = \sum_{l, l < n} \hbar v_{nl} \quad (4.9)$$

Où $v_{ij} = \mu_{dp}^2 \frac{(1 - 3 \cos^2(\Theta_{ij}))}{R_{ij}^3}$ est le décalage d'énergie calculé au premier ordre de la théorie des perturbations pour l'interaction dipôle-dipôle entre deux atomes dans l'état np , i et j , séparés par la distance R_{ij} , en présence d'un champ électrique (cf paragraphe 1.3.2).

Nous avons vu que moyennée angulairement sur toutes les directions possibles de l'espace, cette interaction dipôle-dipôle est nulle (cf résultat (1.57)). Moyenner à l'extérieur d'une sphère délimitant un volume V_d comme dans le modèle développé par [Tong et al., 2004] pour obtenir un C_3 effectif n'est pas possible. En fait, dans le cas de l'interaction dipôle-dipôle en champ électrique, nous montrerons au chapitre 4.3.3 qu'il est assez raisonnable de considérer l'interaction avec le plus proche atome excité alors qu'en moyenne les contributions des interactions avec les autres atomes s'annulent.

Si le modèle est critiquable et susceptible d'être amélioré car l'expérience se situe à la frontière entre interaction de Van der Waals et dipôle-dipôle du premier ordre, le résultat de l'expérience [Tong et al., 2004] n'en demeure pas moins très intéressant. Il est spécifié qu'avec un volume d'excitation inférieur à $\frac{4}{3}\pi \times (2 \mu\text{m})^3$, la possibilité d'exciter un deuxième atome n'excède pas 1% avec un laser de largeur spectrale inférieure à 1 MHz. Ce volume reste cependant petit et difficile à contrôler expérimentalement, d'où l'intérêt de rechercher le blocage dipolaire du premier ordre, avec une interaction du type $1/R^3$ à beaucoup plus grande distance.

4.2.2 Autres expériences

Deux autres expériences utilisant des excitations continues proposent une observation d'un blocage de l'excitation supposé Van der Waals [Singer et al., 2004, Liebisch et al., 2005]. Dans [Singer et al., 2004], l'excitation des états nd et ns du rubidium est effectuée en deux étapes. Les durées d'excitation sont de l'ordre de 20 μs et les densités atteintes élevées, typiquement $10^8 \text{ at}/\text{cm}^3$. Il est maintenant démontré que des processus d'ionisation par collisions froides et de formation de plasmas ultra-froids perturbent les résultats obtenus. Il est notamment observé une forte asymétrie vers le rouge des raies d'excitation pour les états ns avec $n \sim 60 - 80$ attribuée à des résonances moléculaires. Cette asymétrie pourrait être due également à la présence d'ions (en champ électrique nul, les ions créent une charge d'espace rendant les raies des états ns asymétriques vers le rouge).

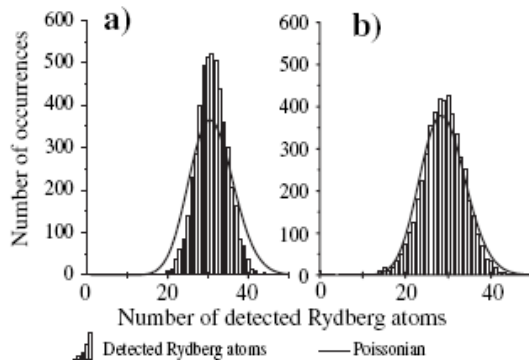


FIG. 4.4 – Figure extraite de [Liebisch et al., 2005]. Distribution des nombres d'atomes de Rydberg détectés, avec une moyenne de 30 atomes détectés pour chacune des deux études. (b) Etude servant de référence : le volume d'excitation est très grand et l'intensité laser très faible, si bien que les interactions sont négligeables. La distribution des nombres d'atomes détectés N suit une loi poissonnienne. (a) Le volume d'excitation est plus petit qu'en (b) mais l'intensité laser est beaucoup plus grande si bien qu'un même nombre moyen d'atomes est détecté. La loi de distribution des nombres d'atomes détectés n'est plus poissonnienne. La variance $\langle N^2 \rangle - \langle N \rangle^2$ est beaucoup plus faible qu'en (b).

Dans [Liebisch et al., 2005], environ 50 atomes en moyenne sont excités vers un niveau $nd_{5/2}$ dans un volume cylindrique de longueur 500 μm et de diamètre 20 μm . Ce faible nombre

d'atomes semble cependant suffisant pour que l'excitation soit perturbée par la présence d'interactions, de type Van der Waals. Il apparaît notamment que la distance interatomique minimale d'excitation d'une paire d'atomes (définie par la force de l'interaction et la largeur laser, 5 MHz dans cette expérience), d'environ $6 \mu\text{m}$ pour $n \sim 77$ est de l'ordre de la distance interatomique moyenne dans l'état fondamental. Le faible nombre d'atomes excités permet difficilement l'observation d'une saturation. Cependant, le nombre d'atomes excités à chaque excitation (100 ns de durée d'excitation) tend à devenir plus homogène en présence de blocage dipolaire (cf Fig. 4.4) que lorsque les atomes sont excités et détectés de façon indépendante les uns des autres. Dans le cas où les atomes sont indépendants les uns des autres, la distribution des nombres d'atomes détectés suit une loi poissonnienne (la probabilité d'excitation puis détection de k atomes parmi N atomes indépendants suit une loi binomiale, elle est équivalente à une loi de Poisson pour les grands nombres d'atomes.). Si il y a interactions et donc corrélations entre les excitations, la possibilité d'obtenir des nombres élevés d'atomes excités est restreinte. Il apparaît également que le nombre d'occurrences pour laquelle le nombre d'atomes excités est peu élevé diminue. L'intensité laser d'excitation est en fait augmentée dans les données de la figure 4.4 (a) en présence de blocage de l'excitation afin qu'un même nombre d'atomes soient excités en moyenne dans les deux expériences (a) et (b), limitant donc la possibilité que le nombre d'atomes excités soit faible. Au final, la variance du nombre d'atomes détectés diminue fortement. Ces données n'ont pas encore été modélisées.

De tels comportements de saturation de l'excitation probablement dus à l'interaction Van der Waals ont été observés dans nos études du blocage dipolaire. En effet, la courbe du décalage d'énergie entre les niveaux $|np, np\rangle$ et $|ns, (n+1)s\rangle$ d'un dimère de césium (cf Fig. 1.12) est quasiment identique à celle obtenue dans le cas du rubidium (cf. Fig. 4.2), la frontière $n=42$ remplaçant $n=38$: le décalage d'énergie est négatif pour $n < 42$, quasi nul pour $n = 42$ (exactement -9.6 MHz d'après [Weber and Sansonetti, 1987]), et reste ensuite très faible ($|\delta_{ppss'}| < 250$ MHz). Il existe donc toujours une forte interaction Van der Waals attractive pour $n > 42$ susceptible de limiter l'excitation en champ nul.

Nous nous sommes en général placés dans des conditions telles que cette interaction reste faible pour l'observation du blocage dipolaire en champ électrique. La mise en évidence du blocage dipolaire en champ électrique ne peut en effet se faire que par comparaison avec l'excitation en champ nul. Il est nécessaire que les densités soient suffisantes pour observer un effet de blocage dipolaire du premier ordre en champ électrique mais que l'effet du deuxième ordre reste minimum en champ électrique nul.

4.3 Blocage dipolaire en champ électrique

Les atomes de Rydberg ont un très grand moment dipolaire en présence d'un champ électrique F . Par comparaison avec l'eau H_2O de moment dipolaire 1.85 D ($1 \text{ D} \approx 0.4 \text{ u.a.}$), un atome de Rydberg dans l'état Stark $np_{3/2}(F)$ peut posséder un moment dipolaire permanent de plus de 2000 D pour $n = 40$. Placés en champ électrique, les atomes de Rydberg interagissent très fortement via l'interaction dipôle-dipôle. Au chapitre 1.3.2, il est montré que cette interaction prend une forme simple dans le système modèle formé par les couples d'états $|np_{3/2}(F), nd_{5/2}(F)\rangle$ ou $|np_{1/2}(F), nd_{3/2}(F)\rangle$. Pour deux atomes excités dans les états $np_{3/2}(F)$ ou dans les états $np_{1/2}(F)$ (moments dipolaires permanents $\mu_A(F)$ et $\mu_B(F)$), le couplage dipôle-dipôle entre deux atomes A et B est égal à la valeur que l'on calculerait de manière classique :

$$v_{dd} = \frac{\mu_A(F)\mu_B(F)(1 - 3 \cos^2 \Theta)}{R^3} \quad (4.10)$$

R étant la distance internucléaire et Θ étant l'angle entre l'axe du champ électrique et l'axe internucléaire. L'étude de l'interaction dipôle-dipôle et la possibilité du blocage dipolaire sont donc a priori facilitées pour ce système. Toutefois, un certain nombre d'effets "parasites" peuvent rendre cette étude délicate. Il est premièrement nécessaire de contrôler proprement le problème de l'excitation. Du fait du couplage Stark, la probabilité d'exciter l'état $np_{3/2}(F)$ diminue en champ électrique pour une intensité laser d'excitation constante (cf section 1.3.2.1) et ceci peut diminuer l'effet du blocage dipolaire. La saturation laser de l'excitation est un problème aussi car elle élargit par puissance les raies d'excitation et diminue donc la résolution spectrale de l'excitation (limitée dans notre schéma d'excitation à 5-6 MHz par la durée de vie de l'état $7s$ et la durée de l'excitation ~ 300 ns). Un deuxième point est la proximité des états $np_{3/2}np_{3/2}$ et $ns(n+1)s$ qui complique l'étude du blocage dipolaire en champ électrique : d'une part l'interaction Van der Waals peut conduire à un blocage de l'excitation, d'autre part certains potentiels moléculaires sont très attractifs et conduisent à des collisions accompagnées d'une ionisation d'un des atomes. Ces problèmes d'ionisation peuvent être très limitants dans cette spectroscopie de l'interaction dipôle-dipôle, car conduisant à un effet de limitation de l'excitation. Une autre cause d'ionisation possible dans le schéma d'excitation continue est la photoionisation par le rayonnement du corps noir à 300 K. Cependant, à l'échelle de l'expérience, 300 ns, les taux sont suffisamment faibles pour ne pas perturber significativement l'excitation. Nous revenons plus en détails sur ces problèmes dans la section 4.4.5. Notamment, une première étude de l'interaction dipôle-dipôle au voisinage des résonances de Förster (possibles pour $n < 42$) a permis de bien contrôler de l'interaction $np_{3/2}np_{3/2} \longleftrightarrow ns(n+1)s$ et d'écarter les problèmes d'ionisation.

Dans la présente section, nous mettons en évidence que le blocage dipolaire de l'excitation est effectif lorsque des champs de seulement quelques mV/cm sont appliqués (largement inférieurs au champ de croisement d'un état $np_{3/2}(F)$ avec la multiplicité d'états d'énergies inférieures³). Des études comparées de différents n , des études en faisant varier le champ électrique et des études de densité en faisant varier la puissance des lasers d'excitation ou les densités initiales d'atomes ont été réalisées pour caractériser complètement l'excitation d'une assemblée d'atomes en présence de blocage dipolaire en champ électrique. L'excitation des états $np_{1/2}$ est comparée à celle des états $np_{3/2}$ pour mieux cerner les effets possibles de l'interaction entre les états $np_{3/2}np_{3/2}$ et $ns(n+1)s$ lorsque les états $np_{3/2}$ sont excités. Les nombres d'ions sont minimisés mais toujours enregistrés simultanément avec les nombres d'atomes de Rydberg pour bien "cerner" leur rôle.

Enfin, un modèle d'interaction de champ local permet une description théorique en relativement bon accord avec l'expérience. Il repose sur une approximation de type Hartree-Fock utilisée usuellement dans les théories de champ moyen permettant par exemple de retrouver l'équation de Gross-Pitaevski. De tels théories peuvent être utilisées pour décrire les condensats d'atomes interagissant via l'interaction dipôle-dipôle et notamment décrire les particularités d'expansion de tels condensats du fait de l'anisotropie de l'interaction dipôle-dipôle. Il est montré qu'en première approximation, pour le blocage dipolaire en champ électrique, le champ moyen est négligeable et que l'interaction dipôle-dipôle en champ électrique est limitée à l'interaction avec le plus proche atome voisin excité, proportionnelle en moyenne à la densité d'atomes de Rydberg.

³Ce champ est typiquement de l'ordre de $\frac{1-1}{3n^5}$ u. a., correspondant à $\tan^2 \theta \approx 14$ où θ caractérise simplement la couplage Stark entre les états $np_{3/2}$ et $(n-1)d_{5/2}$ (cf chapitre 1.3.2.1).

4.3.1 Blocage dipolaire de l'excitation vers les états $np_{3/2}$

Dans cette première série d'expériences, les atomes sont excités vers des états de Rydberg $np_{3/2}$ depuis l'état $7s$ (n variant de 40 à 85) en balayant la fréquence du laser Ti:Sa pour différents champs électriques appliqués. L'intensité du laser Ti:Sa est choisie de manière à être largement en-dessous du seuil de saturation par puissance mais proportionnelle à n^3 pour palier à la diminution en n^{-3} de la force d'oscillateur. La puissance du laser Ti:Sa utilisée pour l'excitation de l'état $50p_{3/2}$ est ainsi seulement de 7.8 mW (correspondant à une intensité pic de 88 W/cm^2 à comparer à l'intensité de saturation évaluée à $\sim 121 \text{ W/cm}^2$) et de 36 mW pour l'excitation de l'état $85p_{3/2}$. Le décalage de la fréquence des lasers pièges par rapport à la transition $6s_{1/2}, F = 4 \rightarrow 6p_{3/2}, F = 5$ est $\delta_{PMO} \sim -15 \text{ MHz}$ (configuration normale de fonctionnement du piège magnéto-optique). La diode laser 1470 est collimatée au niveau du PMO (waist $\omega_{1470} \sim 1300 \mu\text{m}$ et puissance $\sim 2 \text{ mW}$) et colinéaire avec le laser Ti:Sa (waist $\omega_{TiSa} \sim 125 \mu\text{m}$ et puissance variable). Les polarisations des deux lasers sont toutes deux parallèles au champ électrique pour permettre l'excitation de l'état $|m_j| = 1/2$ uniquement.

4.3.1.1 Résultats expérimentaux : étude comparée de différents états $np_{3/2}$

La figure 4.5 compare les spectres de l'état $85p_{3/2}$ obtenus pour deux champs électriques différents (0 V/cm et 0.13 V/cm) : il apparaît une nette diminution de l'excitation en présence de champ électrique, d'environ 66% au centre de la raie.

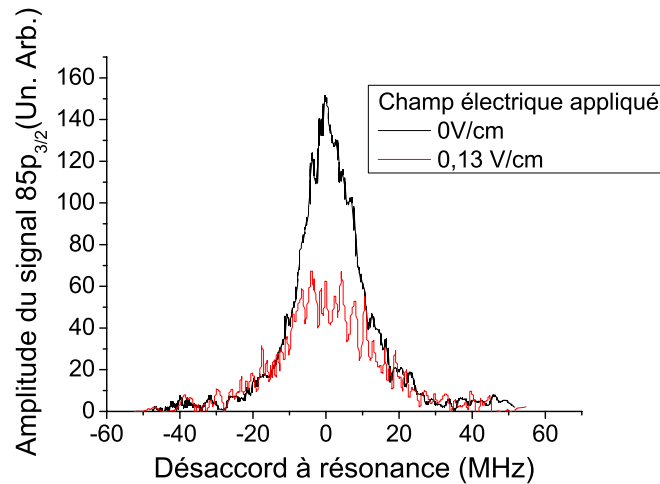


FIG. 4.5 – Superposition de deux spectres obtenus à 0 V/cm et 0.13 V/cm pour l'état $85p_{3/2}$. La puissance du laser Ti:Sa est de 54 mW. La fréquence du Ti:Sa est ramenée à 0 au centre de la résonance.

La figure 4.6 montre l'évolution des spectres d'excitation de l'état $75p_{3/2}$ en fonction du champ électrique. Il apparaît également une diminution importante de l'excitation, semblant quadratique en fonction du décalage Stark d'énergie de l'état $75p_{3/2}$. La diminution de l'excitation linéaire en fonction du champ électrique à champ faible (et donc quadratique en première approximation en fonction du décalage Stark de l'état p) est confirmée sur la Fig. 4.7 (a). Cette figure montre l'évolution de l'amplitude du signal Rydberg en fonction du champ électrique lorsque le laser Ti:Sa est résonant avec la transition $7s_{1/2} \rightarrow np_{3/2}$ (n variant de 40

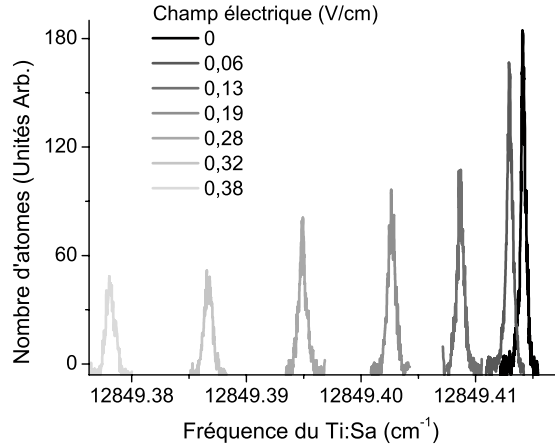


FIG. 4.6 – Spectres de l'état $75p_{3/2}$, pour différents champs électriques (du fait de la polarisabilité négative des états $np_{3/2}$ du césium, la fréquence de résonance du laser Ti:Sa est une fonction décroissante du champ électrique). La diminution du signal en champ électrique est beaucoup plus importante qu'attendue.

à 85). L'évolution en champ électrique des amplitudes est normalisée à 1 en champ nul pour permettre une meilleure comparaison des différentes courbes.

Ces données montrent une diminution de plus en plus rapide de l'excitation en champ électrique en fonction de n . La variation de l'excitation en champ électrique est précisée sur la Fig. 4.8 où nous reportons les pentes $\alpha(n)$ de la diminution linéaire de l'excitation à champ électrique faible pour différents n . Les données expérimentales $\alpha(n)$ sont relativement bien ajustées par une loi de puissance de la forme $\alpha(n) = -3.1 \times n^{6.7}$.

4.3.1.2 Interprétation des résultats

Afin d'interpréter ces résultats, nous rappelons et développons plus avant certains résultats du chapitre 1.3.2 concernant l'interaction dipôle-dipôle en champ électrique. Ce rappel nous permet ensuite d'évaluer la possibilité du blocage dipolaire de l'excitation vers des états de Rydberg au sein des nuages d'atomes étudiés.

Interaction dipôle-dipôle moyenne

Reprenons le déplacement du niveau d'énergie v d'un état $|np(F) np(F)\rangle$ par l'interaction dipôle-dipôle donné par la formule suivante⁴, établie au paragraphe 1.3.2 :

$$v = E_{|np(F),np(F)\rangle} = 4Ap(\theta)Ad(\theta) \frac{e^2 \mu_{pd}^2 (1 - 3(\cos \Theta)^2)}{R^3} \quad (4.11)$$

⁴Cette formule ne tient pas compte des couplages avec les états ns , $(n+1)s$ et $nd_{3/2}$ qui sont négligeables en champ faible. L'expression exacte est donnée dans l'annexe A.

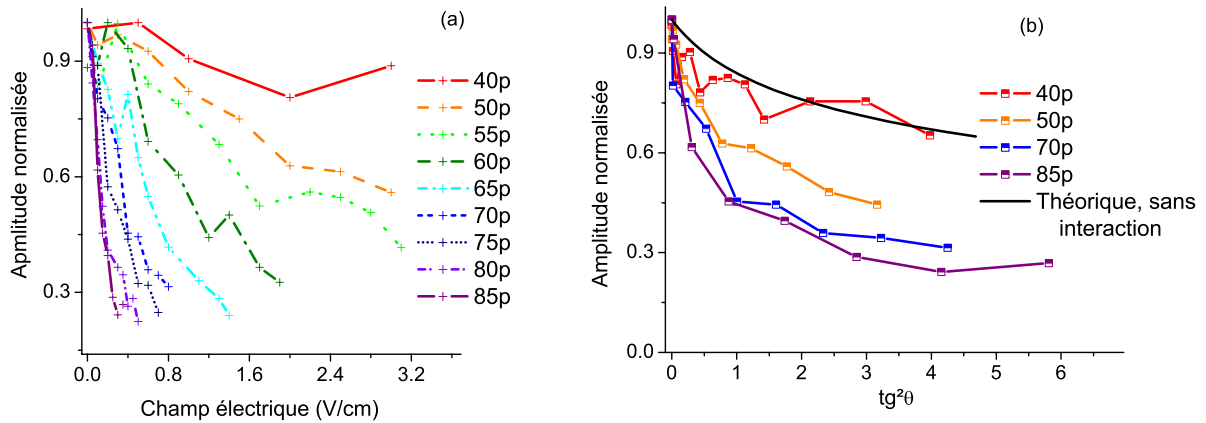


FIG. 4.7 – (a) Variation de l'amplitude d'excitation Rydberg pour $n=40-85$, en fonction du champ électrique. La puissance du laser Ti:Sa varie en n^3 pour compenser la diminution de la force d'oscillateur en n^{-3} . (b) Données de la courbe (a) pour quelques états n en fonction du paramètre normalisé $\tan^2 \theta$. La courbe noire représente la diminution de l'amplitude $A_p(\theta)$ attendue sans interactions entre atomes (cf. paragraphe (1.3.2.1)).

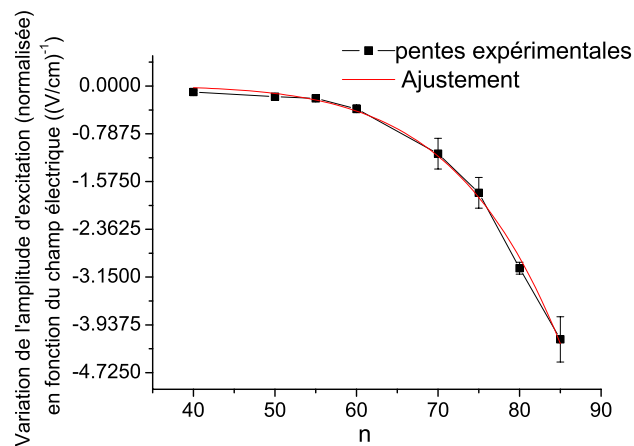


FIG. 4.8 – Pentas à l'origine des courbes de la Fig. 4.7 (a) présentant la diminution de l'amplitude de l'excitation Rydberg en fonction du champ électrique. L'ajustement de la courbe expérimentale suit une loi de puissance de la forme $-3.1 \times n^{-6.7}$.

R est l'espacement internucléaire. Rappelons que $\tan(\theta) = \frac{-\mu_{pd}F}{\Delta/2}$ caractérise le couplage Stark entre les états $np_{3/2}$ et $nd_{5/2}$ alors que Θ est l'angle entre la direction de l'axe internucléaire et l'axe du champ électrique. $Ap(\theta)$ et $Ad(\theta)$ caractérisent l'amplitude des états $np_{3/2}$ et $(n-1)d_{5/2}$ dans l'état Stark $np_{3/2}(F)$:

$$Ap(\theta) = |\langle np_{3/2}, |m_j| = 1/2 | np_{3/2}(F), |m_j| = 1/2 \rangle|^2 \quad (4.12)$$

$$Ad(\theta) = |\langle nd_{5/2}, |m_j| = 1/2 | np_{3/2}(F), |m_j| = 1/2 \rangle|^2 \quad (4.13)$$

Les valeurs exactes des coefficients $Ap(\theta)$ et $Ad(\theta)$ ont été formulées au paragraphe 1.3.2.1. L'approche à deux niveaux valable pour $\tan(\theta) < 1$ donne $4(Ap(\theta)Ad(\theta)) = (\sin \theta)^2$. En champ faible, cela donne $4(Ap(\theta)Ad(\theta)) \approx \tan^2 \theta$.

Dans une assemblée d'atomes, il convient de considérer tous les couplages possibles. La possibilité d'exciter un atome dénommé n initialement dans l'état fondamental vers un état de Rydberg en présence de $(n-1)$ autres atomes de Rydberg est simplement fonction du décalage d'énergie entre le niveau $|r^n\rangle$, correspondant au cas où les n atomes sont dans l'état de Rydberg, et le niveau $|r^{(n-1)}\rangle$ pour lequel le n -ième est dans l'état fondamental. Ce décalage δ est donné au premier ordre de la théorie des perturbations par la formule (4.9) reproduite ici :

$$\delta = \sum_{l,l < n} \hbar v_{nl} \quad (4.14)$$

δ est donc simplement donné par la somme des couplages v_{nl} entre le n -ième atome initialement dans l'état fondamental et tous les autres atomes.

Dans cette somme, il est possible d'isoler le couplage avec le plus proche voisin excité v_{np} des autres couplages que nous remplaçons, pour un grand nombre d'atomes, par une intégrale :

$$\delta \approx \int_{\mathcal{V}'} v_{ij}(\Theta, R) \eta(\vec{R}) 2\pi \sin \Theta R^2 dR d\Theta + v_{np}(\Theta_p, R_p) \quad (4.15)$$

L'indice p désigne le plus proche voisin, Θ_p et R_p définissant l'interaction avec le n -ième atome. L'intégrale sur $\mathcal{V}' = \mathcal{V}_{\mathcal{PMO}} - \mathcal{V}$ est une somme sur tous les atomes situés à l'extérieur de la boule ne contenant qu'un seul plus proche voisin excité pour l'atome n , $\eta(\vec{R})$ étant la densité d'atomes excités en \vec{R} .

Dans le cas où les atomes excités sont distribués de manière stochastique, la distribution des rayons R_p possibles est simplement donnée par la distribution d'Erlang (1.61). L'espacement internucléaire moyen est alors égale à $R_m \approx 0.9R_d$, R_d étant relié à la densité locale η d'atomes excités $R_d = (\frac{4}{3}\pi\eta)^{-1/3}$. En supposant⁵ également que ce premier atome est situé au centre du PMO et en remplaçant $\eta(\vec{R})$ par $\eta(R)$, l'intégrale est nulle (cf résultat (1.57), l'intégrale angulaire de l'interaction dipôle-dipôle est nulle).

Finalement, le décalage est ramené à :

$$\delta \approx f(\theta) \times \frac{\mu_{pd}^2(1 - 3 \cos \Theta_p^2)}{R_{np}^3} \quad (4.16)$$

⁵L'intégrale n'est pas rigoureusement nulle pour un atome excentré par rapport au centre du PMO. Elle correspond à un terme de champ moyen qui en première approximation peut être négligé par rapport au champ local (l'explication est donnée dans la section 4.3.3.2). De même, l'approximation d'une distribution stochastique des atomes excités n'est pas exacte car le blocage dipolaire est anisotrope. Enfin, nous regardons ici l'excitation d'un atome en présence d'autres atomes excités alors qu'en pratique tous les atomes sont couplés au champ laser. Il convient par exemple de considérer tous les états possibles $|i\rangle$ et $|j\rangle$ contenant $N-1$ et N excitations respectivement. Le calcul de la section 4.3.3.2 permet de retrouver de manière générale le résultat obtenu ici.

$f(\theta) = 4Ap(\theta)Ad(\theta)$ caractérise le couplage en champ électrique ($f(\theta) \approx \sin^2 \theta$ en considérant uniquement le couplage Stark entre les états $np_{3/2}$ et $(n-1)d_{5/2}$).

Le principal résultat établi est que l'interaction dipôle-dipôle dans une telle assemblée d'atomes se limite en première approximation à l'interaction avec le plus proche atome voisin excité. La possibilité d'exciter cet atome ne dépend pas du signe de l'interaction δ mais seulement de la valeur absolue du décalage (lorsque le laser d'excitation est résonant avec la transition non perturbée par l'interaction dipôle-dipôle), c'est pourquoi il est possible d'utiliser la moyenne angulaire de $|\delta|$ pour obtenir un ordre de grandeur. Pour un espacement égal à l'espacement internucléaire moyen R_m , nous retrouvons la formule établie dans la section 1.3.2.2, exprimée en fonction de la densité d'atomes excités η :

$$W_m \approx 1.09 f(\theta) \frac{\mu_{pd}^2}{R_d^3} = 1.09 f(\theta) \mu_{pd}^2 \frac{4}{3} \pi \eta \quad (4.17)$$

Pour plus de précision, on peut préférer utiliser la valeur médiane du décalage dipôle-dipôle $|\delta|$, qui reste cependant très proche :

$$W_m \approx 0.97 f(\theta) \frac{\mu_{pd}^2}{R_d^3} = 0.97 f(\theta) \mu_{pd}^2 \frac{4}{3} \pi \eta \quad (4.18)$$

Analyse des données expérimentales

Afin de mieux comparer les différentes courbes de la Fig. 4.7 (a), nous les présentons en fonction du paramètre $\tan^2(\theta)$ sur la Fig. 4.7 (b). Ceci permet de les comparer à la décroissance "normale" de l'excitation en champ électrique, due à la diminution de la force d'oscillateur, dont il a été montré au paragraphe 1.3.2.1 qu'elle ne dépend que du paramètre $\tan^2(\theta)$, indépendamment de n . En effet, en l'absence de blocage dipolaire, $\eta_0 Ap(\theta)$ est la densité d'atomes de Rydberg excités en champ électrique avec η_0 la densité d'atomes excités en champ nul (en supposant une excitation non saturée par puissance), étant donné que seul l'état $np_{3/2}$ est couplé par laser à l'état $7s$. Alors que dans le cas de l'état $40p_{3/2}$, la courbe d'excitation est relativement proche de la courbe théorique de diminution de la force d'oscillateur, cette courbe s'en éloigne de plus en plus rapidement lorsque n croît.

Pour vérifier la possibilité du blocage dipolaire, donnons une valeur du couplage dipôle-dipôle entre atomes de Rydberg qu'on pourrait attendre en l'absence d'un tel blocage, i. e. en exprimant que $\eta_0 Ap(\theta)$ est la densité d'atomes de Rydberg excités en champ électrique dans la formule (4.17).

En champ électrique F faible, la variation de l'interaction dipôle-dipôle moyenne est donc $W_m \propto n^{14} F^2$ ($\mu_{pd} \propto n^2$ et $4Ap(\theta)Ad(\theta) \propto n^{-10}$ car $\tan(\theta) = \frac{-\mu_{pd} F}{\Delta/2}$ et $\Delta \propto n^{-3}$), expression à comparer à la saturation expérimentale de l'excitation $\alpha(n) \propto -3.1 \times n^{6.7} F$. Le modèle de la section 4.3.3 montre que cette variation est compatible avec le blocage dipolaire. L'expression $-3.1 n^{6.7} F$ est curieusement assez proche de la dépendance en n du décalage Stark des états np , $\delta_{np} \propto n^{-7} \times F^2$. Ceci pourrait plaider pour une influence possible des ions (ils créent une charge d'espace ΔF responsable d'un décalage Stark $\Delta E \propto n^{-7} \times F \Delta F$). Il n'est pas a priori possible d'écarter leur rôle. Cependant, le nombre d'ions, maximum pour l'état $85p_{3/2}$ est à peine détectable en champ nul (< 80) et diminue rapidement en champ électrique, linéairement avec le nombre d'atomes excités. Le délai de détection⁶ est de l'ordre de 700 ns et une ionisation par collisions ou rayonnement du corps noir a une grande probabilité d'intervenir pendant ce temps, i. e. après l'excitation. Des études plus détaillées

⁶Le champ électrique d'ionisation pulsé varie très faiblement pendant cet intervalle de temps.

seront fournies dans la suite de ce paragraphe, mais il est probable que ces ions ne jouent pas un rôle important.

La courbe relative à l'interaction dipôle-dipôle moyenne donnée par l'équation (4.17) dans le cas de l'excitation de l'état $85p_{3/2}$ est présentée Fig. 4.9 (a), pour une densité pic d'atomes de Rydberg $\eta_0 \sim 2.5 \times 10^8$ at/cm³. Un couplage de 10-12 MHz entre atomes voisins serait attendu en champ électrique si la densité d'atomes de Rydberg excités était $\eta_0 A_p(\theta)$. Cette valeur est déjà beaucoup plus élevée que la valeur de la résolution spectrale de l'excitation $\Delta\nu \sim 7$ MHz (obtenue en champ nul et pour des n bas dans cette expérience). Ceci justifie l'observation d'un fort blocage dipolaire de l'excitation.

S'il est tenu compte de la variation de l'amplitude d'excitation observée (en tenant compte de la suppression de l'excitation et donc du nombre d'atomes excités expérimentalement pour calculer la densité atomique moyenne dans l'état Rydberg à la fin de l'excitation), l'interaction dipôle-dipôle moyenne sature très rapidement autour d'une valeur d'environ 5-6 MHz (cf. Fig. 4.9 (b)). Le blocage dipolaire de l'excitation n'intervient que si le couplage dipôle-dipôle (4.17) entre deux atomes est suffisant pour que l'excitation d'un deuxième atome soit mise hors résonance. En première approximation, l'excitation d'un deuxième atome est impossible si le couplage dipôle-dipôle W est supérieur à la largeur spectrale de l'excitation $\Delta\nu$, soit $W_m > \Delta\nu$. La valeur $W_m \approx 5 - 6$ MHz est peut être un peu sous-estimée si on la compare à la condition de blocage $W_m > \Delta\nu$, d'autant plus qu'elle concerne la densité pic atteinte au centre du volume d'excitation. Cependant, on verra que pour $W_m > \frac{\Delta\nu}{2}$, la possibilité d'excitation d'un deuxième atome au voisinage d'un premier atome est déjà diminuée de moitié (cf résultat du paragraphe 4.4.4.1). Par ailleurs, la densité atomique n'est pas déterminée pour cette étude à mieux qu'un facteur 3 près, elle est probablement sous-évaluée dans cette expérience. En effet, un facteur au moins deux fois plus élevé est probable dans cette expérience lorsqu'on compare les nombres d'atomes excités dans cette expérience par rapport aux nombres d'atomes excités mieux calibrés dans l'expérience 4.3.2. L'évaluation de la densité dépend beaucoup des paramètres expérimentaux que sont les waists des lasers et la taille caractéristique du PMO. Des études en densité présentées dans la section 4.3.2 apporteront les résultats quantitatifs nécessaires, mais d'ores et déjà, nous sommes certains d'observer le blocage dipolaire.

Une attention particulière doit aussi être portée à la largeur des raies d'excitation en champ électrique. La figure 4.10 montre un élargissement sensible en fonction du champ électrique appliqué, mais aussi en fonction de n . L'élargissement en fonction du champ électrique appliqué est facilement interprété en considérant les spectres de la figure 4.5 : la saturation par blocage est plus nette au centre de la raie que sur les ailes (moins d'atomes sont excités sur les ailes, l'effet du blocage y est donc plus faible). La mesure de la largeur à mi-hauteur révèle ainsi un élargissement apparent (à noter qu'en présence de blocage, la raie d'excitation perd son caractère lorentzien). L'élargissement en fonction de n doit probablement être interprété comme étant dû à une saturation de l'excitation en champ nul, en raison de l'interaction $pp \leftrightarrow ss'$ qui devient très forte quand n augmente. Cette étude est détaillée dans la section 4.3.2.

En conclusion, on peut dire que la suppression d'excitation mesurée expérimentalement, pouvant atteindre 60% de l'excitation attendue en l'absence de blocage, est très prometteuse. Cette saturation est à l'origine d'un élargissement apparent des raies d'excitation. Un point important confirmé théoriquement par le modèle de champ local de la section 4.3.3 est que la limitation de l'excitation par le blocage dipolaire varie comme n^7 à densité d'atomes excités en champ électrique nul fixée et donc semble varier comme la racine carrée du décalage d'énergie dipôle-dipôle calculée par l'équation (4.17). De ce fait, ce résultat pourrait supposer que la

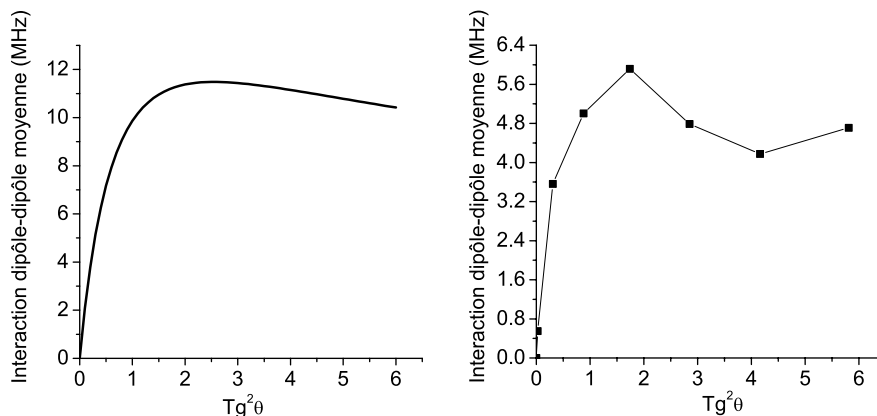


FIG. 4.9 – (a) Interaction dipôle-dipôle moyenne calculée avec la formule (4.17) pour deux atomes séparés par une distance égale à l’espacement internucléaire moyen dans le cas de l’excitation de l’état $85p_{3/2}$ de la Fig. 4.7. (b) Calcul prenant en compte le nombre d’atomes réellement excités en champ électrique. Autrement dit, le terme $\eta_0 Ap(\theta)$ de la formule (4.17) est remplacé par la densité obtenue expérimentalement dans l’état excité. L’interaction moyenne entre deux atomes au centre de la zone d’excitation paraît saturer autour d’une valeur de 5-6 MHz.

saturation de l’excitation, à champ électrique fixé évolue en fonction de la densité d’atomes dans l’état fondamental η_f comme $\sqrt{\eta_f}$ (η_f est reliée à η_0 via $\eta_0 = p_e \eta_f$, où p_e est la probabilité d’excitation). L’imprécision sur le calcul des densités, la taille du PMO n’étant pas mesurée, ne permet pas d’apporter de résultats vraiment quantitatifs. On peut cependant affirmer que, comme attendu, la densité moyenne d’atomes excités dans l’état Rydberg est limitée à une valeur telle que l’interaction dipôle-dipôle entre deux atomes séparés par l’espacement internucléaire moyen soit de l’ordre de la résolution spectrale de l’excitation. Des mesures complémentaires décrites dans les sections suivantes ont permis de mieux chiffrer l’interaction dipôle-dipôle et le blocage dipolaire pour les comparer aux valeurs attendues.

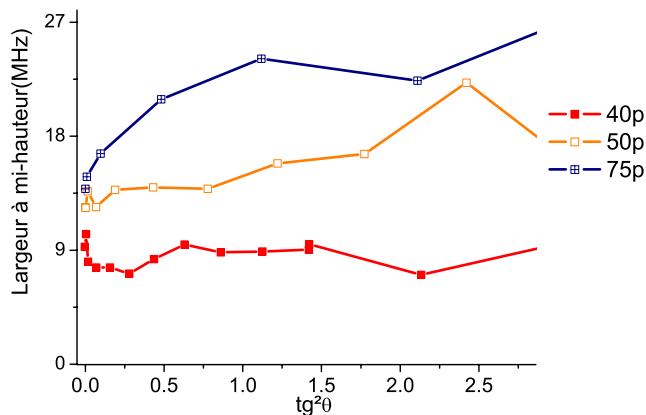


FIG. 4.10 – Élargissement des raies correspondant aux données de la Fig. 4.7 (n variant de 40 à 85) en fonction de $\tan^2 \theta$ (donc du champ électrique). La largeur est mesurée à mi-hauteur (FWMH).

4.3.2 Etude en fonction de la densité, comparaisons avec l'excitation des états $np_{1/2}$.

4.3.2.1 Introduction

Afin de pouvoir affirmer que la diminution de l'excitation est vraiment due au blocage dipolaire, nous avons prouvé sa dépendance en fonction de la densité atomique initiale (dans l'état $7s$), ou, ce qui revient quasiment au même en fonction de l'intensité du laser Ti:Sa. Il s'est avéré nécessaire de réaliser une excitation sur un petit volume d'excitation pour que la densité atomique du PMO y soit quasiment homogène et que le volume d'excitation soit indépendant de la taille du PMO.

Des études en densité ont été réalisées avec les conditions expérimentales de la section 4.3.1 pour les états $np_{3/2}$. Elles n'ont pas permis de conclure. Différentes raisons peuvent être invoquées pour cela. Les résultats de la section précédente ont permis d'émettre l'hypothèse d'une variation en $\sqrt{\eta_0}$ de la saturation de l'excitation par blocage dipolaire. Cette hypothèse suggère une variation rapide aux faibles densité puis une saturation de l'efficacité du blocage dipolaire aux plus fortes densités. Cette expérience est donc difficile car il n'est pas évident d'obtenir une bonne stabilité de l'excitation et donc du nombre d'atomes détectés pour de très faible densité. La plage de variation de la densité d'atomes excités dans l'état Rydberg n'était vraisemblablement pas suffisante pour faire une observation probante. D'importantes améliorations ont dû aussi être faites, qu'elles concernent la stabilité du PMO, la stabilité des champs électriques ou l'excitation laser. Dans l'expérience 4.3.1, les faisceaux lasers du Ti:Sa et de la diode 1470 était contropropageants, définissant un volume d'excitation allongé et très inhomogène. Dans cette situation, alors qu'une partie des atomes se trouvent dans une situation de fort blocage, l'excitation d'autres atomes n'est pas du tout bloquée, ce qui peut dans une certaine mesure fausser le résultat de l'étude en densité. Enfin, le problème de la saturation en champ nul, dû à l'interaction $pp \leftrightarrow ss'$ ou le rôle de l'excitation et de la saturation laser par puissance n'étaient pas maîtrisés.

Une nouvelle expérience présentée dans cette section et réalisée récemment par M. Viteau et A. Chotia dans le cadre de leur thèse au Laboratoire Aimé Cotton a permis de montrer la dépendance en densité. La diode 1470 est focalisée sur le centre du PMO avec un waist de $105 \mu\text{m}$ suivant un axe faisant un angle de 67.5° par rapport à l'axe de propagation du faisceau laser Ti:Sa. Celui-ci est focalisé sur le PMO avec un waist de $75 \mu\text{m}$ (le positionnement des waists au niveau du PMO se fait simplement en utilisant la saturation laser de l'excitation : si l'intensité laser est supérieure à l'intensité de saturation au point de focalisation, le minimum d'excitation est obtenu lorsque ce point de focalisation se trouve sur le centre du PMO⁷.)

A une relativement bonne approximation, la densité dans l'état Rydberg peut être mise sous la forme suivante :

⁷En régime d'excitation non saturé, le nombre d'atomes excités dans l'état $7s$ est par exemple :

$$N_{tot} \propto \int 1/2 \frac{I_{1470}(\rho)}{I_{1470,sat}} n_{PMO}(\vec{r}) 2\pi \rho d\rho dz \propto \frac{P}{2\pi I_{1470,sat} (\sigma_{1470}^2 + \sigma_{MOT}^2)} \quad (4.19)$$

où σ_{1470} est la dimension caractéristique à $1/\sqrt{e}$ du faisceau gaussien de la diode 1470 de puissance totale P se propageant suivant l'axe z et σ_{PMO} celle du PMO. Cette valeur est indépendante de σ_{1470} si σ_{PMO} est suffisamment grand. En régime d'excitation non saturé, le nombre d'atomes excités est indépendant de la focalisation du laser. Cette propriété n'est plus vraie en présence de saturation de l'excitation :

$$N'_{tot} \propto \int \frac{1/2}{1 + \frac{I_{1470,sat}}{I_{1470}(\rho)}} n_{PMO}(\vec{r}) 2\pi \rho d\rho dz < N_{tot}$$

$$n_{Ryd}(\vec{r}) = \beta \frac{1}{1 + \frac{I_{1470,sat}}{I_{1470}(\vec{r})}} \frac{1}{1 + \frac{I_{TiSa,sat}}{I_{TiSa}(\vec{r})}} n_{PMO}(\vec{r}) \quad (4.20)$$

où $I_{1470,sat}$ et $I_{TiSa,sat}$ sont les intensités de saturation des transitions $6p_{3/2}$, $F = 5 \rightarrow 7s_{1/2}$, $F = 4$ et $7s_{1/2}$, $F = 4 \rightarrow np$ respectivement. $n_{PMO}(\vec{r})$ est la densité d'atomes dans l'état $6s_{1/2}$, $F = 4$ initialement dans le PMO à la position \vec{r} . β est un coefficient caractérisant l'efficacité de l'excitation.

Les intensités de saturation $I_{1470,sat}$ et $I_{TiSa,sat}$ et β sont des coefficients qui dépendent de nombreux paramètres, et notamment de l'intensité et des décalages des lasers pièges. L'expression (4.20) est relativement valide à faible intensité.

Pour obtenir une variation de la densité atomique dans l'état $7s$, nous pouvons soit faire varier la puissance de la diode 1470, soit contrôler le nombre d'atomes dans l'état $6s_{1/2}$, $F = 4$ (et maintenir constante l'intensité laser de la diode 1470). La première option semble a priori aisée, mais les problèmes de saturation (et les problèmes d'excitations multiphotoniques) peu souhaités pourraient venir perturber la mesure. Nous avons utilisé l'autre option en transférant une partie de la population du niveau hyperfin $F = 4$ vers le niveau $F = 3$: la coupure du laser repompeur pendant un temps de l'ordre de 0-1 ms permet de transférer de 0 à 100% de l'excitation vers l'état hyperfin $F = 3$. Typiquement, nous coupons le laser repompeur pendant un temps de l'ordre de 300 μs pour obtenir une diminution d'un facteur 2 de la densité $n_{PMO}(\vec{r})$ (lorsque la diode 1470 n'est pas branchée⁸). La saturation par la puissance du laser Ti:Sa doit être bien contrôlée pour l'étude en densité car elle cause un élargissement des raies d'excitation qui peut minimiser l'effet du blocage dipolaire.

4.3.2.2 Excitation de l'état $70p_{3/2}$ en fonction de la densité

Le nombre d'atomes excités a été étudié en fonction de l'intensité du laser Ti:Sa pour deux densités initiales d'atomes dans l'état $7s$, dans le cas de l'excitation de l'état $70p_{3/2}$. Ces deux densités sont choisies égales à $D1=4 \pm 2 \times 10^9$ at/cm³ (laser repompeur en continu) et $D2=D1/2.75=1.5 \pm 2 \times 10^9$ at/cm³ (laser repompeur coupé pendant 300 μs). Les intensités du laser Ti:Sa sont choisies pour être inférieures à l'intensité de saturation de la transition $7s \rightarrow 70p_{3/2}$, $|m_j| = 1/2$, de l'ordre de 280 W/cm² en champ nul. On notera que cette intensité de saturation augmente en champ électrique car l'efficacité de l'excitation diminue (l'intensité de saturation en champ électrique $I_{TiSa}(F)$ est donnée par $I_{TiSa}(F) = Ap(\theta)I_{TiSa}(0)$ où $I_{TiSa}(0)$ est l'intensité de saturation en champ nul).

L'ensemble des données, reportées sur la figure 4.11, fait apparaître une forte limitation du nombre d'atomes excités dans l'état $70p_{3/2}$ en présence d'un champ électrique ($F' = 0.25$ V/cm), comparé à ce qui est obtenu en champ électrique nul. Cet effet est de plus en plus marqué à mesure que l'intensité du laser Ti:Sa augmente. Nous détaillons et interprétons ces données dans les paragraphes suivants. Avant de considérer les courbes obtenues pour l'excitation en présence de champ électrique, la légère saturation que l'on voit apparaître pour une excitation en champ nul dans le cas de la densité initiale plus forte (D1) fait l'objet d'une étude particulière, assez complexe.

⁸Ce temps peut varier suivant les conditions expérimentales. En présence de la diode 1470, une partie de la désexcitation spontanée du niveau $7s$ retombe par cascade dans l'état $6s_{1/2}$, $F = 3$ (noir en l'absence du laser repompeur). Dans cette expérience, la diminution du signal Rydberg est ainsi plutôt d'un facteur 3 lorsque le laser repompeur est coupé pendant 300 μs en présence de la diode 1470.

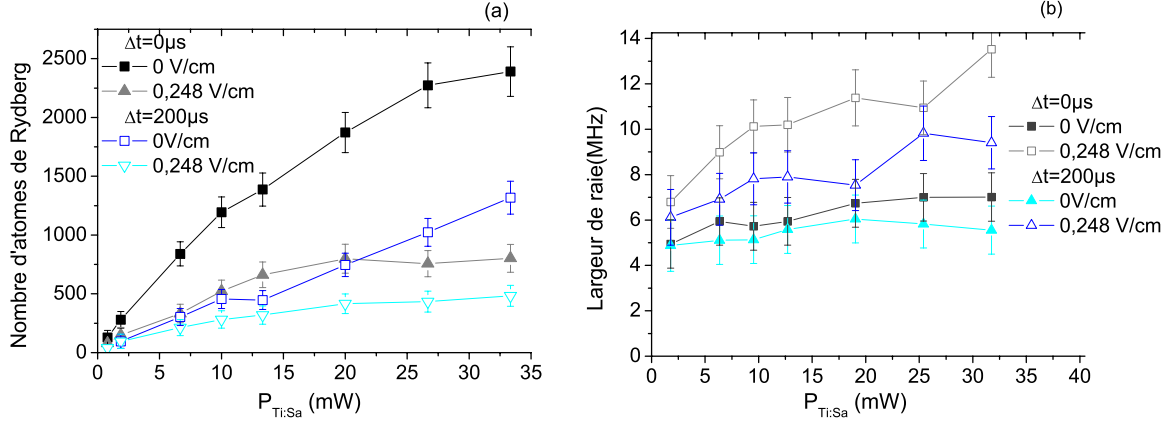


FIG. 4.11 – Analyse des raies d'excitation de l'état $70p_{3/2}, |m_j| = 1/2$ en fonction de la puissance du laser Ti:Sa, pour deux densités d'atomes initialement dans l'état $7s$, D1 et D2 (voir texte) et pour deux champs électriques différents ($F = 0$ V/cm, correspondant à $\tan^2 \theta = 0$ et $F' = 0.25$ V/cm, correspondant à $\tan^2 \theta = 1$). (a) Nombre d'atomes excités lorsque le laser Ti:Sa est résonant. (b) Largeur à mi-hauteur des raies d'excitation.

Limitation de l'excitation en champ nul

L'excitation semble approximativement linéaire en champ nul dans le cas de la plus faible densité, D2 (cf Fig. 4.11 (a)). Par contre, l'excitation est saturée en champ nul dans le cas de la densité initiale plus forte, D1. Une hypothèse pour interpréter cette saturation est l'interaction dipôle-dipôle $pp \leftrightarrow ss'$. De l'ordre de 1250 atomes sont excités en champ nul lorsqu'apparaît la saturation, pour une puissance du laser Ti:Sa de 12.5 mW. Au centre des faisceaux, la densité d'atomes de Rydberg est égale à $D \sim 10^{-9}$ at/cm³, soit une distance interatomique moyenne $R_d \sim 6.2 \mu\text{m}$ et un couplage dipôle-dipôle moyen entre deux atomes $W(R_d) \sim \frac{\sqrt{2}\mu_1\mu_2}{R_d^3} \sim 32.5$ MHz dans un modèle à deux niveaux d'énergie $pp \equiv |pp\rangle$ et $ss' \equiv \frac{1}{\sqrt{2}}(|ns, (n+1)s\rangle + |(n+1)s, ns\rangle)$ ($\mu_1 = \mu_{sp}$ et $\mu_2 = \mu_{s'p}$ sont les moments dipolaires des transitions $ns \leftrightarrow np$ et $(n+1)s \leftrightarrow np$).

Pour vérifier la possibilité du blocage dipolaire, considérons en première approximation les états $|+\rangle$ et $|-\rangle$, combinaisons linéaires des états pp et ss' (voir la définition (1.78)), le niveau d'énergie $|-\rangle$ étant relié asymptotiquement au niveau pp lorsque l'interaction dipôle-dipôle devient très faible. L'état $|-\rangle$ est d'énergie $E_{|-\rangle} = \frac{\Delta}{2}(1 - \sqrt{1 + (\frac{W(R)}{\Delta/2})^2})$, avec $\Delta = E(ss') - E(pp)$ l'écart d'énergie entre les niveaux ss' (d'énergie $E(ss')$) et pp (d'énergie $E(pp)$ prise égale à 0 par référence). Pour $n = 70$, l'écart d'énergie est $\Delta \sim 187$ MHz. En pratique, lorsqu'un premier atome est excité, aucun autre atome ne peut être excité à l'intérieur d'une sphère de rayon moyen R_{min} tel que le décalage d'énergie du niveau $|-\rangle$ par rapport au niveau pp dû à l'interaction dipôle-dipôle entre deux atomes soit, en première approximation, supérieur à la largeur spectrale de l'excitation $\Delta\nu$. Dans ce simple modèle à deux niveaux, ceci conduit à $\frac{\Delta}{2}(\sqrt{1 + (\frac{W(R_{\text{min}})}{\Delta/2})^2} - 1) > \Delta\nu$. Finalement, $R_{\text{min}} \sim 6.1 \mu\text{m}$, ce qui est relativement proche de la distance interatomique au centre du nuage d'atomes de Rydberg ($R_d \sim 6.2 \mu\text{m}$). Il est compréhensible que la limitation de l'excitation apparaisse pour une telle densité pic. La distance internucléaire moyenne prise sur l'ensemble de l'échantillon de forme gaussienne

est $R_d \sim 8.6 \mu\text{m}$. Ceci implique que l'excitation de $\frac{1-e^{-\left(\frac{R_{min}}{R_d}\right)^3}}{2} \sim 15\%$ des atomes a déjà été bloquée⁹. Cette valeur est compatible avec le début de la limitation de l'excitation observée dans notre étude.

Une question est de savoir s'il faut parler d'un blocage de l'excitation de type Van der Waals ou d'un blocage dipôle-dipôle résonant : l'interaction est dite de type dipôle-dipôle dès que l'écart d'énergie entre les niveaux pp (énergie $E(pp)$) et ss' (énergie $E(ss')$) donné par $\Delta = E(ss') - E(pp)$ est inférieur à $2W(R) \sim 2\frac{\sqrt{2}\mu_1\mu_2}{R^3}$, soit $W \sim \frac{\sqrt{2}\mu_1\mu_2}{R^3} > \frac{\Delta}{2}$ (voir la justification dans la note 1 page 141). En considérant l'excitation d'un atome en présence d'autres atomes déjà excités dans l'état Rydberg, lorsque la densité d'atomes de Rydberg est la densité pic D , l'interaction de cet atome avec son plus proche voisin peut être considérée dans 30% des cas comme étant de type dipôle-dipôle¹⁰. Le blocage est donc majoritairement de type Van der Waals, d'autant que l'évaluation donnée ici considère la densité pic et non la densité moyenne. Cette valeur tombe à 12% en considérant la densité moyenne.

Un point important et que nous avons déjà précisé dans la section 4.2 est qu'il n'est en fait pas possible de décrire l'interaction $pp \leftrightarrow ss'$ avec seulement deux niveaux. Nous y revenons en détail dans le modèle élaboré p. 181. Nous verrons que parmi les nombreux états moléculaires reliés à l'asymptote $np_{3/2}np_{3/2}$, certains sont fortement déplacés par l'interaction dipôle-dipôle. Un grand nombre d'états sont au contraire tout simplement non déplacés par l'interaction dipôle-dipôle et ceci explique que le blocage de l'excitation reste modéré en champ nul. Pour le potentiel le plus dépendant de l'interaction dipôle-dipôle, l'énergie se met sous la forme $E_{|- \rangle} = \frac{\Delta}{2} \left(1 - \sqrt{1 + \left(\frac{W_{eff}(R)}{\Delta/2}\right)^2}\right)$ avec $W_{eff} = \frac{3\sqrt{2}\mu_1\mu_2}{R^3}$, ce qui donne $R_{min} \sim 8.9 \mu\text{m}$. Pour un tel potentiel, le couplage dipôle-dipôle entre deux atomes séparés par l'espacement internucléaire moyen est d'environ 37 MHz pour $R_d \sim 8.6 \mu\text{m}$, restant donc plus faible que $\Delta/2 \approx 93$ MHz. Ceci justifiera dans une certaine mesure l'approximation consistant à n'utiliser que le

⁹Cette formule est établie de manière statistique. Elle est basée sur le fait qu'en l'absence d'interaction, les atomes excités sont répartis de manière stochastique. En l'absence d'interaction, un état du système $\Psi(N_0)$ contient N_0 excitations Rydberg, dont un certain nombre de paires proches. En présence d'une interaction, considérée comme faible, l'excitation de ces paires d'atomes proches n'est pas possible. L'approximation consiste à considérer que l'état du système en présence de cette interaction est l'état du système $\Psi(N_0)$, dans lequel on remplace chaque paire d'atomes excités proches par un seul atome excité. On sait par ailleurs que dans le cas d'une excitation uniforme et lorsque les atomes sont indépendants les uns des autres, pour chaque atome dans l'état Rydberg, la probabilité qu'un plus proche voisin se situe à une distance inférieure à R_{min} est simplement

$1 - e^{-\frac{R_{min}^3}{R_d^3}}$ d'après le résultat de la distribution d'Erlang. La proportion de paires proches bloquées est donc directement égale à $\frac{1-e^{-\left(\frac{R_{min}}{R_d}\right)^3}}{2}$. Cette formule utilisée ici est justifiée plus rigoureusement à la page 197. Elle n'est valable que pour de faibles taux d'excitation, lorsqu'il est possible d'isoler de leur environnement les paires d'atomes proches potentiellement excités.

Il est à noter que dans cette formule, R_d est le rayon de Wigner-Seitz relié à la densité n_0 d'atomes excités sans la présence des interactions entre atomes de Rydberg ($n_0^{-1} = \frac{4}{3}\pi R_d^3$). Le résultat est très proche si on prend $n \sim n_0$ pour un faible taux de blocage. On pourrait écrire un peu plus rigoureusement (cf p. 197), $n = \frac{n_0}{2} \left(1 + e^{-R_{min}^3 \frac{4}{3}\pi n_0}\right)$, ce qui permet d'évaluer le blocage à $\frac{n_0-n}{n_0} \sim 18\%$ au lieu de 15%. La densité n étant déterminée à partir de la formule (4.20) donc sans tenir compte de la possibilité du blocage dipolaire, le résultat $\frac{n_0-n}{n_0}$ évalué ici n'est pas tout à fait exact non plus. On se contentera dans tous les cas d'évaluer la

fraction d'atomes dont l'excitation est bloquée par le terme $\frac{1-e^{-\left(\frac{R_{min}}{R_d}\right)^3}}{2}$.

¹⁰Dans le cas d'une excitation uniforme et lorsque les atomes sont indépendants les uns des autres, pour chaque atome dans l'état Rydberg, la probabilité qu'un plus proche voisin se situe à une distance inférieure à

R_d est $1 - e^{-\frac{R_{min}^3}{R_d^3}}$ d'après le résultat de la distribution d'Erlang. En présence d'un blocage de l'excitation, ceci n'est plus vrai, mais le blocage de l'excitation reste ici assez faible et il est probable que de cette manière nous calculons le bon ordre de grandeur.

terme asymptotique d'interaction Van der Waals¹¹, d'autant que pour les autres potentiels, l'approximation ne pose pas de problème.

Excitation en champ électrique

Regardons à présent l'évolution du nombre d'atomes excités en champ électrique. Alors que l'excitation en champ nul dans le cas de la densité plus faible D2 était approximativement linéaire, elle sature en champ électrique (champ électrique F' tel que $\tan\theta(F') = 1$), et cette saturation apparaît à très basses puissances laser. La saturation ou limitation de l'excitation est encore plus marquée pour la densité D1. Un bon moyen de caractériser la limitation de l'excitation par le blocage dipolaire est de constater l'élargissement apparent dû au blocage au centre de la raie d'excitation (cf Fig. 4.11 (b)). Cet élargissement est bien présent dès les plus faibles puissances d'excitation utilisées. Alors qu'en champ nul et à faible puissance, la largeur de raie est de 5 MHz (quasiment constante en fonction de la puissance pour la densité initiale D2), elle est déjà d'environ 6-7 MHz en champ électrique.

Pour une puissance d'excitation de 2 mW, environ 100 atomes sont excités dans l'état Rydberg, soit une densité pic $\sim 8 \times 10^{-7}$ at/cm³, correspondant à une distance internucléaire moyenne d'environ 14.3 μm . En considérant simplement l'interaction dipôle-dipôle en champ électrique de valeur "moyenne" $W_m \sim f(\theta) \frac{\mu_{pd}^2}{R_d^3}$, on trouve que la distance interatomique minimale d'excitation d'une paire est $R_{min} \sim 9.3 \mu\text{m}$. Pour seulement 100 atomes excités, le pourcentage d'atomes dont l'excitation est bloquée atteint déjà 12 % au centre de la zone d'excitation, ce qui explique pourquoi la saturation apparaît pour des puissances d'excitation très faibles en champ électrique.

Il est difficile d'établir expérimentalement un résultat quantitatif du blocage de l'excitation du fait du très faible nombre d'atomes excités, notamment à très basses puissances où le rapport R entre le nombre d'atomes excités en champ électrique et le nombre d'atomes excités en champ nul est assez fluctuant. La décroissance de ce rapport en fonction de la puissance d'excitation reste cependant assez nette pour des puissances supérieures à 2 mW (cf Fig. 4.12 (a)). L'effet de densité est proprement démontré, à la fois en faisant varier la puissance du laser Ti:Sa ou la densité atomique initiale. Dans le cas de la densité D1, la diminution du rapport R est moins nette. Des mesures à faible puissance seraient nécessaires (mais difficiles) pour observer une probable chute très rapide de l'excitation. Par ailleurs, le blocage en champ nul (dû à l'interaction $pp \leftrightarrow ss'$) pour des puissances plus élevées ne permet pas probablement de bien rendre compte du blocage en champ électrique (le couplage $pp \leftrightarrow ss'$ diminue en fonction du champ électrique en raison du décalage Stark de l'état p).

Contribution possible des ions

Il est important d'évaluer proprement la contribution des ions à un possible blocage de l'excitation. Un maximum d'ions provenant principalement de collisions froides est obtenu au centre des raies. Ces ions pourraient mener à une saturation de l'excitation au centre de la raie spectrale, tout comme le blocage dipolaire. Nous voyons premièrement Fig. 4.13 que moins de 10 ions sont excités en champ électrique pour la plus faible densité (D2). Ces 10 ions au maximum sont détectés après un délai entre excitation et détection égal à 700 ns.

¹¹Il est vrai qu'au centre du nuage d'atomes excités, l'interaction peut être assez souvent de nature dipôle-dipôle résonante entre un atome et son plus proche voisin excité, pour cet état moléculaire en particulier. Nous verrons p. 181 qu'en fait, l'atome plus proche voisin ne joue pas forcément le plus grand rôle. Il sera négligé en première approximation et on n'utilisera que le terme asymptotique d'interaction Van der Waals.

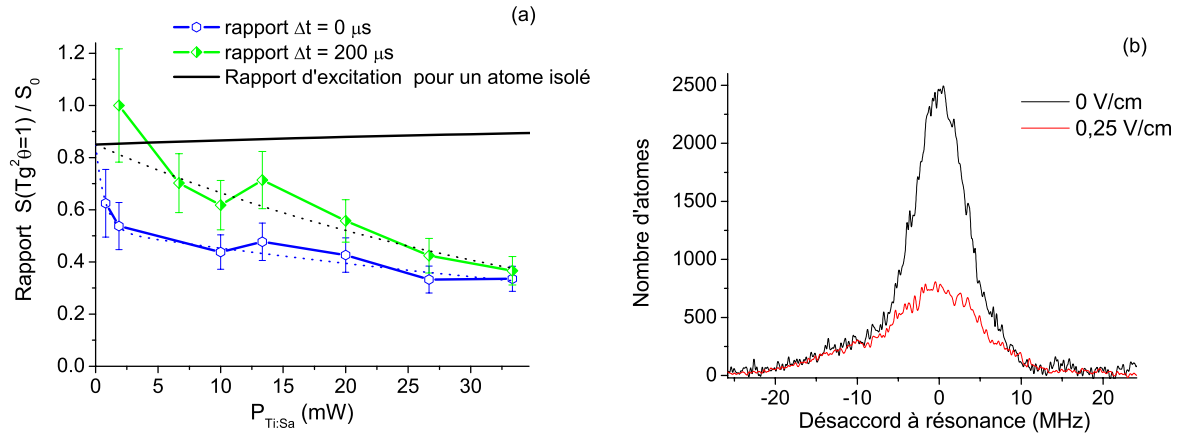


FIG. 4.12 – (a) Rapport des nombres d'atomes excités dans l'état $70p_{3/2}$, $|m_j| = 1/2$ en champ électrique ($F'=0.25$ V/cm) et en champ nul ($F=0$ V/cm) pour les densités D1 et D2 d'atomes initialement dans l'état 7s (cf. Fig. 4.11). Les courbes en pointillés représentent des ajustements empiriques des données expérimentales. Elles convergent vers la valeur 0.85 en champ nul qui n'est autre que la valeur attendue pour l'excitation d'un atome en régime non saturé. La courbe noire représente l'évolution théorique du rapport en l'absence d'interactions (l'augmentation en fonction de la puissance est simplement due au fait que l'excitation n'est pas totalement linéaire en fonction de la puissance du laser Ti:Sa mais elle est donnée par la formule 4.20). (b) Spectres obtenus pour une puissance du laser Ti:Sa égale à 35 mW, une densité D1 d'atomes dans l'état 7s et les deux champs F et F' .

La variation temporelle du nombre d'ions étant approximativement linéaire à temps courts (cf l'étude sur l'état $100p_{3/2}$ Fig. 6.13), au plus trois ions sont formés pendant l'excitation (ce nombre est probablement plus faible, cette évaluation considère en effet le nombre d'ions formés après 300 ns pour une excitation instantanée). Cependant, un seul ion crée à une distance $d_0 = 50 \mu\text{m}$ un champ $\frac{q}{4\pi\epsilon d_0^2}$ d'environ 6 mV/cm. Le décalage Stark correspondant dans le cas de l'état $70p_{3/2}$ pour $\tan^2\theta = 1$ est d'environ 18 MHz, il serait même de 118 MHz pour un atome de Rydberg placé à $20 \mu\text{m}$ de l'ion. La présence de tels ions devrait conduire à des fluctuations extrêmes qui ne sont pas observées. Donc il est raisonnable de penser que l'ionisation par collisions intervient après un laps de temps minimum, qu'elle peut même se poursuivre pendant l'évolution du champ électrique pulsée lente au départ. Nous avons remarqué par ailleurs sur les spectres de temps de vol qu'en fait une redistribution vers des états de Rydberg de n différents est observée. Autrement dit, nous détectons des ions que nous ne pouvons pas raisonnablement différencier d'atomes tels que $n > 75$.

Dans le cas de la plus forte densité D1, un nombre beaucoup plus conséquent d'ions est détecté, jusqu'à 120, soit au maximum 40 ions pouvant être formés pendant l'excitation. Ces quarante ions sont susceptibles de former un champ électrique d'au maximum 50 mV/V dans un volume gaussien (le champ est maximum à $\sqrt{2}\sigma$ du centre du nuage d'ions pour un nuage d'ions gaussien de rayon à $1/\sqrt{e}$, $\sigma \sim 50\mu\text{m}$), conduisant à un décalage Stark des niveaux d'énergie d'au plus 23 MHz en champ électrique nul. Ce champ serait cependant suffisant pour perturber l'excitation. Une étude plus précise devrait être entreprise afin de déterminer le nombre d'ions exact pouvant être formés pendant l'excitation (le délai entre excitation et détection doit être annulé). Un certain nombre de ces ions proviennent de collisions 7s-Rydberg ou 6p-Rydberg (cf section 6.3.2.2) : techniquement, il serait utile d'éliminer leur contribution après l'excitation en coupant très rapidement les lasers juste après l'excitation

(les lasers du PMO étaient utilisés en régime continu, et le faisceau de la diode 1470 était coupé après l'excitation mais avec un temps de coupure d'environ $1,5 \mu\text{s}$). L'autre partie des ions provient des collisions froides entre atomes de Rydberg induites par les forces dipolaires résultant de l'interaction attractive $p_{3/2}p_{3/2} \leftrightarrow ss'$ (cf section 6.3.2.1).

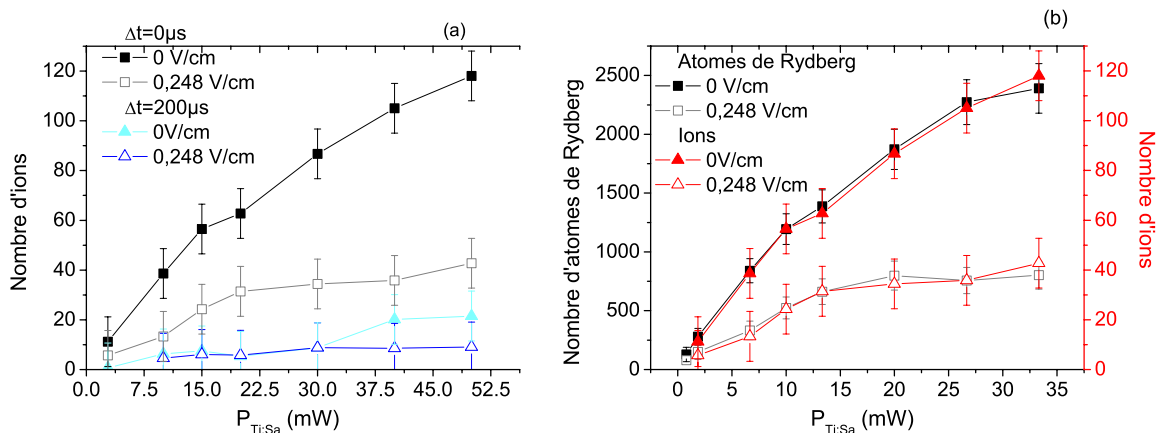


FIG. 4.13 – Analyse des nombres d'ions libres détectés après excitation de l'état $70p_{3/2}, |m_j| = 1/2$ dans les mêmes conditions que Fig. 4.11. (a) Nombre d'ions libres détectés lorsque le laser Ti:Sa est résonant. (b) Comparaison du nombre d'ions et du nombre d'atomes de Rydberg en fonction de la puissance du laser Ti:Sa, pour la densité initiale maximale (D1) dans l'état $7s$ et les deux champs électriques étudiés Fig. 4.11.

Remarque : Résonances de Förster pour les états de grand n Un certain nombre de réactions de transfert résonant pourraient intervenir dans l'excitation de l'état $70p_{3/2}$. Certaines résonances à deux corps sont autorisées en champ électrique pour les états $np_{3/2}$ telles que les réactions $np_{3/2} + np_{3/2} \rightarrow (n-1)p_{1/2} + nd_{3/2}$ ou $np_{3/2} + np_{3/2} \rightarrow (n-1)p_{1/2} + nd_{5/2}$. L'interaction dipôle-dipôle résonnante correspondant à la deuxième réaction (la plus efficace) est cependant au moins 20 fois plus faible que l'interaction dipôle-dipôle étudiée dans ce paragraphe¹². Des résonances à trois corps du type $np_{3/2} + np_{3/2} + np_{3/2} \rightarrow (n+1)p_{3/2} + ns_{1/2} + ns_{1/2}$ ou $np_{3/2} + np_{3/2} + np_{3/2} \rightarrow (n-1)p_{3/2} + (n+1)s_{1/2} + (n+1)s_{1/2}$ peuvent également être résonnantes pour des champs électriques relativement faibles ($\tan^2 \theta = 0.8 - 0.2$ pour $n = 40 - 80$). Elles sont rendues efficaces par le fait qu'elles peuvent correspondre à un échange quasi résonnant par interaction dipôle-dipôle de deux photons virtuels. En effet, les réactions à deux corps quasiment résonnantes $np_{3/2} + np_{3/2} \rightarrow ns_{1/2} + (n+1)s_{1/2}$ suivies de la deuxième réaction $(n+1)s_{1/2} + np_{3/2} \rightarrow ns_{1/2} + (n+1)p_{3/2}$ conduisent par exemple à la réaction $np_{3/2} + np_{3/2} + np_{3/2} \rightarrow (n+1)p_{3/2} + ns_{1/2} + ns_{1/2}$. Cependant de telles réactions

¹²L'interaction dipôle-dipôle est de l'ordre de $\frac{e^2}{R^3} (\cos^2 \frac{\theta}{2} \mu_{pd_1} + \sin^2 \frac{\theta}{2} \mu_{pd_2}) \frac{\sin \theta}{2} (\mu_{pd_3} + \mu_{pd_4})$ avec μ_{pd_1} le dipôle de la transition $np_{3/2} \rightarrow nd_{5/2}$, μ_{pd_2} le dipôle de la transition $(n-1)d_{5/2} \rightarrow (n+1)p_{3/2}$, μ_{pd_3} le dipôle de la transition $np_{3/2} \rightarrow (n-2)d_{3/2}$ et enfin μ_{pd_4} le dipôle de la transition $(n-1)p_{1/2} \rightarrow (n-1)d_{5/2}$, tous beaucoup plus faibles que le dipôle de la transition $np_{3/2} \rightarrow (n-1)d_{5/2}$. Pour simplifier, nous avons supposé dans l'expression précédente que θ est identique pour un champ électrique donné pour tous les états impliqués dans la réaction de transfert résonnant.

ne sont pas très probables pendant l'excitation avec les densités atomiques que nous utilisons¹³.

Conclusion Il est finalement mis en évidence une suppression d'excitation pouvant atteindre au moins 60% (cf les spectres de la Fig. 4.12 (b)), principalement attribuée au blocage dipolaire en champ électrique. Ce résultat est prometteur en information quantique car il démontre la possibilité de réaliser un blocage total de l'excitation dans une boule de diamètre $\sim 10 \mu\text{m}$ pour $n=80$. Les champs électriques utiles sont très faibles, 0.25 V/cm pour $\tan^2\theta = 1$ sur l'état $70p_{3/2}$ par exemple, de même que les puissances d'excitation. Les évaluations qualitatives concernant l'importance du blocage dipolaire sont en bon accord avec les observations. Un modèle plus complet est développé au paragraphe 4.3.3.

Quelques effets parasites peuvent perturber l'excitation et le blocage dipolaire. La charge d'espace créée par les ions est ainsi susceptible de mimer l'effet du blocage dipolaire. La chute de l'excitation en champ électrique serait très proche. Cependant, très peu d'ions sont formés et le blocage dipolaire reste présent, certes diminué, après coupure du laser repompeur pendant 300 μs , alors que le nombre d'ions est quasi nul. D'autres points sur lesquels il convient de discuter sont l'effet de la saturation par puissance ou l'effet de blocage Van der Waals due à l'interaction $pp \leftrightarrow ss'$.

4.3.2.3 Comparaison avec les états $np_{1/2}$

Afin de diminuer la contribution de l'interaction $pp \leftrightarrow ss'$ et de mieux étudier l'évolution du blocage dipolaire en champ électrique, l'excitation des états $np_{3/2}$ a été comparée à celle des états $np_{1/2}$. Pour l'état $70p_{1/2}$, le décalage $pp \leftrightarrow ss'$ est en effet de 908 MHz en champ nul au lieu de 187 MHz pour l'état $70p_{3/2}$. L'interaction $pp \leftrightarrow ss'$ est alors uniquement de type Van der Waals et la force d'attraction en $-6 \times \frac{C_6}{R^7}$ correspondante est beaucoup plus faible que pour l'état $70p_{3/2}$. Les collisions de type dipolaires sont donc beaucoup plus faibles et les nombres d'ions provenant des collisions froides entre atomes de Rydberg réduits. L'excitation d'états $np_{1/2}$ a été effectuée dans les mêmes conditions expérimentales que précédemment. Les évolutions en champ électrique de différents états sont présentées et confirment les résultats obtenus pour les états $np_{3/2}$. Ensuite, l'étude en densité de l'excitation de l'état $70p_{1/2}$ est présentée et permet une comparaison directe avec l'étude précédente, portant sur l'état $70p_{3/2}$.

Contrôle de l'excitation par champ électrique

La figure 4.14 présente la diminution de l'excitation en champ électrique pour les niveaux $60p_{1/2}$ et $120p_{1/2}$, légèrement moins rapide en champ électrique que pour les niveaux $np_{3/2}$ mais quasiment identique en fonction du paramètre $\tan^2\theta$ (l'espacement entre les niveaux $np_{1/2}$ et $nd_{3/2}$ est légèrement plus élevé qu'entre les niveaux $np_{3/2}$ et $nd_{5/2}$, par ailleurs le dipôle $\mu_{p_{1/2}d_{3/2}}$ de la transition $np_{1/2} \leftrightarrow nd_{3/2}$ est légèrement plus faible $\mu_{p_{1/2}d_{3/2}} = 3082.3 \text{ u.a.} = 0.957 \mu_{p_{3/2}d_{5/2}}$). Il est à noter également que l'excitation des états $np_{1/2}$ est moins efficace (l'intensité de saturation est environ 3.5 fois supérieure). Typiquement pour l'état $60p_{1/2}$, la

¹³Pour obtenir un ordre de grandeur du temps de transfert, on peut traiter le problème avec seulement trois niveaux, $|npnpnp\rangle$, $|ns(n+1)sn\rangle$ et $|nsns(n+1)p\rangle$ couplés deux à deux par interaction dipôle-dipôle avec les constantes de couplage Ω_1 et Ω_2 (les états $|npnpnp\rangle$ et $|nsns(n+1)p\rangle$ ne sont pas couplés). Le transfert est quasi-résonant avec un décalage d'énergie Δ entre les niveaux d'énergie des états $|npnp\rangle$ et $|ns(n+1)s\rangle$. La fréquence de Rabi effective de ce système à trois niveaux est, par analogie avec les systèmes optiques : $\Omega_{eff} = \frac{\Omega_1\Omega_2}{2\Delta}$. $\Omega_{eff} \sim 0.5 \text{ MHz}$ en moyenne pour une densité atomique de 10^9 at/cm^3 pour l'état $70p_{3/2}$: un transfert d'énergie interne totale pourrait avoir lieu après $\sim 2 \mu\text{s}$.

diminution du signal en champ faible est de l'ordre de $-0.152 \text{ (V/cm)}^{-1}$ pour une densité pic d'atomes en champ nul égale à 7.10^8 at/cm^3 , à comparer à la valeur $-0.238 \text{ (V/cm)}^{-1}$ trouvée au paragraphe 4.3.1 pour le niveau $60p_{3/2}$ pour une densité pic d'atomes en champ nul égale à $2.5.10^8 \text{ at/cm}^3$ (cependant, nous avons déjà précisé que la densité $2.5.10^8 \text{ at/cm}^3$ avait probablement été sous-estimée par au moins un facteur 2. Les densités sont en fait comparables). L'évolution des largeurs de raie en champ électrique suit également la même évolution, partant de quelques 5 MHz pour l'état $120p_{1/2}$ en champ nul pour aller jusqu'à plus de 20 MHz en champ électrique (cf Fig. 4.16).

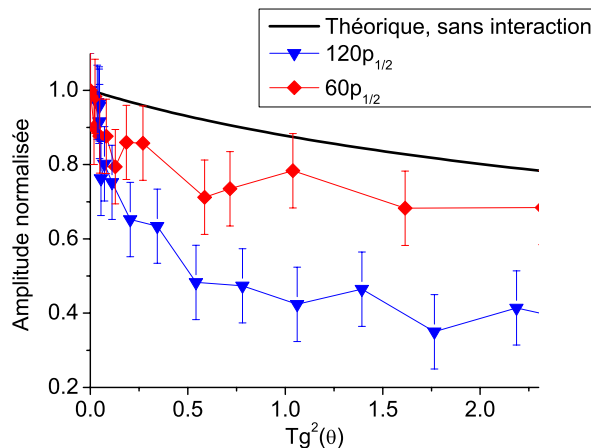


FIG. 4.14 – (a) Variation de l'amplitude d'excitation Rydberg en fonction du paramètre d'échelle $\tan^2 \theta$ pour les états $60p_{1/2}$ et $120p_{1/2}$. La courbe noire représente la diminution de l'amplitude attendue, $A_p(\theta)$, sans saturation par puissance et sans interaction entre atomes (cf. paragraphe (1.3.2.1)).

Les spectres du niveau $120p_{1/2}$ sont présentés sur la Fig. 4.15 pour une puissance du laser Ti:Sa de 184 mW pour deux champs électriques différents, 0 V/cm et 17.6 mV/cm ($\tan^2 \theta = 1$). De l'ordre de 270 atomes sont excités en champ nul (à noter que l'interaction $pp \leftrightarrow ss'$ est encore faible, ~ 320 MHz séparent les deux niveaux d'énergie) mais seulement une centaine en champ¹⁴.

Comportement de l'excitation en fonction de la densité Le comportement de l'excitation des états $np_{1/2}$ et $np_{3/2}$ est relativement similaire en champ électrique. Il reste à confirmer la dépendance en densité. Une étude de l'excitation en fonction de la puissance du laser Ti:Sa est proposée Fig. 4.17 pour l'excitation de l'état $70p_{1/2}$. L'excitation apparaît relativement linéaire en champ nul en fonction de la puissance du laser Ti:Sa (la saturation par puissance serait atteinte pour une puissance ~ 280 mW et l'interaction de type Van der Waals n'est pas suffisante pour induire une limitation de l'excitation). Par contre l'excitation sature en champ électrique (cf Fig. 4.17 (a)). Cette saturation apparaît pour un nombre d'atomes excités d'environ 300, soit une densité atomique pic $n_r \sim 2.5 \times 10^8 \text{ at/cm}^3$ et un espacement internucléaire moyen $R_m \sim 9.8 \mu\text{m}$, proche de la distance minimale moyenne d'excitation $R_{min} \sim 8.5 \mu\text{m}$ évaluée par la formule $W(R_{min}) > \Delta\nu$, traduisant l'effet du blocage dipolaire.

¹⁴Il est difficile d'évaluer l'écartement internucléaire moyen entre atomes de Rydberg excités car la densité à partir de laquelle apparaît la limitation de l'excitation avec les interactions (donc la densité à saturation) est très faible.

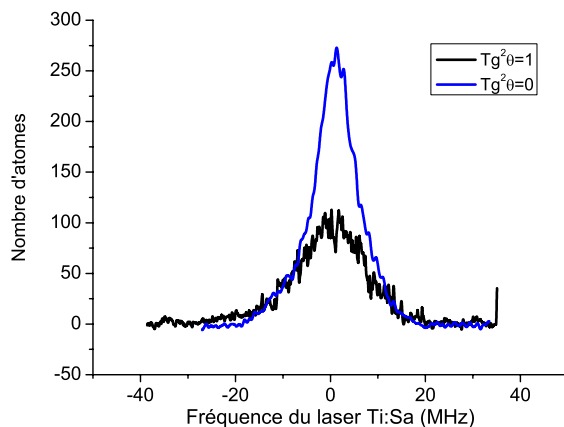


FIG. 4.15 – Spectres du niveau $120p_{3/2}$ en fonction de la fréquence du laser Ti:Sa (rapportée à 0 au centre de la raie), pour deux champs électriques, 0 mV/cm ($\tan^2 \theta = 0$) et 17.6 mV/cm ($\tan^2 \theta = 1$.)

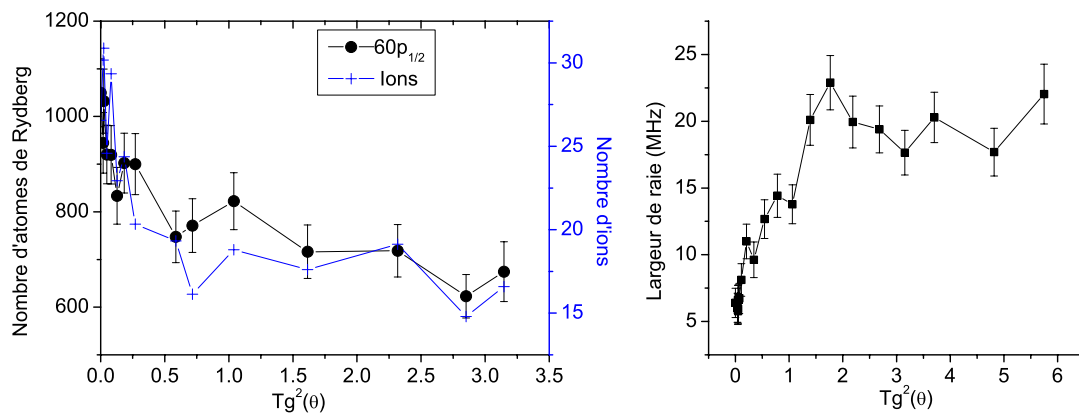


FIG. 4.16 – (gauche) Variation de l'amplitude d'excitation Rydberg en fonction du paramètre normalisé $\tan^2 \theta$ pour l'état $60p_{1/2}$ avec en comparaison l'évolution du nombre d'ions libres. (droite) Elargissement des raies correspondant aux données de la Fig. 4.14 dans le cas de l'état $120p_{1/2}$. La largeur est mesurée à mi-hauteur (FWMH).

Les élargissements de raie (cf Fig. 4.18 (a)) sont également caractéristiques du blocage de l'excitation. Enfin, nous présentons en Fig. 4.18 (b) le rapport R des nombres d'atomes excités en champ électrique ($\tan^2 \theta \sim 1$) et en champ nul. La diminution est relativement monotone et atteint la valeur de 0.5 pour une puissance égale à 180 mW.

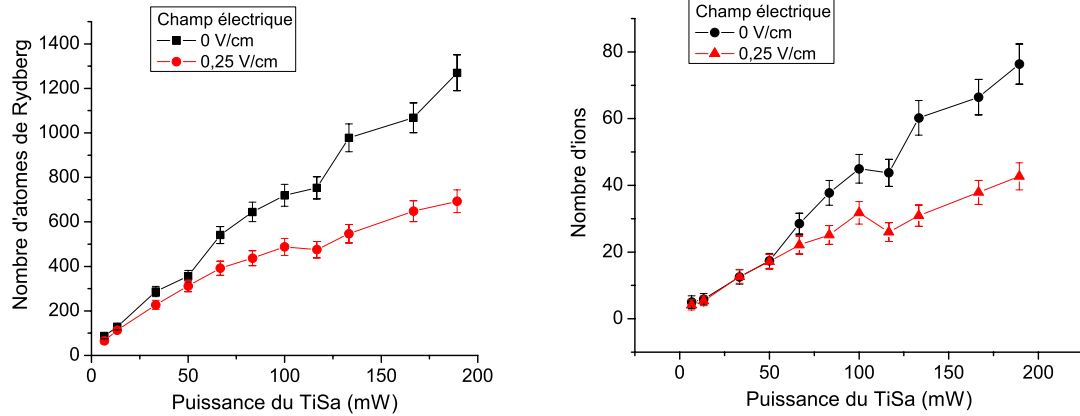


FIG. 4.17 – Analyse des nombres d'atomes de Rydberg et nombres d'ions après excitation de l'état $70p_{3/2}, |m_j| = 1/2$ en fonction de la puissance du laser Ti:Sa (le laser Ti:Sa est résonant) pour deux champs électriques différents ($F = 0$ V/cm, correspondant à $\tan^2 \theta = 0$ et $F' = 0.25$ V/cm, correspondant à $\tan^2 \theta = 0.65$). (a) Nombre d'atomes de Rydberg détectés (b) Nombre d'ions libres détectés.

Le blocage de l'excitation est un peu moins efficace dans cette expérience en densité portant sur l'excitation de l'état $70p_{1/2}$ que lors de l'étude $70p_{3/2}$ mais les champs électriques utilisés sont identiques dans les deux cas : un champ électrique de 0.25 V/cm correspond à $\tan^2 \theta = 0.65$ pour le niveau $70p_{1/2}$ et par contre $\tan^2 \theta = 1.1$ pour le niveau $70p_{3/2}$. Ceci explique que le rapport R atteint 0.5 lorsque 700 atomes sont excités dans l'état $70p_{1/2}$ (en champ électrique) et seulement 500 dans l'état $70p_{3/2}$.

Rôle possible des ions Le nombre d'ions libres détectés ne varie pas beaucoup par rapport aux nombres obtenus pour les états $p_{3/2}$ (cf Fig. 4.16 et Fig. 4.17 (b)) et suit approximativement linéairement le nombre d'atomes excités comme dans les études précédentes : ces ions ne proviennent donc pas en majorité de collisions Rydberg-Rydberg mais probablement de collisions $6p$ -Rydberg et $7s$ -Rydberg et du rayonnement du corps noir (nous verrons au chapitre 6 que les collisions Rydberg-Rydberg induites par les forces dipolaires mènent à une dépendance quadratique du nombre d'ions avec la densité atomique et surtout qu'elles varient en fonction de la force de l'interaction $pp \leftrightarrow ss'$ plus importante pour les états $np_{3/2}$).

Il n'est pas possible d'affirmer que les ions jouent un rôle négligeable dans la saturation de l'excitation observée en champ électrique et que celle-ci n'est due qu'au blocage dipolaire. En champ nul, 30 ions au maximum peuvent avoir été créés pendant l'excitation. Ces ions sont susceptibles de créer un champ de 0.035 V/cm et donc un déplacement Stark d'au plus 8 MHz (à la fin de l'excitation). Leur nombre est probablement plus faible et ils n'ont donc sans doute que très peu d'effet, comme le confirme la linéarité de l'excitation. Le nombre d'ions est

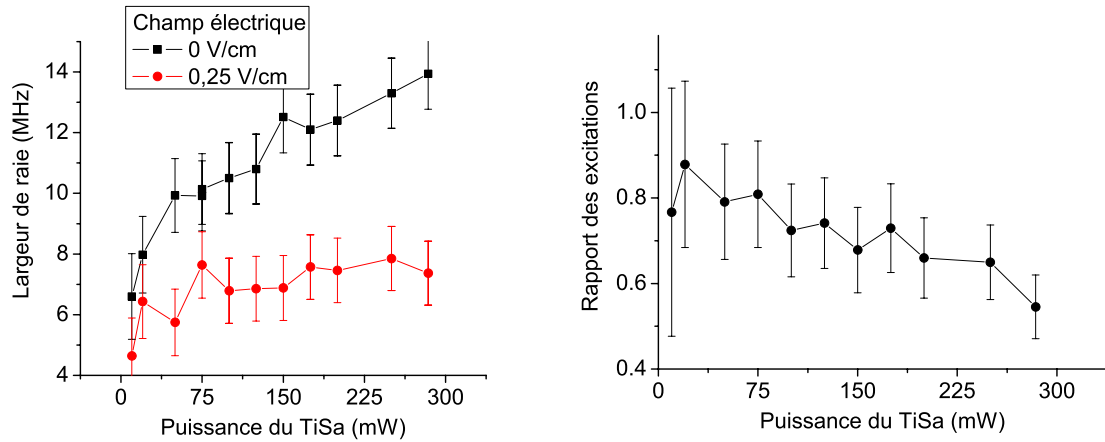


FIG. 4.18 – (a) Elargissement des raies correspondant aux données de la Fig. 4.17 (a) en fonction de la puissance du laser Ti:Sa. La largeur est mesurée à mi-hauteur (FWHM). (b) Rapport des nombres d’atomes excités dans l’état $70p_{1/2}$, $|m_j| = 1/2$ en champ électrique F' et en champ nul F .

trop élevé en champ électrique pour être complètement négligé; des études et des simulations complémentaires sont nécessaires pour connaître leur rôle exact dans l’excitation. Nous avons vu dans l’étude en densité de l’excitation de l’état $70p_{3/2}$ que le rôle des ions reste cependant mineur. Nous verrons par ailleurs qu’il est possible d’écarter complètement leur rôle lors de l’étude du blocage dipolaire à résonance de Förster (cf paragraphe 4.4).

4.3.2.4 Conclusion

Des résultats similaires ont été obtenus pour l’excitation des états $np_{1/2}$ et $np_{3/2}$. Les densités atomiques atteintes justifient tout à fait l’observation du blocage dipolaire. Le modèle que nous allons développer dans la section 4.3.3 confirme le rôle du blocage dipolaire dans la suppression d’excitation dans les données présentées au cours de ce chapitre, pouvant atteindre 60%. Comme attendu, l’excitation est parfaitement linéaire en champ nul pour l’excitation des états $np_{1/2}$ alors qu’elle est saturée pour celle des états $np_{3/2}$, notamment en raison de l’interaction de type Van der Waals $pp \leftrightarrow ss'$. Ces points sont clarifiés dans la section 4.3.3. Le rôle exact des ions reste un sujet ouvert mais l’observation d’un blocage de l’excitation très efficace même lorsqu’ils sont quasi absents assure que leur rôle est mineur.

En pratique, pour l’utilisation du blocage dipolaire en information quantique, l’excitation doit être cohérente et se faire sur de petits volumes. Les expériences à venir s’achèment donc vers une réduction du volume d’excitation et l’utilisation d’une excitation laser cohérente depuis l’état fondamental $6s$, par exemple à trois photons.

La possibilité d’un blocage dipolaire total de l’excitation si le volume d’excitation est plus petit qu’une boule de $9 \mu\text{m}$ de diamètre pour des atomes excités dans l’état $70p_{3/2}$ en champ électrique (avec une résolution d’1 MHz pour l’excitation) devrait permettre de tester la cohérence du système : des oscillations de Rabi entre un état fondamental (de grande durée de vie) et un état collectif ne comportant qu’une seule excitation Rydberg devrait pouvoir être observées¹⁵.

¹⁵Cela suppose une détection avec une efficacité de détection proche de 100 %. Les galettes microcanaux

4.3.3 Modélisation du blocage dipolaire de l'excitation Rydberg

Afin de modéliser le rôle du blocage dipolaire en champ électrique, nous résolvons d'abord exactement le problème de deux atomes à deux niveaux puis développons une description plus complète du système à N corps. Les différentes étapes de la résolution du système à N corps sont résumées en introduction de la section 4.3.3.2. La motivation principale est la détermination de la probabilité d'excitation d'un atome vers un état Rydberg en présence d'un grand nombre d'atomes de Rydberg. Il est montré notamment qu'une hypothèse de faibles corrélations entre les atomes donne un résultat appréciable dans le cas de l'interaction dipôle-dipôle.

Il sera montré que l'interaction dipôle-dipôle avec le plus proche voisin constitue l'interaction dominante en champ électrique. L'expression (4.9), valable au premier ordre de la théorie des perturbations exprime en effet qu'en moyenne l'interaction avec tous les atomes est nulle du fait de l'anisotropie de l'interaction dipôle-dipôle et que seul le potentiel localement créé par le ou les plus proches voisins joue un rôle. Dans le modèle (4.8) proposé pour modéliser l'expérience de saturation de l'excitation des états $np_{3/2}$ en champ nul, seule l'interaction avec des atomes placés à l'extérieur d'une boule ne contenant qu'une excitation est considérée (l'interaction avec le plus proche voisin est négligée et cette approximation pourrait sembler curieuse a priori). Nous analyserons ce modèle en détails et montrerons que le traitement de l'interaction de type Van der Waals est assez différent de celui de l'interaction dipôle-dipôle et finalement plus délicat.

Enfin, nous comparons les différents calculs aux résultats expérimentaux et le bon accord permet de valider l'ensemble des interprétations données dans les sections expérimentales 4.3.1 et 4.3.2. Le calcul s'attarde sur les états $np_{3/2}$ et notamment sur les problèmes d'identification du blocage dipolaire malgré l'interaction Van der Waals $pp \leftrightarrow ss'$ en champ nul et la saturation de l'excitation par puissance.

4.3.3.1 Système de deux atomes à deux niveaux

Nous considérons un système de deux atomes à 2 niveaux. Les 3 états significatifs sont les états $|7s\rangle|7s\rangle$, $\frac{|7s\rangle|np\rangle+|np\rangle|7s\rangle}{\sqrt{2}}$ et $|np\rangle|np\rangle$.

L'état $|7s\rangle|7s\rangle$ est couplé à l'état intermédiaire $|\Psi_i\rangle = \frac{|7s\rangle|np\rangle+|np\rangle|7s\rangle}{\sqrt{2}}$ lui-même couplé à l'état de double excitation Rydberg $|np\rangle|np\rangle$ par le champ électrique du laser Ti:Sa. La fréquence de Rabi de chaque transition est $\sqrt{2}\Omega_{TiSa}$. La phase du champ électrique vue par les deux atomes est supposée identique¹⁶. L'évolution temporelle du système est bien décrite par l'équation pilote (2.18) donnée au chapitre 2.

La durée de vie du niveau $|7s\rangle|7s\rangle$ est $2\gamma_{7s}$, celle du niveau $|\Psi_i\rangle$ est $2\gamma_{7s}$ également. Tous les résultats du chapitre 2 restent valables. Le décalage de la fréquence laser par rapport à la fréquence de Bohr de la transition $|7s\rangle|7s\rangle \leftrightarrow |\Psi_i\rangle$ étant δ_{TiSa} , le décalage à prendre en compte pour la transition $|\Psi_i\rangle \leftrightarrow |np\rangle|np\rangle$ est $\delta_{TiSa} - W(\Theta, R)$, où $W(\Theta, R)$ est le décalage d'énergie dû à l'interaction dipôle-dipôle, donné par l'expression (4.11). Cette expression est exacte¹⁷

utilisées sur notre expérience n'ont une efficacité de détection que d'environ 30 %, les détecteurs à dynodes (channeltron) permettant la détection d'ions uniques sont plus adaptés.

¹⁶Rigoureusement, le décalage de phase varie comme $e^{i2\pi\frac{R}{\lambda}}$, avec R la distance internucléaire et λ la longueur d'onde optique. L'état antisymétrique $\frac{|7s\rangle|np\rangle-|np\rangle|7s\rangle}{\sqrt{2}}$ est donc également couplé par le laser. Cependant, la prise en compte de cette phase ne modifie pas les résultats numériques présentés (notamment les probabilités d'excitation).

¹⁷C'est une expression exacte seulement si nous ne considérons que les états $|m_j| = 1/2$. Elle est différente si les états $|m_j| = 1/2$ et $|m_j| = 3/2$ sont à prendre en compte.

dans la mesure où l'interaction est purement diagonale dans la base des états non perturbés. Les différents états $m_j = \pm 1/2$ n'ont pas besoin d'être considérés puisque ni l'interaction dipôle-dipôle en champ électrique ni le champ laser ne peut les coupler. Un point délicat est le taux de chargement des états $|7s\rangle|7s\rangle$ et $|\Psi_i\rangle$. Par analogie avec le calcul de la section 2.3.3.4, le taux de chargement de l'état $|7s\rangle|7s\rangle$ est pris égal à 2Λ et celui de l'état $|\Psi_i\rangle$ est supposé négligeable¹⁸.

Les résultats du calcul sont présentés sur la Fig. 4.19, pour l'état 85p et pour une puissance du laser Ti:Sa de 20 mW (le laser est focalisé sur un waist de $75 \mu\text{m}$). Lorsque le décalage du laser Ti:Sa est nul, la probabilité de double excitation (i.e. que le système se retrouve dans l'état $|np\rangle|np\rangle$ après une durée d'excitation de 300 ns) varie fortement en fonction de la distance internucléaire R en présence d'interaction dipôle-dipôle (cf Fig. 4.19(a)) : pour un champ électrique très faible ($\tan^2 \theta = 0.05$), la probabilité de double excitation passe de 90% à moins de 10% alors que la distance internucléaire passe seulement de $\sim 10 \mu\text{m}$ à $\sim 5 \mu\text{m}$ (l'interaction est prise ici de la forme $W = \sin^2 \theta \frac{\mu_{pd}^2}{R^3}$). Pour $R < 5 \mu\text{m}$, l'interaction devient supérieure à 5-6 MHz, de l'ordre de la résolution de l'excitation. $\rho_{de,moy}$ a déjà diminué de moitié lorsque $R=7 \mu\text{m}$, soit lorsque l'interaction est de l'ordre de 2.5 MHz. Ceci justifie les évaluations données dans les sections expérimentales de ce chapitre.

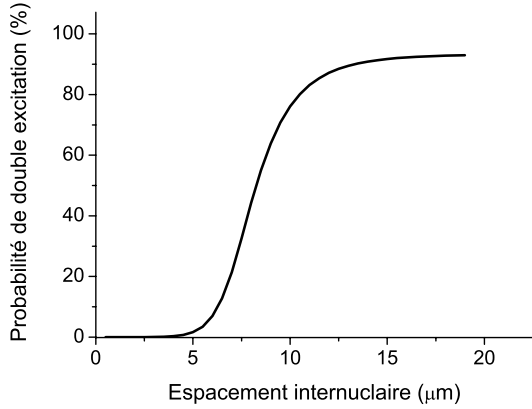
Pour présenter des résultats avec des conditions proches de l'expérience, une moyenne est réalisée suivant les variables Θ et R , pour deux atomes plus proche voisin dans l'état $|7s\rangle$. Ce choix n'est pas forcément le meilleur du point de vue des expériences mais ce schéma d'excitation à deux niveaux est avant tout un outil de diagnostic de la possibilité du blocage dipolaire. En notant $\rho_{de}(R, \Theta)$ la probabilité de double excitation à Θ et R donnés, nous évaluons donc la quantité :

$$\rho_{de,moy} \approx \int_0^\infty \int_0^\pi \rho_{de}(R, \Theta) 2\pi R^2 \frac{e^{-\left(\frac{R}{R_d}\right)^3}}{\frac{4\pi}{3} R_d^3} \sin \Theta d\Theta dR \quad (4.21)$$

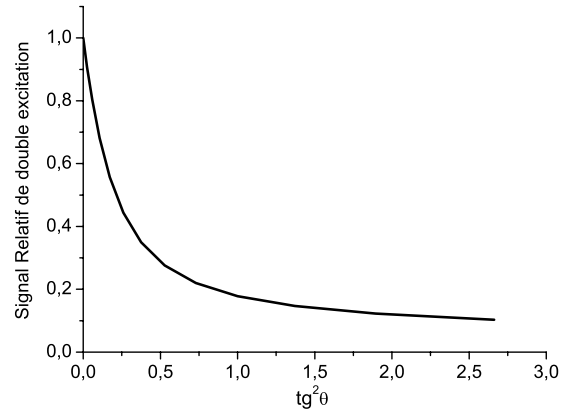
L'intégration est en pratique effectuée entre deux bornes raisonnables, R_{min} jusqu'à R_{max} . Le choix de R_{min} ne pose pas vraiment de problème. La probabilité que les atomes soient très proches (contenus dans un volume $\frac{4\pi}{3} R_{min}^3$) est très faible en prenant R_{min} suffisamment petit et par ailleurs $\rho_{de}(R, \Theta) \xrightarrow{R \rightarrow 0} 0$. Nous prenons $R_{max} = 2.2R_d$, où $0.9R_d$ est la distance internucléaire moyenne entre atomes initialement dans l'état $7s$, car la probabilité du plus proche voisin pour une distance plus grande est très faible (cf note 16 page 45). Pour des problèmes de temps de calcul, R_{min} est pris supérieur ou égal de $1 \mu\text{m}$ en général. La probabilité de simple excitation est peu affectée par la valeur de la probabilité de double excitation, elle n'est pas reportée sur la figure 4.19. Nous voyons sur la Fig. 4.19(b) que la probabilité de double excitation (calculée avec la formule (4.21) et $R_{7s} = 15 \mu\text{m}$) est très sensible au champ électrique. La chute est drastique à champs très faibles, comme ce qui observé expérimentalement. En fonction de la densité initiale, la chute est très rapide au départ et plus lente à hautes densités (cf Fig. 4.19(c)). La distance à laquelle le blocage est effectif varie évidemment en fonction du champ électrique ou de l'angle entre l'axe internucléaire et l'axe du champ électrique. Cette distance diminue légèrement en fonction de la puissance du laser Ti:Sa (lorsque la puissance augmente, la largeur spectrale de l'excitation aussi).

Fig. 4.19(d) montre un spectre de double excitation de deux atomes distants de $11.5 \mu\text{m}$. Le blocage est important alors que l'interaction est faible ($\tan^2 \theta = 0.07$), principalement au centre

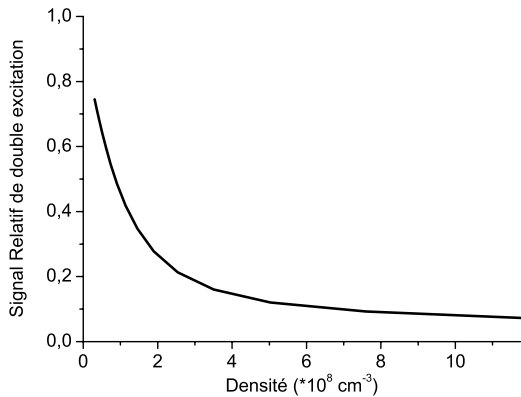
¹⁸La description du peuplement de l'état $|7s\rangle|7s\rangle$ simplement avec le taux de chargement 2Λ est une approximation perturbative (le chargement est supposé se faire depuis l'état $|6p\rangle|7s\rangle$). Le chargement de l'état $|\Psi_i\rangle$ est négligé car il serait inférieur à $4\Lambda^2$.



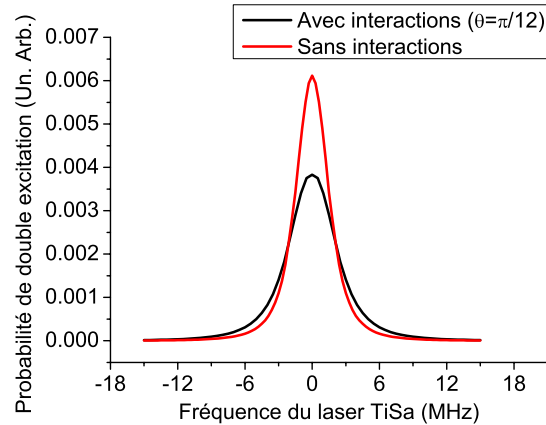
(a) Probabilité de double excitation en fonction de la distance internucléaire R , en pourcentage de la probabilité de double excitation obtenue sans blocage dipolaire. $\theta = \pi/14$ ($\tan^2 \theta = 0.05$), $\Theta = \pi/2$ (l'interaction dipôle-dipôle prise en compte est donc $W = \sin^2 \theta \frac{\mu_{pd}^2}{R^3}$).



(b) Evolution de la probabilité de double excitation en fonction de $(\tan \theta)^2$. La distance internucléaire dans l'état initial est $15 \mu\text{m}$ (soit une densité $\sim 7 \times 10^7 \text{ cm}^{-3}$). La probabilité de double excitation est moyennée suivant l'expression (4.21). La forme de la courbe est proche de celle qu'on peut constater expérimentalement.



(c) Evolution de la probabilité de double excitation en fonction de la densité dans l'état initial. La probabilité est de même moyennée suivant l'expression (4.21). $\theta = \pi/8$ dans cette simulation.



(d) Spectre théorique de double excitation dans l'état Rydberg $85p_{3/2}$ pour deux atomes distants de $11.5 \mu\text{m}$, sans interaction entre les atomes de Rydberg ou avec une interaction dipôle-dipôle ($\tan^2 \theta = \pi/12$). Le blocage de l'excitation est prépondérant au centre de la raie. Un très léger élargissement apparaît sur les ailes, rendu possible essentiellement par le décalage dipôle-dipôle.

FIG. 4.19 – Probabilités de double excitation dans l'état $|85p_{3/2}\rangle|85p_{3/2}\rangle$ en fonction de différents paramètres, R , $\tan^2 \theta$, densité dans l'état $7s$ et décalage du laser Ti:Sa δ_{TiSa} . Le laser Ti:Sa est de puissance 20 mW et focalisé sur $75 \mu\text{m}$.

de la raie. La raie est très faiblement élargie en présence de l'interaction : lorsque la fréquence du laser est hors résonance, l'interaction dipôle-dipôle peut permettre une excitation à 2 fois un photon plus efficace ou une excitation à deux photons. A priori, la distance internucléaire R_d est assez faible dans les expériences, $4 \mu\text{m}$ pour une densité $D = 4 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$ typiquement. Les expériences sont donc réalisées dans des conditions rendant possibles l'existence d'un fort blocage. On peut noter que dans ce cas, la dépendance du blocage dipolaire avec la densité initiale est difficile à mettre en évidence car la densité initiale doit être très faible et l'intensité du laser Ti:Sa aussi pour qu'un effet soit clairement observé.

Cette étude à deux atomes caractérise bien l'efficacité du blocage dipolaire en champ électrique. On retrouve bien qu'un très faible champ électrique est suffisant pour bloquer complètement l'excitation d'un deuxième atome. Expérimentalement, un blocage de l'excitation de plus de 50% est observé. Un modèle plus complet incluant la possibilité du blocage de l'excitation par un seul atome d'un grand nombre d'autres atomes est nécessaire pour rendre compte véritablement de la dépendance en densité.

4.3.3.2 Système à N corps

La description du blocage dipolaire dans notre expérience nécessite a priori de considérer un système à N corps en interactions. Le problème pourrait être abordé complètement numériquement. En effet, les niveaux d'énergie d'un système à N corps couplés par l'interaction dipôle-dipôle en champ électrique peuvent être calculés facilement de manière perturbative selon la formule (4.9). De ce fait, dans un système contenant N atomes (à deux niveaux $|g\rangle$ et $|e\rangle$) considérés comme discernables et fixes en position, il y a C_N^n états contenant n excitations $|e_i\rangle$ (choix de n parmi N), soit au total $\sum_{n=1}^{n=N} C_N^n = 2^N$ niveaux possibles. Pour 8 atomes, cela représente déjà 256 niveaux. L'application du formalisme de la matrice densité et la considération de tous les niveaux d'énergie pour chaque atome rendrait ce calcul délicat (avec 2×4^N équations pour notre système). Cette approche qui a été suivie pour le système de deux atomes à 2 niveaux au paragraphe précédent n'est pas la plus adaptée car elle ne tient pas compte de plusieurs propriétés de l'interaction dipôle-dipôle. L'interaction dipôle-dipôle reste une interaction à relativement courte portée (elle n'est efficace que dans une sphère de rayon $9 \mu\text{m}$ pour l'état $70p_{3/2}$ en champ électrique ($\tan^2 \theta = 1$) dans l'expérience décrite dans ce chapitre). Elle ne considère pas non plus le fait que le décalage d'énergie à prendre en compte pour l'excitation d'un atome en présence de n autres excitations Rydberg autour se limite en première approximation à considérer seulement l'interaction dipôle-dipôle avec le plus proche voisin.

L'analyse proposée repose sur la possibilité d'établir une équation d'évolution simple de la matrice densité à un atome en présence de tous les autres. L'établissement de l'équation fait l'objet de la première partie et repose sur la possibilité de prendre la trace sur tous les atomes sauf un dans l'équation d'évolution de la matrice densité à N corps.

La deuxième partie discute différentes hypothèses utilisées pour résoudre cette équation. L'une d'entre elles, utilisée fréquemment dans les théories de champ moyen, est l'approximation de type Hartree-Fock. Cette démarche a notamment été utilisée pour décrire l'interaction de gaz froids avec un laser conduisant à la présence d'interactions de type dipôle-dipôle entre atomes excités et atomes dans l'état fondamental [Lenz et al., 1993]. Plus récemment, elle a été utilisée pour décrire la dépendance de l'expansion d'un condensat de Bose-Einstein en présence d'interaction dipôle-dipôle [Yi and You, 2003]. La principale différence entre ces systèmes et le système d'atomes de Rydberg est la portée de l'interaction beaucoup plus grande pour les systèmes d'atomes de Rydberg, incluant plusieurs atomes, ce qui en fait un système

tout à fait nouveau. Les temps d'expériences sont aussi très courts, permettant de considérer les atomes comme statiques et donc discernables contrairement aux descriptions usuelles de champ moyen dans lesquelles la dynamique collisionnelle joue un rôle important. Le résultat principal de cette approximation pour l'interaction dipôle-dipôle en champ électrique est que le décalage du niveau d'énergie Rydberg d'un atome est tout simplement la somme donnée par la formule (4.9), i.e la somme des couplages dipôle-dipôle de cet atome avec tous les autres atomes pris isolément. Nous verrons qu'il est alors possible de négliger la contribution de tous les atomes exceptés le plus proche voisin excité, chaque atome étant beaucoup plus sensible au potentiel d'interaction dipôle-dipôle local qu'au potentiel moyen.

Analyse du système

L'approche complète consiste à résoudre l'équation d'évolution de la matrice densité $\rho_{1,2,\dots,N}$, que nous avons déjà présentée au chapitre 2.3.3.1 :

$$\frac{d\rho_{1,2,\dots,N}}{dt} = -i[H, \rho_{1,2,\dots,N}] + X(\rho) \quad (4.22)$$

où $H = \sum h_i + \frac{1}{2} \sum_k \sum_{j \neq k} V_{kj}$ est le hamiltonien total du système, somme des hamiltoniens individuels h_i et des hamiltoniens d'interaction V_{ij} . $X(\rho)$ désigne le couplage avec le rayonnement du vide.

La trace de l'expression (4.22) sur tous les atomes sauf un, l'atome dénommé i , donne le résultat suivant :

$$\frac{d\rho_i}{dt} = -i[h_i, \rho_i] - \frac{1}{2}(\rho_i \Gamma_i + \Gamma_i \rho_i) + M_{PES_i} + Tr_{1..(i-1)(i+1)..N} \left[\frac{1}{2} \sum_k \sum_{j \neq k} V_{kj}, \rho_{1,2,\dots,N} \right] \quad (4.23)$$

$\rho_i = Tr_{2..(i-1)(i+1)..N} \rho_{1,2,\dots,N}$ est la matrice densité à une particule pour l'atome i placé en \vec{R}_i . h_i est l'hamiltonien individuel de la particule i (en terme d'opérateur, h_i est exprimé ici dans une base $|u_{i_k}\rangle$ de vecteurs de l'espace des états accessibles à l'atome i , \mathcal{E}_i , alors que dans l'équation 4.22, il agissait dans l'espace complet $\mathcal{E}_1 \otimes \dots \otimes \mathcal{E}_N$). Le terme d'émission spontanée $-\frac{1}{2}(\rho_i \Gamma_i + \Gamma_i \rho_i) + M_{PES_i}$ suppose que $X(\rho)$ est la somme des contributions de l'émission spontanée de tous les atomes : nous ne considérons pas ici l'émission spontanée des états de Rydberg dont le temps caractéristique est plus long que celui de l'expérience (nous négligeons les effets coopératifs d'émission spontanée, superradiance ou subradiance).

Cette expression donne l'évolution temporelle de la matrice densité à 1 corps d'un atome i , couplée à l'évolution de tous les autres atomes via le dernier terme du membre de droite dans l'expression (4.23). En considérant les atomes comme discernables, il convient de sommer sur tous les atomes : par exemple, le nombre d'atomes dans l'état k est $n_k = \sum_i \langle k | \rho_{i_k} | k \rangle$. Cette approche peut être suivie pour retrouver l'équation de type Gross-Pitaevski, la somme des termes de couplage avec toutes particules se ramenant à un terme d'interaction de champ moyen proportionnel à la densité d'atomes¹⁹ [Castin, 2001].

¹⁹Usuellement, les atomes sont plus rigoureusement considérées comme indiscernables. La matrice densité à un corps est dans ce cas N fois la trace de $\rho_{1,2,\dots,N}$, la matrice densité à N corps : $\rho_1 = \rho_i = N Tr_{2..(i-1)(i+1)..N} \rho_{1,2,\dots,N}$ et $\rho_{kk}(\vec{r}) = \langle \vec{r} | \rho_{1_{kk}} | \vec{r} \rangle$.

Le terme de couplage peut être simplifié plus avant²⁰ :

$$Tr_{1..(i-1)(i+1)..N} \left[\frac{1}{2} \sum_k \sum_{j \neq k} V_{kj}, \rho_{1,2,..N} \right] = \sum_{j \neq i} Tr_j [V_{ij}, \rho_{i,j}] \quad (4.24)$$

Cette expression constitue le premier degré de la hiérarchie BBGKY (Bogolyubov, Born, Green, Kirkwood, Yvon).

En remarquant que l'interaction dipôle-dipôle en champ électrique est diagonale dans la base non perturbée et en ne conservant que l'interaction entre états de Rydberg, l'expression de ce terme de couplage se simplifie beaucoup. Considérons dans un premier temps un ensemble d'atomes à 2 niveaux $|g\rangle$ et $|e\rangle$, $|g\rangle$ étant l'état fondamental et $|e\rangle$ l'état Rydberg. Le hamiltonien d'interaction dipôle-dipôle entre les atomes i et j s'écrit dans cette base :

$$V_{ij} = \alpha_{ij} |e_i\rangle |e_j\rangle \langle e_i| \langle e_j| \quad (4.25)$$

où α_{ij} désigne le couplage dipôle-dipôle en champ électrique. $\alpha_{ij} = f(\theta) \frac{\mu_{pd}^2 (1-3 \cos^2 \Theta_{ij}^2)}{R_{ij}^3}$, avec $f(\theta)$ une fonction du champ électrique.

On trouve alors pour le terme (4.24) traduisant l'interaction de l'atome i avec l'atome j :

$$\begin{aligned} Tr_j [V_{ij}, \rho_{i,j}] &= \alpha_{ij} (|g_i\rangle \langle e_i| \langle e_j| \rho_{i,j} |e_j\rangle - \langle e_j| \rho_{i,j} |e_j\rangle |e_i\rangle \langle g_i|) \\ &= \alpha_{ij} (\rho_{ij_{ge,ee}} |g_i\rangle \langle e_i| - \rho_{ij_{ee,ge}} |e_i\rangle \langle g_i|) \end{aligned} \quad (4.26)$$

où, par rapport aux notations précédentes, $\rho_{ij_{ge,ee}} \equiv \langle i_0 j_1 | \rho_{i,j} | i_1 j_1 \rangle$ est l'une des composantes de la matrice densité à deux corps $\rho_{i,j}$, en notant $|0\rangle \equiv |g\rangle$, et $|1\rangle \equiv |e\rangle$ en référence à la note 20.

²⁰En effet:

$$\begin{aligned} Tr_{1..(i-1)(i+1)..N} \left[\frac{1}{2} V_{ij}, \rho_{1,2,..N} \right] &= \sum_{l \in \{[1,N], l \neq i, k(l)\}} \left(\prod_{l \neq i} \langle u_{k(l)} | \left[\frac{1}{2} V_{ij}, \rho_{1,2,..N} \right] \prod_{l \neq i} |u_{k(l)} \rangle \right) \\ &= \sum_{k(j)} \langle u_{j_{k(j)}} | \left[\frac{1}{2} V_{ij}, \sum_{l \in \{[1,N], l \neq \{i,j\}, k(l)\}} \left(\prod_{l \neq i} \langle u_{k(l)} | \rho_{1,2,..N} | \prod_{l \neq i} |u_{k(l)} \rangle \right) \right] |u_{j_{k(j)}} \rangle \\ &= Tr_j \left[\frac{1}{2} V_{ij}, \rho_{i,j} \right] \end{aligned}$$

où les notations utilisées sont les suivantes :

$$\sum_{l \in \{[1,N], l \neq i, k(l)\}} \equiv \sum_{k(1)} \sum_{k(2)} \dots \sum_{k(i-1)} \sum_{k(i+1)} \dots \sum_{k(N)}$$

la somme sur k désignant la somme sur l'ensemble des états possibles d'un atome, et

$$\prod_{l \neq i} \langle u_{k(l)} | = \langle u_{1_{k(1)}} | \dots \langle u_{(i-1)_{k(i-1)}} | \langle u_{(i+1)_{k(i+1)}} | \dots \langle u_{N_{k(N)}} |$$

En terme d'opérateur, de même que pour h_i , nous gardons la même notation de l'opérateur V_{ij} dans la restriction de l'espace des états total à l'espace $\mathcal{E}_i \otimes \mathcal{E}_j$. Dans l'espace des états $\mathcal{E}_i \otimes \mathcal{E}_j$, V_{ij} est donné par :

$$V_{ij} = \sum_{k(i), k'(i)} \sum_{k(j), k'(j)} V_{ij_{k(i)k(j), k'(i)k'(j)}} |u_{i_{k(i)}}\rangle |u_{j_{k(j)}}\rangle \langle u_{i_{k'(i)}}| \langle u_{j_{k'(j)}}|$$

Du fait que nous prenons la trace sur les états de l'atome j , il faut forcément que l'atome j soit dans l'état excité pour qu'apparaisse le terme de couplage (l'excitation de l'atome i ne sera perturbée par l'atome j que si celui-ci est déjà excité). En considérant un nombre plus important de niveaux, nous ferions apparaître simplement des composantes supplémentaires incluant les différents niveaux de l'atome i . Pour l'atome i , le couplage avec tous les autres atomes est entièrement contenu dans le terme $\sum_{j \neq i} (\alpha_{ij} \rho_{ij_{ge,ee}}) |g_i\rangle \langle e_i|$ (l'autre terme $\sum_{j \neq i} (\alpha_{ij} \rho_{ij_{ee,ge}}) |e_i\rangle \langle g_i|$ n'est autre que le conjugué hermitique).

Hypothèse Hartree-Fock

Nous savons qu'en présence d'interaction dipôle-dipôle, les fonctions propres du système de deux atomes s'expriment comme le produit des fonctions d'onde associées à chacun d'entre eux à l'ordre 2 près [Friedrich, 1998]. Nous nous limitons en effet dans cette description aux seuls états dégénérés tels que $|m_j| = 1/2$. Les fonctions propres du hamiltonien total sans le couplage laser sont des fonctions d'onde produits des fonctions propres individuelles car l'interaction dipôle-dipôle est diagonale dans la base d'états non perturbés. Au deuxième ordre près, une fonction propre est donnée par :

$$|\Psi_{1,2,\dots,N}^{(k)}\rangle = |\Psi_1^{k(1)}\rangle \otimes \dots \otimes |\Psi_N^{k(N)}\rangle \quad (4.27)$$

où les $|\Psi_i^{k(i)}\rangle$ sont des états propres individuels. Pour un ensemble d'atomes à 2 niveaux, ces états propres individuels sont les états $|7s_{1/2}\rangle$ ou $|np_{3/2}(F)\rangle$. Considérer que l'état du système reste un état produit au cours du temps reviendrait à effectuer l'approximation dite de Hartree-Fock [Lenz et al., 1993], équivalente à dire que pour tout (i, j) , la matrice densité à deux corps est $\rho_{i,j} = \rho_i \otimes \rho_j$. Cette approximation est normalement valide pour des systèmes faiblement corrélés²¹. Cependant, dans notre système, un grand nombre des états propres (4.27) sont couplés en présence des lasers (les états contenant n excitations Rydberg sont couplés à $(n-1)$ états contenant $n-1$ excitations et $N-(n+1)$ états contenant $n+1$ excitations). Les corrélations se développent au cours de l'excitation, certains états devenant inaccessibles à l'excitation. L'état du système ne reste pas un état produit. En effet, prenons l'exemple de la matrice densité à deux corps $\rho_{i,j}$. Dans l'hypothèse où le système est dans un état produit, la matrice densité à deux corps est $\rho_{i,j} = \rho_i \otimes \rho_j$. La probabilité de double excitation est dans cette hypothèse le produit de la probabilité d'excitation pour chacune des particules, soit $\rho_{ij_{ee,ee}} = \rho_{i_{ee}} \times \rho_{j_{ee}}$: cette hypothèse pose évidemment problème en présence de blocage dipolaire, les deux probabilités d'excitation individuelles peuvent être importantes mais la probabilité de double excitation complètement nulle !

L'approximation de Hartree-Fock peut cependant paraître justifiée dans nos expériences car la probabilité qu'un atome soit excité vers l'état Rydberg est très faible. L'approximation $\rho_{ij_{ee,ee}} \approx \rho_{i_{ee}} \times \rho_{j_{ee}}$ est relativement valide tant que la densité d'atomes excités reste peu élevée, c'est à dire tant que le produit $\rho_{i_{ee}} \times \rho_{j_{ee}}$ reste négligeable : tant que $\rho_{i_{ee}}$ et $\rho_{j_{ee}}$ restent petits, le produit $\rho_{i_{ee}} \times \rho_{j_{ee}}$ est extrêmement faible. En présence de blocage dipolaire, ce produit reste petit et justifie a posteriori l'utilisation de cette approximation. L'hypothèse semble bonne aussi pour deux atomes dans les états intermédiaires $|g_i e_j\rangle$ et $|e_i g_j\rangle$ si le taux d'excitation vers l'état Rydberg est faible : le blocage de la double excitation modifie peu la probabilité

²¹Cette hypothèse est plutôt une hypothèse d'une évolution temporelle indépendante des différentes particules utilisée dans l'approche Hartree-Fock d'un système à N corps. Elle est une bonne approximation pour dériver l'équation de Gross-Pitaevski [Castin, 2001], car les atomes dans leur état fondamental interagissent peu.

de présence dans l'état intermédiaire et on peut écrire par exemple $\rho_{ij_{ge},ge} = \rho_{i_{gg}} \times \rho_{j_{ee}}$. Cette hypothèse est valide car le blocage dipolaire apparaît pour de très basses densités dans l'état Rydberg, nous contraignant alors à travailler à taux d'excitation faibles (moins d'un atome sur une cinquantaine est excité dans l'état Rydberg). La question se pose également pour les cohérences. En fait, si l'hypothèse Hartree-Fock pour le terme de population $\rho_{ij_{ge},ge}$ est supposée valide, nous avons $\rho_{ij_{ge},ge} = a_{ij_{ge}} a_{ij_{ge}}^* = \rho_{i_{gg}} \times \rho_{j_{ee}} = a_{g_i} a_{e_j} \times a_{g_i}^* a_{e_j}^*$ avec a_{e_j} , a_{g_i} et $a_{ij_{ge}}$ les amplitudes des fonctions d'onde suivant les états à un ou à deux corps. Il est donc a priori supposé $a_{ij_{ge}} = a_{g_i} a_{e_j}^*$, à un facteur de phase près. On peut supposer raisonnablement que le terme de cohérence important se factorise aussi : $\rho_{ij_{ge},ee} = \rho_{i_{ge}} \times \rho_{j_{ee}}$.

L'approximation de Hartree-Fock semble pouvoir se prêter au traitement de notre problème. Elle est sans doute encore meilleure dans le schéma d'excitation à 4 niveaux, où le blocage dipolaire affecte moins de 1% des atomes et très peu les probabilités de présence dans les différents niveaux intermédiaires. L'approximation de Hartree-Fock permet d'écrire finalement :

$$\sum_{j \neq i} Tr_j [V_{ij}, \rho_{i,j}] = \left[\left(\sum_{j \neq i} \alpha_{ij} \rho_{j_{ee}} \right) |e_i\rangle \langle e_i|, \rho_i \right] \quad (4.28)$$

$$\sum_{j \neq i} Tr_j [V_{ij}, \rho_{i,j}] = \left(\sum_{j \neq i} \alpha_{ij} \rho_{j_{ee}} \right) (\rho_{i_{ge}} |g_i\rangle \langle e_i| - \rho_{i_{eg}} |e_i\rangle \langle g_i|) \quad (4.29)$$

Nous sommes ramenés de cette manière à une équation dans laquelle l'interaction dipôle-dipôle agit seulement comme un décalage d'énergie du niveau Rydberg pour l'atome i . Nous discutons dans les paragraphes suivant la validité de l'approximation effectuée. Il est important de remarquer notamment que α_{ij} tend vers l'infini lorsque R_{ij} tend vers 0. Autrement dit, même si $\rho_{j_{ee}}$ est faible dans la somme (4.29), la somme est très sensible à l'atome plus proche voisin atome dans l'état fondamental. En fait, la résolution de l'équation pilote pour un système de deux atomes donne en présence d'un fort blocage, donc pour α_{ij} très grand²² :

$$\rho_{ij_{ee},eg} \approx \frac{-\Omega_{Ti} S a / 2}{\alpha_{ij} - i\gamma_{7s}} \rho_{ij_{eg},eg} \approx \frac{-\Omega_{Ti} S a / 2}{\alpha_{ij}} \rho_{ij_{eg},eg} \quad (4.30)$$

Donc $\alpha_{ij} \rho_{ij_{ee},eg}$ tend vers une valeur réelle indépendante de α_{ij} lorsque α_{ij} devient très grand et elle est simplement reliée à la population dans l'état intermédiaire $\rho_{ij_{eg},eg}$. On peut montrer que le résultat est identique lorsqu'un grand nombre d'atomes est considéré (rappelons que plusieurs dizaines d'atomes sont affectés par l'excitation d'un seul atome). L'approximation de Hartree-Fock aurait pu poser problème dans la mesure où les atomes tendent à être "corrélés" au cours de l'excitation laser. Il est cependant montré dans les paragraphes suivants qu'elle donne en moyenne le "bon" résultat.

Approximation du champ tournant

Il est alors possible de décrire l'évolution temporelle de la matrice densité de l'atome i en appliquant l'approximation du champ tournant comme nous l'avons décrite par le système d'équations (2.21). Dans l'approximation du champ tournant, le décalage du niveau d'énergie

²²L'hypothèse α_{ij} très grand permet d'une part d'effectuer l'approximation de Markov dans l'équation pilote en supposant $\rho_{ij_{ee},eg} \approx 0$, d'autre part d'avoir $\rho_{ij_{ee},ee} \approx 0$.

à prendre en compte pour l'évolution du terme de cohérence ρ_{ige} de la matrice densité ρ_i est :

$$\delta = \delta_{T_i S_a} - \sum_{j \neq i} (\alpha_{ij} \rho_{jee}) \quad (4.31)$$

Approximation de champ local moyen

Il serait possible de calculer la probabilité d'excitation au cours du temps pour chacun des atomes en tenant compte du taux d'excitation exact de chacun des atomes. L'approche développée ici est différente et permet de définir un taux moyen d'excitation pour un grand nombre d'atomes, en analogie avec les théories de champ moyen.

Nous faisons l'hypothèse importante que nous pouvons remplacer la population dans l'état excité ρ_{jee} de l'atome j par une valeur moyenne $\overline{\rho_{ee}}(\vec{r})$, prise localement sur un ensemble d'atomes (ρ_{jee} dépend de la position car l'excitation n'est pas uniforme). Ceci conduit à un décalage de la forme : $\delta_{T_i S_a} - \overline{\rho_{ee}} \sum_{j \neq i} (\alpha_{ij})$.

Une attention particulière doit être attachée à cette hypothèse : $\rho_{jee} = \overline{\rho_{ee}}$. En fait, ρ_{jee} ne peut varier de manière importante par rapport à cette valeur. D'une part, pour un système de deux atomes, cette variation pourrait être au plus d'un facteur deux (atomes très éloignés ou très proches). D'autre part, le blocage dipolaire est déjà total pour une très faible interaction ($\tan^2 \theta = 0.05$) lorsque les deux atomes sont contenus à l'intérieur d'une boule de rayon 5 μm pour l'état $70p_{3/2}$ (cf Fig. 4.19). La densité dans l'état fondamental étant d'environ 10^{11} at/cm^3 , une telle boule peut en fait contenir 50 atomes, soit déjà un grand nombre! (nous allons voir que l'approche à deux niveaux que nous utilisons par souci de simplicité se généralise directement à 4 niveaux : c'est bien le nombre total d'atomes qui est intéressant). L'excitation d'un deuxième atome dans un tel volume serait presque certainement bloquée, si nous négligions les phénomènes d'anisotropie²³, autrement dit l'état excité de cette boule serait une superposition d'états contenant une seule excitation (un état collectif ne contenant qu'une seule excitation) et la densité ρ_{jee} serait uniforme à l'intérieur de cette boule²⁴. Finalement, du fait de la longue portée de l'interaction dipôle-dipôle, bien plus grande que la distance interatomique moyenne, la probabilité d'excitation est relativement indépendante des fluctuations en position entre un atome et son plus proche voisin.

En supposant d'abord une excitation uniforme, $\rho_{jee} \approx \overline{\rho_{ee}}$, le décalage $\delta_{dd_i} = \sum_{j \neq i} (\alpha_{ij} \rho_{jee})$ devient simplement proportionnel à la somme des décalages dus à l'interaction avec l'ensemble des autres atomes :

$$\delta_{dd_i} = \overline{\rho_{ee}} \sum_{j \neq i} (\alpha_{ij})$$

En pratique, il faut conserver la dépendance spatiale de l'excitation. Pour un atome au centre du PMO, l'influence des atomes à la périphérie est négligeable. Par contre, pour un atome placée à la périphérie du PMO, l'influence des atomes au centre ne l'est pas forcément. Pour un nombre important d'atomes, afin d'évaluer correctement ces contributions, nous pouvons en première approximation remplacer la somme par une intégrale en considérant des distributions continues d'atomes.

L'intégrale est composée de deux termes, l'un de champ moyen et l'autre de champ local :

²³Un état à deux excitations Rydberg est accessible si l'axe internucléaire fait un angle de 54° avec l'axe du champ électrique. Il est possible d'imaginer qu'un état donné accessible en présence d'interaction dipôle-dipôle soit constitué de lignes d'atomes orientées suivant ces axes où l'interaction est nulle.

²⁴En présence ou non d'interaction, deux atomes voisins doivent avoir a priori la même probabilité d'être excités, en présence ou non d'interaction dipôle-dipôle, à condition bien sûr que cette interaction soit à beaucoup plus longue portée que l'espacement internucléaire moyen.

$$\begin{aligned}
\delta_{dd}(\vec{R}_i) &\approx \int_0^\infty \int_0^\pi \overline{\rho_{ee}}(\vec{R} + \vec{R}_i) \alpha_{ij}(\Theta, R) \rho_0(\vec{R} + \vec{R}_i) 2\pi \sin \Theta R^2 dR d\Theta \\
&= \int_0^\infty \int_0^\pi \overline{\rho_{ee}}(\vec{R} + \vec{R}_i) \alpha_{ij}(\Theta, R) \rho_0(\vec{R} + \vec{R}_i) \left(1 - e^{-\frac{4}{3}\pi R^3 \rho_0(\vec{R} + \vec{R}_i)}\right) 2\pi \sin \Theta R^2 dR d\Theta \\
&\quad + \int_0^\infty \int_0^\pi \overline{\rho_{ee}}(\vec{R}_p + \vec{R}_i) \alpha_{ip}(\Theta_p, R_p) \overline{\rho_0}(\vec{R}_p + \vec{R}_i) e^{-\frac{4}{3}\pi R^3 \rho_0(\vec{R}_p + \vec{R}_i)} 2\pi \sin \Theta_p R_p^2 dR_p d\Theta_p
\end{aligned} \tag{4.32}$$

L'indice p désigne le plus proche voisin. $\rho_0(\vec{R} + \vec{R}_i)$ est la densité d'atomes dans le PMO en $\vec{R}'_i = \vec{R} + \vec{R}_i$. L'utilisation de la distribution d'Erlang suppose que $\rho_0(\vec{R}'_i)$ est localement homogène. Dans ce cas, comme nous l'avons spécifié pour justifier l'hypothèse de Hartree-Fock, la densité d'atomes excités $\overline{\rho_{ee}}(\vec{R}'_i)$ peut être considérée comme localement homogène également.

La première intégrale dans le résultat de l'équation (4.32) représente le potentiel de champ moyen. Le champ moyen donné par cette expression²⁵ est tracé Fig. 4.20 pour un nuage d'atomes excités gaussien en fonction de la distance au centre du PMO R' après moyennage suivant les angles Θ' et ϕ' définissant une position particulière dans le PMO (du fait de l'anisotropie de l'interaction dipôle-dipôle, le potentiel de champ moyen varie angulairement d'un facteur ~ -2.2 à ~ 1.2 par rapport au résultat affiché Fig. 4.20 et il existe des positions privilégiées pour lesquelles il est nul). Ce potentiel prend une valeur élevée seulement pour des atomes éloignés du centre du PMO, avec une valeur maximale à près de $1.8 \times \sigma$ du centre. L'intégrale de champ moyen est nulle pour un atome situé au centre du PMO, en première approximation, pour une distribution d'atomes excités à symétrie sphérique, supposée gaussienne car l'intégrale angulaire est nulle du fait de l'anisotropie de l'interaction dipôle-dipôle :

$$\int_0^\infty \int_0^\pi \overline{\rho_{ee}}(\vec{R}) \alpha_{ij}(\Theta, R) \rho_0(\vec{R}) \left(1 - e^{-\frac{4}{3}\pi R^3 \rho_0(\vec{R})}\right) 2\pi \sin \Theta R^2 dR d\Theta \approx 0$$

Le potentiel moyen est usuellement le seul considéré²⁶, le potentiel d'interaction avec le plus proche voisin (deuxième intégrale dans le résultat de l'équation (4.32)) étant souvent négligé.

Evaluons plus exactement ce terme de champ local. L'intégrale angulaire dans le terme de champ local est nulle du fait de l'anisotropie de l'interaction dipôle-dipôle :

$$\int_0^\infty \overline{\rho_{ee}}(\vec{R}_p + \vec{R}_i) \alpha_{ip}(\Theta_p, R_p) \rho_0(\vec{R}_p + \vec{R}_i) e^{-\frac{4}{3}\pi R^3 \rho_0(\vec{R}_p + \vec{R}_i)} 2\pi \sin \Theta_p R_p^2 dR_p d\Theta_p \approx 0$$

Le potentiel d'interaction local est cependant très mal évalué par cette intégrale. Pour l'évaluer plus correctement, il faut prendre en considération la distribution discrète des atomes et notamment le plus proche voisin.

Afin de tenir plus exactement compte de la discrétisation, le potentiel d'interaction ressenti par un atome i peut s'écrire plus exactement comme la somme du potentiel d'interaction

²⁵Du fait que la densité peut être supposée localement homogène et du fait de l'anisotropie de l'interaction dipôle-dipôle, le potentiel de champ moyen dépend essentiellement d'atomes éloignés et le terme $\left(1 - e^{-\frac{4}{3}\pi R^3 \rho_0(\vec{R})}\right)$ peut être remplacé par 1.

²⁶Le potentiel moyen permet d'expliquer l'expansion anisotrope des condensats en présence d'interaction dipôle-dipôle.

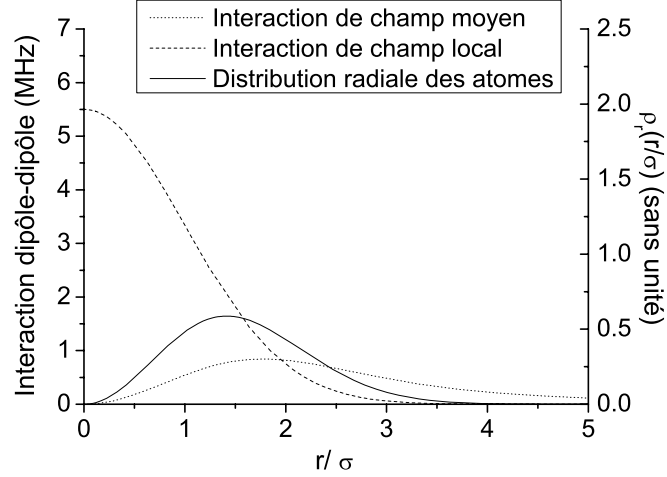


FIG. 4.20 – Comparaison du potentiel local moyen et du potentiel de champ moyen. Les potentiels sont présentés en fonction de la distance au centre du PMO r , après moyennage angulaire. Le calcul est effectué dans le cas d'une distribution d'atomes excités gaussienne de rayon caractéristique $\sigma = 100 \mu\text{m}$ (l'anisotropie de l'interaction dipôle-dipôle peut modifier ce résultat), pour $n = 50$, avec un couplage par champ électrique donné par $\tan^2 \theta = 1$ et 15000 atomes excités. La distribution radiale des atomes de profil normalisé $\rho_r(r/\sigma) = \frac{4\pi(r/\sigma)^2}{(2\pi)^{3/2}} e^{-\frac{(r/\sigma)^2}{2}}$ a été ajoutée pour montrer que le potentiel de champ moyen ne concerne que des atomes très excentrés par rapport au centre du PMO.

avec le plus proche voisin p et du potentiel créé par tous les autres atomes, assimilés à une distribution continue.

$$\delta_{ddi} \approx \int_{\mathcal{V}'} \overline{\rho_{ee}(\vec{R} + \vec{R}_i)} \rho_0(\vec{R} + \vec{R}_i) \alpha_{ij}(\Theta, R) 2\pi \sin \Theta R^2 dR d\Theta + \overline{\rho_{ee}(\vec{R}_i)} \alpha_{ip}(\Theta_p, R_p) \quad (4.33)$$

L'intégrale sur $\mathcal{V}' = \mathcal{V}_{\mathcal{P}, \mathcal{M}O} - \mathcal{V}$ est une somme sur tous les atomes situés à l'extérieur d'une boule ne contenant que le seul plus proche voisin pour l'atome i situé en (R_p, Θ_p) . Le potentiel de champ moyen créé par tous les autres atomes est celui donné par la figure 4.20 (la borne inférieure d'intégration n'a pas d'importance car ce potentiel est localement nul autour de l'atome i). Le potentiel d'interaction avec le plus proche voisin supposé distant de la distance internucléaire la plus probable²⁷ (dans l'état fondamental) est affiché sur la figure 4.20 pour une distribution gaussienne d'atomes. La valeur utilisée est une moyenne angulaire de la valeur absolue du décalage dipôle-dipôle, donnée par l'expression (4.17) utilisée dans la section 4.3.1.2 :

$$|\overline{\delta_{dd}}(\vec{R}_i)| \approx \overline{\rho_{ee}(\vec{R}_i)} f(\theta) \frac{\mu_{pd}^2}{(R_d(\vec{R}_i))^3} = 1.09 f(\theta) \frac{4\pi}{3} \overline{\rho_{ee}(\vec{R}_i)} \rho_0(\vec{R}_i) \quad (4.34)$$

où $R_d(\vec{R}_i)$ est reliée à la densité d'atomes dans l'état fondamental par $R_d^3 = \frac{1}{4\pi/3\rho_0(\vec{R}_i)}$. On voit Fig. 4.21 que ce terme de potentiel d'interaction local moyen est beaucoup plus important que le terme de champ moyen pour environ 3/4 des atomes (nous représentons aussi la distribution radiale des atomes $\frac{4\pi R^2}{(2\pi\sigma^2)^{3/2}} e^{-\frac{R^2}{2\sigma^2}}$ sur la figure 4.21). Les potentiels de

²⁷Rappelons que la distribution d'Erlang est quasi centrée et donc que la distance la plus probable entre un atome et son plus proche voisin est bien $0.9R_d$.

champ moyen et de champ local dépendent tous deux linéairement du nombre d'atomes total présents dans le PMO et conservent le même rapport quelque soit la densité. La conclusion est qu'il n'est pas du tout possible de négliger le potentiel de champ local.

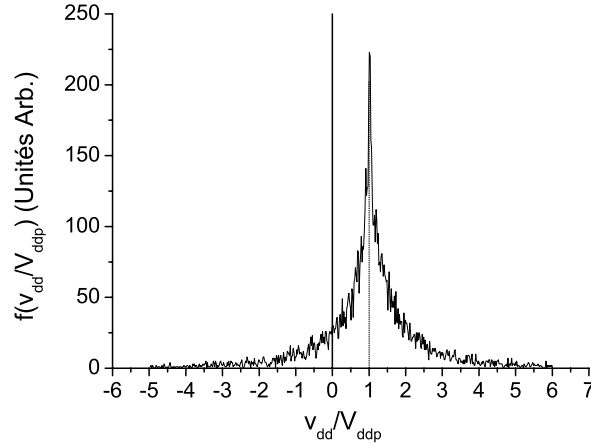


FIG. 4.21 – Fonction de distribution f du décalage d'énergie $V_{dd} \propto \sum_{j \neq i} \alpha_{ij}(\Theta_j, R_j)$ d'un atome placé au centre d'une boule de rayon $20 \mu\text{m}$ et contenant 50 atomes de Rydberg ($\rho_{jee} = 1$) répartis uniformément. Le décalage exact V_{dd} est rapporté au décalage d'énergie $V_{ddp} \equiv \alpha_{ip}$ occasionné par le plus proche voisin. Ce calcul numérique montre que la distribution des décalages d'énergies est centrée autour du décalage d'énergie dû au plus proche voisin.

Au contraire, il est possible d'affirmer que les atomes dont l'excitation sera bloquée au premier abord sont principalement sensibles au potentiel d'interaction avec le plus proche voisin. Pour une évaluation meilleure du décalage d'énergie dû à l'interaction dipôle-dipôle, il serait probablement nécessaire de considérer plusieurs plus proches voisins. Toutefois, la fonction de distribution du rapport entre le potentiel d'interaction total et le potentiel d'interaction avec le plus proche voisin est maximum et centrée au niveau de la valeur de l'interaction avec le plus proche voisin (voir Fig. 4.21). Le calcul est ici effectué pour un ensemble de 50 atomes répartis de façon uniforme dans une boule (et excités uniformément). Ne considérer en première approximation que l'interaction avec le plus proche voisin est donc relativement correct.

Le résultat principal est donc que le décalage, donné par la formule (4.34), est proportionnel en moyenne à la densité d'atomes localement excités dans l'état Rydberg :

$$\delta_{dd} \propto \overline{\rho_{ee}} \times \rho_0$$

Conclusion : probabilité d'excitation

Au paragraphe précédent, nous avons établi un potentiel de champ local "moyen" (au sens où la plus grande partie des atomes ressentent ce potentiel), donné par l'expression (4.34). Nous avons vu par la formule (4.9) que le déplacement du niveau d'énergie d'un atome que l'on souhaite exciter en présence de $(N - 1)$ autres atomes déjà excités est simplement donné par la somme des couplages dipôle-dipôle entre cet atome et les $(N - 1)$ autres. Par les propriétés angulaires de l'interaction dipôle-dipôle, l'interaction est limitée au plus proche voisin et se réduit pour N assez grand à la formule (4.34), si toutefois les atomes excités d'un état moléculaire donné à N corps sont distribués de manière quasi aléatoire. Il n'était pas évident d'appliquer ce résultat à l'excitation d'un ensemble d'atomes couplés par le champ électrique

du laser, ce qui revient à négliger le caractère cohérent de l'excitation. L'expression (4.34) est retrouvée en résolvant plus complètement le système de N atomes interagissant par l'interaction dipôle-dipôle. L'hypothèse principale est une hypothèse de faibles corrélations entre les différents atomes, non exactement justifiée pour l'ensemble des atomes mais probablement correct quand les taux d'excitation sont faibles.

Utiliser un tel potentiel moyen peut ne pas être tout à fait exact à très faibles densités d'atomes excités lorsque le blocage concerne essentiellement des paires d'atomes très proches ou à fortes densités d'atomes excités lorsque les atomes pouvant être excités sont éloignés du plus proche voisin (et subissent donc un potentiel plus faible que le potentiel local moyen).

La question de l'anisotropie de l'interaction dipôle-dipôle doit être soulevée. Pour plus de précision, il serait possible d'intégrer la probabilité d'excitation sur toutes les positions du plus proche voisin, comme ce que nous avons fait dans la section 4.3.3.1. Il est au moins nécessaire d'effectuer une moyenne angulaire pour obtenir la bonne forme des raies spectrales²⁸, donc de moyenniser la probabilité d'excitation sur Θ_p pour un potentiel donné par la formule (4.33) (éventuellement pris pour $R_p \approx 0.9R_d$ pour simplifier le calcul). Pour un décalage du laser TiSa nul par rapport à la transition $7s \rightarrow np_{3/2}(F)$, la formule de champ local moyen (4.34) donne un résultat relativement bon comme nous le vérifions par la suite.

Une question se pose aussi de la généralisation de cette étude à un ensemble d'atomes à 4 niveaux. En fait, la formule (4.26) se réécrit en sommant sur l'ensemble des niveaux possibles $|k\rangle$ d'un atome :

$$Tr_j [V_{ij}, \rho_{i,j}] = \alpha_{ij} \sum_k (\rho_{ij_{ke,ee}} |k_i\rangle \langle e_i| + \rho_{ij_{ee,ke}} |e_i\rangle \langle k_i|) \quad (4.35)$$

De l'approximation de Hartree Fock (4.28), il ressort bien que l'interaction dipôle-dipôle ne fait que déplacer le niveau d'énergie Rydberg de l'atome i , permettant ainsi de généraliser le résultat à un ensemble d'atomes à plusieurs niveaux. Un problème peut se poser de l'utilisation d'un potentiel moyen pour calculer la probabilité d'excitation dans le cadre de l'approximation du champ tournant. En effet, dans le schéma d'excitation à 4 niveaux, si par exemple δ_{PMO} est non nul, des termes $\delta_i = (\delta_{PMO} - \delta_{dd}(\vec{R}_i))$ apparaissent (l'interaction dipôle-dipôle peut favoriser des excitations multiphoniques). Cependant, l'excitation à 3 photons pouvant poser problème est séparée spectralement des autres composantes et seule la composante centrale à 1 photon est vraiment importante. Il est possible d'utiliser le résultat du potentiel de champ local moyen (4.34).

Remarque : au-delà de Hartree-Fock

Analytiquement, il serait possible de tronquer la hiérarchie BBGKY à un ordre plus élevé, i.e. d'exprimer l'évolution de la matrice densité à deux corps $\rho_{i,j}$ en fonction de la matrice densité à trois corps $\rho_{i,j,k}$ pour tenter d'obtenir un résultat encore "meilleur". Toutefois, nous avons vu qu'un grand nombre d'atomes se trouvent corrélées par l'interaction dipôle-dipôle. Il ne serait pas beaucoup plus évident de tronquer la hiérarchie à ce niveau

²⁸Suivant le signe du décalage dû à l'interaction dipôle-dipôle, l'excitation est en effet permise de façon prépondérante soit vers le rouge, soit vers le bleu de la transition. Nous pourrions être intéressés par considérer la valeur moyenne $\overline{\rho_{ee}}(r) \approx \sum \frac{\rho_{ee}}{n}$ pour connaître la densité dans l'état excité, n étant un petit nombre d'atomes contenus dans un volume où l'excitation est considérée comme homogène. Dans l'équation pilote (2.21), il n'est cependant pas possible de remplacer les termes de cohérence par des valeurs moyennes. Dans l'approximation à deux niveaux $|g\rangle$ et $|e\rangle$, ces termes non "simplifiable" seraient de la forme $\sum \frac{\rho_{ieg} \times \delta_i}{n}$, où nous notons $\delta_i = (\delta_{TiSa} - \delta_{dd_i})$. Le terme de cohérence ρ_{ieg} dépend notamment du signe du décalage δ_i : plus exactement $\rho_{ieg} \xrightarrow{\delta_i \rightarrow -\delta_i} -\rho_{ieg}^*$.

en supposant par exemple $\rho_{i,j,k} = \rho_{i,j} \otimes \rho_k$. Un calcul numérique complet est susceptible de fournir un résultat exact. Ce calcul numérique pose des problèmes en terme de temps de calcul [Robicheaux and Hernández, 2005]. Dans [Robicheaux and Hernández, 2005], une approximation utilisée est de remplacer chaque paire d'atomes très proches par un pseudo-atome à deux niveaux en faisant l'hypothèse quasi exact qu'un seul des deux atomes peut être excité et en multipliant la fréquence de Rabi pour l'excitation par $\sqrt{2}$. Malgré cette approximation, le nombre d'atomes qu'il est possible de simuler reste faible (une centaine). Analytiquement, il pourrait être intéressant de remplacer chaque zone comprenant plusieurs atomes dont un seul peut être excité par un système à 2 états possibles, un état sans excitation et un état avec une seule excitation délocalisée.

Remarque : Le problème de l'interaction Van der Waals

Une question se pose de l'application du formalisme précédent au cas de l'interaction Van der Waals en $-C_6/R^6$. Il n'est pas possible d'utiliser directement le résultat (4.33) car l'interaction Van der Waals n'est pas diagonale dans la base des états moléculaires non perturbés. Par exemple, pour l'interaction $pp \leftrightarrow ss'$, l'expression de la fonction d'onde de deux atomes de Rydberg à l'ordre 2 à l'asymptote $np - np$ pour $n > 42$ est la suivante :

$$\Psi \approx \Psi_{pp}^0 \left(1 - \frac{1}{2} \frac{|W|^2}{\delta_{ppss'}^2} \right) + \Psi_{ss'}^0 \frac{W}{\delta_{ppss'}} \quad (4.36)$$

où Ψ_{pp}^0 et $\Psi_{ss'}^0$ sont les fonctions d'onde non perturbées correspondant aux états $|np, np\rangle$ et $\frac{1}{\sqrt{2}}(|ns, (n+1)s\rangle + |(n+1)s, ns\rangle)$, $\delta_{ppss'}$ est le décalage d'énergie entre les niveaux pp et ss' , W le couplage dipôle-dipôle. Cette fonction est simplement l'expression asymptotique relative à l'état $|-\rangle$ (dont la définition est donnée par l'expression (1.78)). La fonction d'onde dépend fortement de la fonction d'onde non perturbée $\Psi_{ss'}^0$, et cette composante ne peut donc être négligée. La résolution exacte du système est toujours à l'étude. Il semble que la prise en compte des corrélations soient nécessaires, ce qui implique qu'il ne soit pas possible d'utiliser directement l'hypothèse dite de "Hartree-Fock".

Nous utilisons dans ce paragraphe une approche similaire à celle utilisée dans l'article [Tong et al., 2004]. Une première observation est que la probabilité d'excitation est modifiée seulement à l'ordre 2 lorsqu'on considère l'excitation de deux atomes en présence d'interaction Van der Waals. La baisse de l'excitation possible due à la modification de la fonction d'onde pour $\delta = \frac{W^2}{\delta_{ppss'}} \sim 10$ MHz est inférieure à 5% alors que le décalage δ du niveau d'énergie de l'état $|-\rangle$ par rapport au niveau pp est largement suffisant pour induire un blocage complet de l'excitation. La fréquence de Rabi pour l'excitation d'un atome est donc supposée inchangée, seul est considéré le décalage d'énergie pour l'excitation d'un atome i au milieu de n autres atomes j déjà excités.

Pour l'excitation dans un état moléculaire à N corps donné, le décalage prend la forme suivante :

$$\begin{aligned} \sum_{j \neq i} \frac{W_{ij}^2}{\delta_{ppss'}} &\approx \delta_{VdW}(\vec{R}_i) \\ &\approx \overline{\rho_{ee}}(\vec{R}_i) \frac{-C_6}{(R_{me}(\vec{R}_i))^6} + \int_{R_{me}}^{\infty} \int_0^{\pi} \overline{\rho_{ee}}(\vec{R} + \vec{R}_i) \rho_0(\vec{R} + \vec{R}_i) \frac{-C_6}{R^6} 2\pi R^2 \sin \Theta dR d\Theta \end{aligned} \quad (4.37)$$

W_{ij} sont les couplages dipôle-dipôle entre l'atome i et les atomes j , $R_{me} \approx 0.9\overline{\rho_{ee}}(\vec{R}_i)R_d(\vec{R}_i)$ est la distance interatomique moyenne dans l'état excité. Cette expression se réduit finalement à :

$$\begin{aligned} \delta_{VdW}(\vec{R}_i) &\approx \overline{\rho_{ee}}(\vec{R}_i) \left(\frac{-C_6}{(R_{me}(\vec{R}_i))^6} + \frac{4\pi}{3}\rho_0(\vec{R}_i) \frac{-C_6}{(R_{me}(\vec{R}_i))^3} \right) \\ &\approx \left(\frac{4\pi}{3}\overline{\rho_{ee}}(\vec{R}_i)\rho_0(\vec{R}_i) \right)^2 \times (-3.3 C_6) \end{aligned}$$

Dans cette formule, le terme de champ moyen est égal à 0,7 fois le terme de champ local moyen. Le terme de champ moyen provient en fait uniquement d'atomes très proches du plus proche voisin (nous avons négligé la borne supérieure de l'intégration). Considérer une distribution discrète de quelques atomes excités autour d'un premier atome serait sans doute plus adéquat. Par ailleurs, cette expression n'est pas tout à fait exacte²⁹, car il faut prendre en compte non pas seulement les états s , s' et p mais tous les sous-niveaux Zeeman qui ne

²⁹Une discussion intéressante est la comparaison de cette formule avec le modèle développé par [Tong et al., 2004]. Dans leur modèle, ils considèrent une boule dans laquelle il n'y a en moyenne qu'un seul atome excité et considèrent que tous les autres atomes forment une distribution continue. Ensuite l'excitation d'un atome à l'intérieur de cette boule est considérée. Lorsque celui-ci est au centre de la boule, il subit un décalage faible mais lorsqu'il est proche du bord, le décalage est beaucoup plus important. Le résultat final est une moyenne sur toutes les positions. C'est une approximation assez grossière ne prenant pas du tout en compte le plus proche voisin ni la distribution de positions des autres plus proches voisins excités. Cependant, cette approximation n'est peut être pas trop mauvaise. En effet, dans leur modèle, le plus proche voisin ne joue un rôle que dans $\frac{7}{60} \sim 11\%$ des cas. Ceci est dû à la particularité des potentiels moléculaires. Seule une des paires de potentiels à l'asymptote $np - np$ est décalée énergétiquement parmi les six couples de potentiels possibles dont deux sont donnés par l'expression (4.3). Finalement, il existe un très grand nombre d'états possibles à N corps et seulement quelques 11% des atomes contribue au décalage (4.37) pour un état donné : le potentiel de champ moyen joue la plupart du temps un rôle beaucoup plus grand. La moyenne effectuée dans une boule contenant en moyenne un atome est sans doute moins exacte car la moyenne doit être effectuée de manière statistique. Il est sans doute plus juste de considérer la distribution possible des plus proches voisins. De ce fait, la formule (4.38), basée sur une hypothèse plus exacte pour donner un potentiel de champ moyen et dans laquelle aurait été négligée la contribution du plus proche voisin pourrait donner un résultat adéquat.

La possibilité de négliger la contribution du plus proche doit être vérifiée avec attention. Nous réalisons cette vérification en faisant un premier calcul dans la base atomique avec le modèle développé dans l'annexe A. L'analyse complète de l'interaction $pp \leftrightarrow ss'$ en présence d'un champ électrique statique est présentée à partir des résultats de l'annexe dans la partie 4.4.1.4. L'analyse en champ nul présentée ici est moins développée mais repose sur les mêmes résultats.

Effectuons cette analyse dans un premier temps en négligeant la structure fine comme dans [Tong et al., 2004], donc dans une base d'états $|nlm; n'l'm'\rangle$. Dans ce cas, l'interaction dipôle-dipôle couple les états $\frac{1}{\sqrt{2}}(|ns0; (n+1)s0\rangle + |(n+1)s0; ns0\rangle)$ aux états $|npm; npm'\rangle$, m et m' appartenant à $\{0, 1, -1\}$. Il y a donc 10 états à considérer. La diagonalisation du système montre que seuls deux états propres sont décalés énergétiquement, un à l'asymptote $np - np$, l'autre à la limite $ns - (n+1)s$. Les autres états sont des zéros d'interaction. Les deux états décalés énergétiquement le sont comme dans un système à deux niveaux où le couplage dipôle-dipôle serait $W_{eff} = 3\sqrt{3}\frac{\mu_{sp}^2}{R^3}$. En considérant l'écart énergétique $\delta_{ppss'}$, le décalage du niveau relié à l'asymptote $np - np$ est $-(3\sqrt{3})^2 \frac{\mu_{sp}^4}{|\delta_{ppss'}|R^6}$ pour $\delta_{ppss'} \gg W_{eff}$. Pour l'état $70p_{3/2}$ ($\delta_{ppss'}$ est calculé à partir des niveaux de structure fine), cela correspond à $C_6 \approx 2.2 \times 10^{22}$ u.a, qui est proche la valeur $C_6 \approx 2.8 \times 10^{22}$ u.a obtenue par les calculs moléculaires plus complets de [Singer et al., 2005]. Nous trouvons également que le couplage de tous les états non perturbés $|npm; npm'\rangle$ avec l'état décalé à la limite $np - np$ est seulement en moyenne d'environ $\frac{7}{60} \sim 11\%$. Toutefois, tous les états $|npm; npm'\rangle$ ne sont pas forcément couplés de la même manière à l'état intermédiaire de l'excitation par laser. L'excitation d'un tel système est en fait complexe. Au départ, en excitation depuis l'états $7s_{1/2}$ non polarisé magnétiquement, tous ces états sont accessibles avec des probabilités bien définies. Il faut considérer la structure fine pour calculer ces probabilités ; l'excitation peut a priori se faire vers les tous états $|npm; npm'\rangle$ du fait de la structure fine de l'état np qui couple tous les états m entre eux. Nous n'effectuons pas le calcul exact ici et pouvons simplement supposé que la moyenne de 11% est proche de la valeur exacte.

sont pas tous couplés de la même manière par l'interaction dipôle-dipôle. Le calcul exact en comparaison de l'expérience décrite dans l'article [Tong et al., 2004] est développé dans la note 29. Pour pouvoir utiliser ce résultat concernant l'interaction Van der Waals, il est nécessaire que l'interaction reste une interaction de type Van der Waals, ce qui n'est pas exactement le cas pour l'interaction $pp \leftrightarrow ss'$ dans nos expériences (cela ne concerne cependant qu'un faible nombre d'atomes). Pour aller plus loin, le développement perturbatif dans la base d'états non perturbés peut être poussé à des ordres plus élevés (tant que le décalage d'énergie $\delta_{ppss'}$ est plus grand que le couplage dipôle-dipôle) mais les états s et s' doivent alors être pris en compte pour calculer la probabilité d'excitation.

4.3.3.3 Premiers résultats

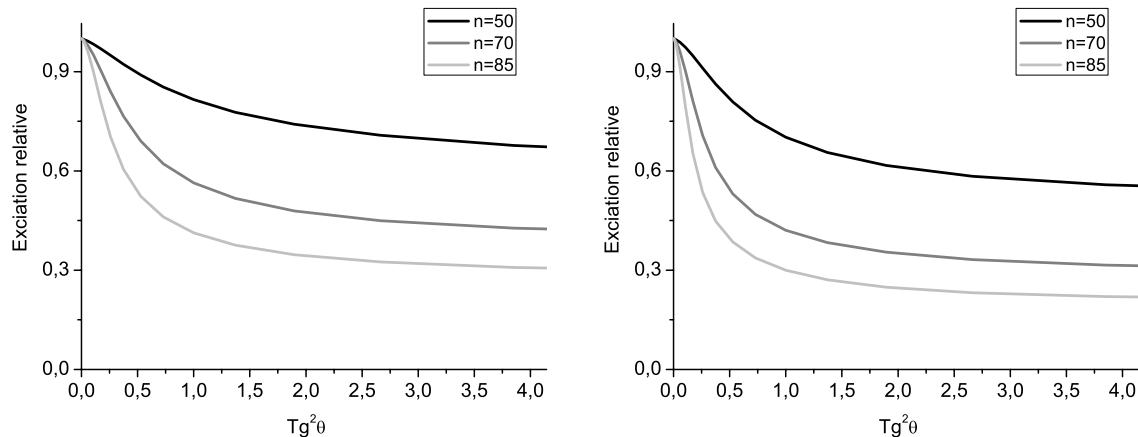
L'interprétation théorique des données est en cours. Un certain nombre de premiers résultats basés sur l'analyse précédente et permettant de retrouver les caractéristiques du blocage

Le calcul avec structure fine est en tous points identique. Il convient en ce cas de considérer tous les états possibles, à savoir pour l'asymptote $np_{3/2} - np_{3/2}$, 16 états $|np_{3/2}m_j; np_{3/2}m'_j\rangle$ possibles (m_j et m'_j appartenant à $\{-3/2, -1/2, 1/2, 3/2\}$) et 4 états symétriques $\frac{1}{\sqrt{2}}(|ns_{1/2}m_j; (n+1)s_{1/2}m'_j\rangle + |(n+1)s_{1/2}m_j; ns_{1/2}m'_j\rangle)$ possibles (m_j et m'_j appartenant à $\{-1/2, 1/2\}$). Il advient alors que 4 états sont décalés énergétiquement sur 10 accessibles à la limite $np_{3/2} - np_{3/2}$. 2 correspondent à un couplage effectif $W_{eff} = 3\sqrt{2}\frac{\mu_{sp}^2}{R^3}$, 2 autres à un couplage $W_{eff} = \sqrt{2}\sqrt{3}\frac{\mu_{sp}^2}{R^3}$, donc plus faibles que lorsque la structure fine n'est pas considérée. De même, les états accessibles à l'excitation sont couplés à hauteur de $\sim 23.5\%$ en moyenne à ces états dont l'énergie est décalée par interaction dipôle-dipôle (à parité entre les deux couples). Cette valeur est faible mais suivant les états de polarisation magnétique des deux atomes au départ, le couplage est soit $\sim 44\%$, soit 3% en considérant que les atomes sont au départ dans une superposition des états de polarisation $m_j = 1/2$ ou $m_j = -1/2$, la limitation de l'excitation possible par le plus proche voisin est d'au plus $\sim 23.5\%$ (un blocage de $\sim 23.5\%$ maximum est possible, lorsque les atomes sont suffisamment proches et si le régime d'excitation est linéaire). Pour obtenir le vrai taux d'excitation pour un atome, il suffit probablement de considérer l'excitation en présence de quelques autres, l'interaction Van der Waals étant clairement limitée aux plus proches voisins excités. C'est sans doute la seule façon de tenir compte du fait que tous les états m_j sont impliqués (la formule (4.36) n'était valable qu'en considérant des états non dégénérés au départ). On peut cependant en première approximation émettre l'hypothèse que tant que l'interaction est faible, les états excités sont principalement les états $m_j = 1/2$ ou $m_j = -1/2$. Auquel cas, la limitation de l'excitation provient principalement du décalage d'énergie possible. Le décalage dû à tous les atomes sauf le plus proche voisin peut se calculer de manière statistique comme dans la formule (4.38), l'interaction d'un atome avec chacun des autres atomes conduisant à un décalage dans $\sim 23.5\%$ des cas. Le décalage dû au champ moyen est donc :

$$\delta_{VdW}(\vec{R}_i) \approx -1.3 \frac{0.235}{2} \left((3\sqrt{2})^2 + 6 \right) \frac{\mu_{sp}^4}{\delta_{ppss'}} \left(\frac{4\pi}{3} \rho_0(\vec{R}_i) \overline{\rho_{ee}}(\vec{R}_i) \right)^2 \quad (4.38)$$

Comme nous l'avons déjà précisé, supposer une distribution continue autour du plus proche voisin pose un problème car seuls les quelques atomes les plus proches ont une influence : la valeur calculée par la formule (4.38) est sans doute surestimée. Il n'est pas possible de rajouter directement la contribution du plus proche voisin sans rajouter le fait que plusieurs états d'excitation sont possibles, au moins un état de paire bloqué et l'autre non bloqué. Utiliser une moyenne sur tous ces états comme pour le couplage avec tous les autres atomes serait sans doute une grosse approximation. En effet, utiliser le terme élevé du décalage d'énergie moyenné dû à l'interaction avec le plus proche voisin excité d'un atome i conduirait à simuler un blocage trop rapide de l'excitation de l'atome i alors qu'en fait seule la moitié des états moléculaires sont concernés et que le blocage de l'excitation de cet atome est au plus 23.5% . Négliger complètement la contribution du plus proche voisin comme dans [Tong et al., 2004] est aussi un peu grossier : $\sim 12\%$ du blocage de l'excitation d'une paire est dû au plus proche voisin. En première approximation, nous avons cependant utilisé une formule proche de la formule (4.38) au facteur 1.3 près, qui semble fournir une valeur moyenne relativement correcte pour décrire l'excitation en présence d'interaction Van der Waals, ne considérant pas l'effet du plus proche voisin mais maximisant l'effet des autres atomes.

dipolaire obtenues expérimentalement sont exposés dans ce paragraphe.



(a) Nombre d'atomes excités rapporté à 1 en champ nul en fonction du paramètre $(\tan \theta)^2$ caractérisant le couplage Stark p-d. Les états étudiés sont les états $50p_{3/2}$, $70p_{3/2}$ et $85p_{3/2}$. Le nombre d'atomes initialement dans le PMO est $N_0 = 3 \times 10^7$, la puissance du laser Ti:Sa est 15 mW et celle de la diode 1470 $0.4 \mu\text{W}$.

(b) Même résultats que sur la Fig. (a) mais $N_0 = 5 \times 10^7$.

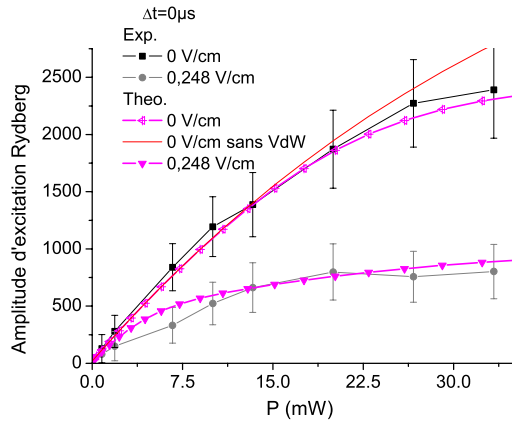
FIG. 4.22 – Calculs pour différents n , en fonction de l'état $np_{3/2}$ excité, du champ électrique et du nombre d'atomes initialement dans le PMO.

Les calculs sont effectués en utilisant la formule³⁰ (4.34) et le modèle d'excitation à 4 niveaux (2.21) pour calculer la probabilité d'excitation dans l'état Rydberg. En pratique, il faudrait intégrer la probabilité d'excitation dans l'état Rydberg sur tout le volume du PMO pour obtenir le nombre d'atomes de Rydberg excités. Pour diminuer le temps de calcul, la probabilité d'excitation n'est calculée que pour des intensités moyennes³¹ pour le laser Ti:Sa et la diode 1470. Ceci peut induire une déviation par rapport aux données expérimentales puisque le blocage dipolaire peut apparaître d'abord dans les zones d'excitation et densités maximales (une diminution d'un facteur 4 de la densité implique par exemple une diminution d'un facteur 1,6 de l'espacement internucléaire moyen et un facteur 4 du couplage dipôle-dipôle). La densité du PMO est quasiment homogène au niveau de la zone d'excitation pour les expériences en densité dans la section 4.3.2 et considérée comme maximale. Les nombres d'atomes excités impliquent que pour un PMO de rayon caractéristique $300 \mu\text{m}$, le nombre d'atomes dans le PMO soit de l'ordre de $4\text{-}5 \times 10^7$ atomes, soit une densité au centre du PMO d'environ 10^{11} at/cm³ (cette estimation utilise la formule (4.20) intégrée sur le volume d'excitation).

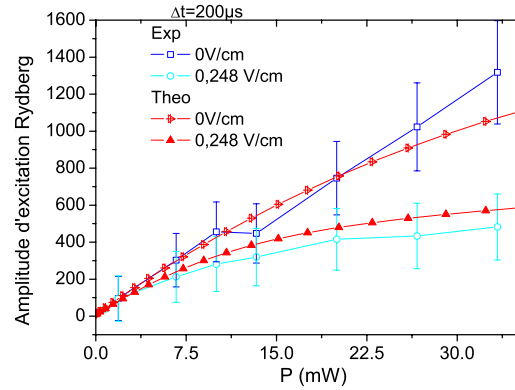
Les résultats du calcul font apparaître une dépendance de l'excitation similaire à l'expé-

³⁰Rappelons que la formule (4.34) est approchée. L'interaction médiane exacte entre deux atomes plus proches voisins est donnée par exemple en remplaçant le facteur 1.09 par 0.97 (cf formule (4.18)). Nous remplaçons finalement le facteur 1.09 de la formule (4.34) par 1.0. Cela n'affecte que très peu le résultat du calcul présenté.

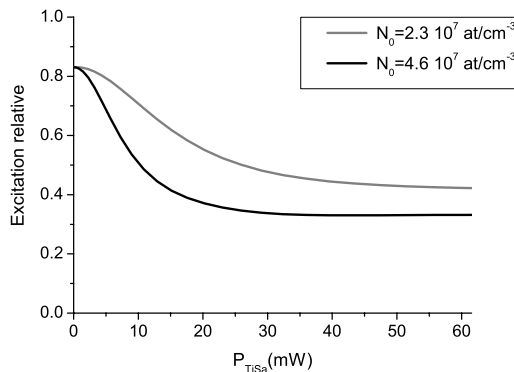
³¹Le calcul des intensités moyennes est effectué suivant l'expression (2.16). La densité dans l'état Rydberg est supposée non saturée pour ce calcul : $n_{ryd}(\vec{r}) \propto I_{TiSa}(\vec{r})I_{1470}(\vec{r})$. D'où nous obtenons $I_{1470,moy} \approx 0.6 \times I_{1470,max}$ et $I_{TiSa,moy} \approx I_{TiSa,max}/2$.



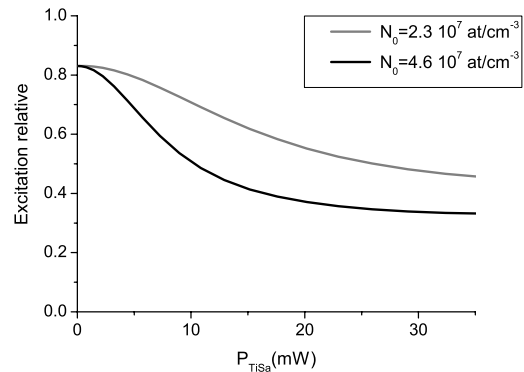
(a) Ajustement des données de la Fig. 4.11. Nombre d'atomes excité dans l'état $70p_{3/2}$ en fonction de la puissance du laser Ti:Sa en champ nul et en champ électrique ($(\tan \theta)^2 = 1$). Les variables d'ajustement sont le nombre d'atomes initialement présents dans le PMO ($4.6 \cdot 10^7 \text{ at/cm}^3$) et le nombre exact d'atomes excités en champ nul. La courbe en trait plein indique le calcul sans prendre en compte l'interaction Van der Waals.



(b) Ajustement des données de la Fig. 4.11. Probabilité d'excitation dans l'état $70p_{3/2}$ en fonction de la puissance du laser Ti:Sa en champ nul en champ électrique ($(\tan \theta)^2 = 1$), après coupure du laser repompeur pendant $200 \mu s$. Par rapport à la figure 4.23(a), il est supposé que le nombre initial d'atomes excités est divisé par 2.0 comme dans l'expérience.



(c) Rapport entre les probabilités d'excitation de l'état $70p_{3/2}$ en champ ($(\tan \theta)^2 = 1$) et en champ nul, en fonction de la puissance du laser Ti:Sa et pour deux nombres d'atomes initialement présents dans le PMO.



(d) Zoom à faibles puissances des données de la Fig. 4.23(c).

FIG. 4.23 – Calculs de l'excitation de l'état $70p_{3/2}$ en fonction de la puissance du laser Ti:Sa et du nombre d'atomes initialement dans le PMO.

rience vis-à-vis des différents paramètres que sont le nombre d'atomes initialement dans le PMO (N_0), la puissance du laser Ti:Sa, l'état de Rydberg excité ou encore le champ électrique (exprimé en fonction du paramètre $(\tan \theta)^2$). La chute de l'excitation est très rapide en champ électrique et atteint rapidement une valeur où elle sature pour $(\tan \theta)^2 \approx 1$ (cf Fig. 4.22), d'où le choix de cette valeur de couplage pour réaliser les études en densité. Pour une puissance variant en n^3 , on retrouve bien comme dans l'expérience 4.3.1.1 que la suppression d'excitation varie comme approximativement comme n^{-7} à champ électrique fixé.

L'augmentation de la suppression d'excitation calculée pour l'état $70p_{3/2}$ en fonction de la puissance du laser Ti:Sa (cf. Fig. 4.23(b) et 4.23(a)) est à rapprocher de la réalisation expérimentale (cf Fig. 4.11). Cette chute est d'abord rapide puis tend à "saturer" (cf Fig. 4.23(c)). L'une des raisons pour laquelle l'efficacité du blocage tend à être limitée, en fonction de la puissance du laser Ti:Sa, est l'apparition du phénomène de saturation par puissance. A cette saturation par puissance s'ajoute l'effet de l'interaction $pp \leftrightarrow ss'$, que nous avons pris en compte en champ nul uniquement, avec la formule (4.38). Il est à noter que l'"ajustement" utilise comme paramètres la densité initiale (via le nombre total d'atomes N_0 dans le PMO) et le nombre d'atomes excités en champ nul indépendamment³² pour les deux expériences présentées ici, l'une utilisant la densité maximale d'atomes accessibles dans l'état $6s$, l'autre étant réalisée après coupure du laser repompeur pendant $200 \mu s$ (densité d'atomes dans l'état $6s$ divisée par 2). L'évaluation exacte de la saturation en raison de l'interaction Van der Waals est délicate, de même que la détermination exacte des intensités de saturation (le problème tient à la détermination des moments dipolaires de transition, les courbes s'ajustent mieux en prenant une intensité de saturation par puissance légèrement plus faible). Enfin, mentionnons que les barres d'erreur expérimentales et théoriques sont importantes, il n'est pas forcément étonnant que la saturation par puissance n'apparaisse pas légèrement en champ nul dans le cas de la plus faible densité initiale d'atomes³³. A ce stade, on peut cependant conclure que le modèle est en bon accord avec les résultats expérimentaux et cela nous confirme bien l'observation du blocage dipolaire.

Au final, les rapports d'excitation en champ nul et en champ électrique obtenus par le calcul sont très proches des résultats expérimentaux (cf Fig. 4.12). Expérimentalement, l'apparition du blocage dipolaire pour des taux d'excitation un peu plus faibles que ce que nous montrons par le calcul peut s'expliquer par la nécessité de prendre en compte la distribution spatiales exacte des différents atomes et la présence de paires d'atomes très proches ne pouvant quasiment jamais être excités. Une simulation numérique Monte Carlo en cours répondra sans doute à de nombreuses questions en suspend dont l'une est le rôle joué par l'anisotropie de l'interaction dipôle-dipôle. En effet, l'excitation reste possible autour d'un atome de Rydberg suivant les axes faisant un angle de 54° avec l'axe du champ électrique. La répartition spatiale des atomes de Rydberg n'est plus dans ce cas aléatoire mais pourrait tendre vers une distribution semi-organisée au cours de l'excitation.

Conclusion

³²A priori, le nombre d'atomes a été divisé par 2 entre les deux expériences et la connaissance de cette valeur aurait dû suffire. Le facteur de normalisation s du nombre d'atomes à utiliser pour retrouver les résultats expérimentaux devrait être le même, soit le terme $s = \frac{N_{max}}{\rho_{ee,max}}$ où s est le rapport entre le nombre maximum d'atomes excités en champ nul et le résultat du calcul correspondant. Un facteur 1.07 est utilisé entre les deux expériences présentées, sans coupure du laser repompeur et avec coupure. Ceci n'est pas étonnant. Une mesure plus précise de la densité initiale aurait probablement permis d'obtenir un meilleur ajustement. Le résultat du calcul doit par ailleurs être intégré sur tout le volume du PMO pour l'obtention d'un résultat plus quantitatif.

³³Un calcul récent et plus exact avec intégration sur tout le volume d'excitation montre qu'en fait cette saturation par puissance est moins marquée.

Les différents résultats expérimentaux sont confirmés et assez bien reproduits par un modèle simple utilisant un potentiel d'interaction local moyen correspondant à l'interaction dipôle-dipôle avec le plus proche voisin situé à une distance donnée par l'espacement interatomique moyen. Cette interaction revient à considérer un décalage du niveau d'énergie de chacun des atomes en moyenne proportionnel à la densité d'atomes excités. Nous avons tenté de résoudre le plus rigoureusement possible l'excitation d'un ensemble d'atomes vers un état Rydberg en présence de champ électrique. Le principal problème survient lorsqu'il faut considérer correctement les corrélations entre atomes. Pour éviter ce problème, nous avons utilisé une hypothèse de faibles corrélations analogue à l'hypothèse de Hartree Fock dans les théories de champ moyen usuelles. La particularité dans le traitement de l'interaction dipôle-dipôle entre atomes de Rydberg est la très longue portée des interactions et le fait que les atomes peuvent être considérés en première approximation comme immobiles à l'échelle de l'expérience. Moyennant l'hypothèse de faibles taux d'excitation et donc de faibles corrélations entre atomes, il apparaît, comme nous avons l'utilisé jusqu'à présent, qu'il suffit, pour évaluer la possibilité d'exciter un atome vers un état de Rydberg, de considérer l'interaction moyenne avec le plus proche atome voisin excité. Un autre point que nous avons pu souligner est l'effet de la saturation par puissance, rencontré pour de faibles puissances malgré les états de grands n étudiés.

L'interaction Van der Waals en $-C_6/R^6$ due à l'interaction $pp \leftrightarrow ss'$ a également été discutée en détail. La détermination exacte de son influence en champ nul est confrontée au fait qu'un grand nombre d'états possibles sont des zéros d'interaction et ne bloquent pas l'excitation. La limitation de l'excitation obtenue dans l'expérience [Tong et al., 2004] est en fait due à quelques atomes plus proches voisins. Cette interaction Van der Waals a rendu difficile la mise en évidence du blocage dipolaire en champ électrique dans l'excitation de l'état $np_{3/2}$. Elle est en effet essentiellement présente en champ électrique nul en raison du décalage Stark de l'état $np_{3/2}$ et disparaît rapidement en présence d'un petit champ électrique alors qu'apparaît très rapidement l'interaction dipôle-dipôle en champ électrique. L'étude de l'interaction $pp \leftrightarrow ss'$ est reprise plus en détails à résonance de Förster au chapitre 4.4. Nous y verrons notamment que la présence d'un champ électrique modifie considérablement l'aspect de l'interaction $pp \leftrightarrow ss'$.

Le contrôle de l'interaction dipôle-dipôle en champ électrique a été démontré. Après diagnostic des différents phénomènes parasites possibles, il apparaît relativement aisé de maîtriser correctement le couplage dans le système modèle $np - nd$. Les perspectives expérimentales de cette expérience ont été discutées en conclusion de la partie expérimentale, au paragraphe 4.3.2.4. L'expérience va tendre vers une diminution du volume d'excitation afin de démontrer le blocage total de l'excitation. D'autres configurations d'interaction dipôle-dipôle doivent être testées avant de choisir quelle sera celle convenant le mieux aux expériences d'information quantique. Nous présentons au chapitre suivant une autre méthode permettant de bloquer l'excitation par interaction dipôle-dipôle tirant parti de l'interaction $pp \leftrightarrow ss'$ à résonance de Förster et pouvant s'avérer également intéressante.

4.4 Blocage dipolaire à résonance de Förster

L'utilisation d'une résonance de Förster telle que celles que nous avons décrites au chapitre 1.3.4 pour étudier le blocage dipolaire présente l'avantage d'être bien contrôlable en champ électrique. La résonance est obtenue lorsque l'état Stark $np_{3/2}(F)$ se trouve à mi-chemin entre les états ns et $(n+1)s$. Exactement, nous avons étudié la résonance de Förster suivante, avec $|m_j| = 1/2$, pour n variant de 25 à 41 :

$$np_{3/2}(F_0), |m_j| + np_{3/2}(F_0), |m_j| \rightarrow ns_{1/2}(F_0), |m_j| + (n+1)s_{1/2}(F_0), |m_j| \quad (4.39)$$

Les positions en champ électrique de ces résonances sont données sur la figure 1.12. L'évolution en fonction de n de l'écart d'énergie $\delta = 2 \times E(npnp) - (E(ns) + E((n+1)s))$ est quasiment identique pour le césium (cf Fig. 4.24) et pour le rubidium (cf Fig. 4.2). Dans le cas du césium, δ décroît jusqu'à $n=55$ ($\delta \approx -238.2$ MHz) en passant quasiment par 0 pour $n = 42$ ($\delta \approx -9.6$ MHz). Pour $n > 55$, le décalage croît de nouveau lentement et tend vers 0. Les résonances de Förster peuvent donc être observées seulement pour $n < 42$.

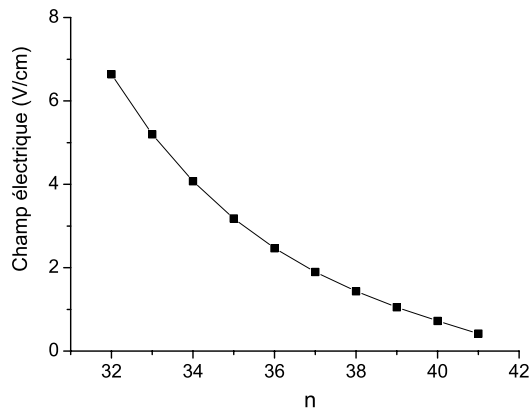


FIG. 4.24 – Positions des résonances de Förster pour $31 < n < 42$. Le calcul est approché, il ne tient pas compte de la polarisabilité des états ns , le décalage Stark de l'état $np_{3/2}$ est calculé uniquement en utilisant le modèle à 2 niveaux développé dans la section 1.3.2.1. Les valeurs de champ électrique de résonance sont valides à mieux que 0.05 V/cm pour $n > 35$.

Nous mettons en évidence une saturation de l'excitation au niveau de chacune de ces résonances. Une analyse des résultats peut être trouvée dans [Vogt et al., 2006]. Le rôle des ions a pu être écarté et le rôle du blocage dipolaire clairement identifié. Comme dans la section 4.3, nous analysons le blocage dipolaire en fonction du nombre quantique principal n , en faisant varier la fréquence d'excitation laser et en faisant varier la position en champ électrique par rapport à la résonance de Förster. L'évolution du blocage dipolaire en fonction de la densité est caractérisée avec beaucoup de soin, en particulier pour comprendre les phénomènes de saturation par puissance de l'excitation qui masquent le blocage dipolaire en élargissant les raies d'excitation. Finalement, nous analysons les phénomènes de collisions froides ionisantes susceptibles également de masquer le blocage dipolaire.

4.4.1 Etudes comparées de différents n : Mise en évidence du blocage dipolaire

Les résonances de Förster ont été étudiées pour $n=25, 33, 36, 38, 40$ et 41 en fonction du champ électrique : comme dans la section 4.3 où nous étudions le blocage dipolaire induit par champ électrique, nous étudions les amplitudes et les largeurs des raies pour différents champs électriques autour de la résonance de Förster. Nous maintenons des conditions expérimentales identiques pour chacun des états étudiés : diode 1470 de puissance $1.1 \mu\text{W}$ focalisée avec un waist de $105 \mu\text{m}$ sur le PMO et laser Ti:Sa de puissance 8 mW focalisé avec un waist de $75 \mu\text{m}$.

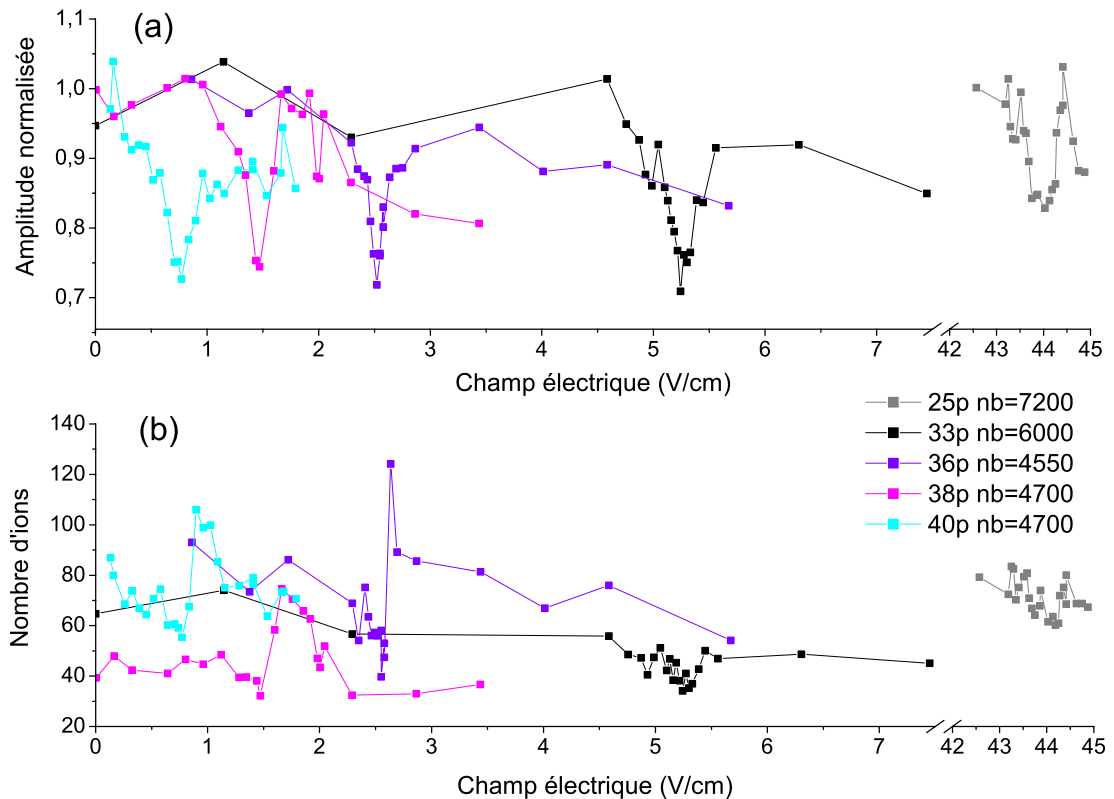


FIG. 4.25 – (a) Nombre d’atomes de Rydberg normalisé, en fonction du champ électrique, pour différents états $np_{3/2}$: $40p_{3/2}$, $38p_{3/2}$, $36p_{3/2}$ et $33p_{3/2}$. Chaque point correspond à l’amplitude maximum de la raie d’excitation Rydberg. Le signal est normalisé à un lorsque le signal est approximativement maximum, en général en champ nul, excepté pour $n = 25$ pour lequel le signal est normalisé à un à 43.17 V/cm . Nous indiquons les nombres correspondant dans la légende. La puissance du laser Ti:Sa est maintenue constante (8 mW) et la puissance de la diode 1470 est de $1.1 \mu\text{W}$. Un blocage de l’excitation est présent pour chacun des états au niveau des résonances de Förster (les champs de résonances expérimentaux sont $F = 44.03, 5.27, 2.53, 1.46, \text{ et } 0.75 \text{ V/cm}$ pour, respectivement, $n=25, 33, 36, 38 \text{ et } 40$). (b) Pour chacun des états, les nombres d’ions sont relevés simultanément avec les nombres d’atomes de Rydberg. Il apparaît une résonance sur le nombre d’ions pour les états $n > 36$, sur l’aile droite des résonances de Förster.

Les amplitudes normalisées des nombres totaux d’atomes de Rydberg sont présentées Fig. 4.25 pour l’excitation dans les états $40p_{3/2}$, $38p_{3/2}$, $36p_{3/2}$, $33p_{3/2}$ et $25p_{3/2}$. Elles sont nor-

malisées à un pour un signal pris comme référence égal à 1 en champ nul pour la plupart des résonances étudiées en fonction du champ électrique. Une limitation de l'excitation d'environ 30% est observée pour un champ correspondant à la résonance de Förster pour chacun des états présentés Fig. 4.25 excepté $n = 25$ (pour lequel le blocage dipolaire à résonance de Förster n'est pas facilement identifiable avec nos conditions expérimentales).

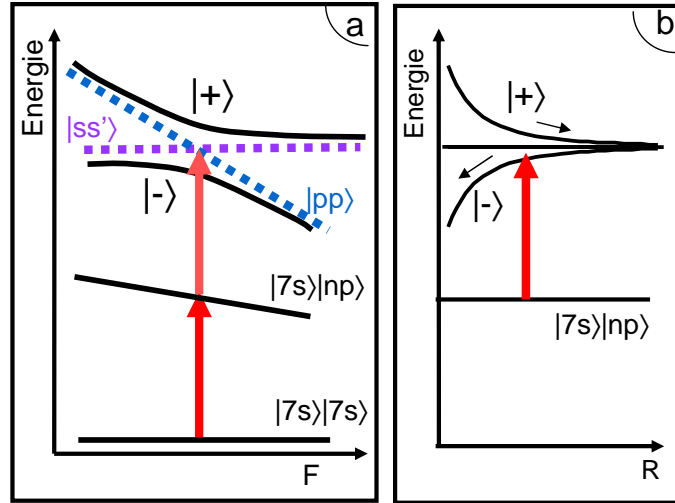


FIG. 4.26 – (a) Excitation d'une paire d'atomes à résonance de Förster. Le couplage dipôle-dipôle $v_{dd} \sim \frac{\mu_{sp}\mu_{s'p}}{R^3}$ conduit à un croisement évité entre les énergies des niveaux non perturbés $pp \equiv |np_{3/2}\rangle \otimes |np_{3/2}\rangle$ et $ss' \equiv |ns\rangle \otimes |(n+1)s\rangle$. A résonance, les états propres sont $|+\rangle = (pp + ss')/\sqrt{2}$ et $|-\rangle = (pp - ss')/\sqrt{2}$. (b) Energies des états $|+\rangle$ et $|-\rangle$ en fonction de la distance internucléaire. Une excitation prépondérante de l'état $|-\rangle$ conduit à une force dipolaire attractive alors qu'une excitation prépondérante de l'état $|+\rangle$ conduit à une force dipolaire répulsive. A noter que le fait que les états $|+\rangle$ et $|-\rangle$ soient attractifs ou répulsifs dépend du signe de l'interaction v_{dd} .

Pour comprendre ces observations, la figure 4.26 schématise le phénomène de blocage de l'excitation observé à résonance de Förster. Dans une approche à 2 corps, en considérant seulement l'interaction d'un atome avec le plus proche voisin, le croisement entre les deux niveaux $|pp\rangle$ et $|ss'\rangle$ est évité à cause de l'interaction dipôle-dipôle. A résonance de Förster, si l'interaction dipôle-dipôle $v_{dd} \approx \frac{\mu_{sp}\mu_{s'p}}{R^3}$ est plus grande que la largeur spectrale de l'excitation $\Delta\nu$, l'excitation d'un deuxième atome n'est pas possible. Sur les ailes de la résonance, cette condition devient $|\frac{\Delta}{2}(\sqrt{1 + \tan^2 \theta} - 1)| > \Delta\nu$ avec $\tan \theta = \frac{v_{dd}}{\Delta/2}$ (Δ est le décalage entre les niveaux non perturbés pp et ss' dépendant du champ électrique). Une valeur plus exacte pour le couplage que nous allons être amenés à utiliser est $v_{dd} \approx \frac{\sqrt{2}\mu_{sp}\mu_{s'p}}{R^3}$, le facteur $\sqrt{2}$ provenant du fait que l'état $|pp\rangle$ est en fait couplé à l'état symétrique $\frac{|ss'\rangle + |s's\rangle}{\sqrt{2}}$ et pas seulement à l'état $|ss'\rangle$.

Les nombres d'ions sont également présents Fig. 4.25. Le nombre d'ions est relativement constant, limité à moins de 2% du nombre total d'atomes de Rydberg, avec un maximum pour des champs électriques plus élevés que ceux de la résonance de Förster. Dans le cas qui nous concerne, leur effet est négligeable dans le mécanisme de blocage ici mis en évidence. Il semble même que leur nombre diminue légèrement sur l'aile des champs faibles de chaque résonance de Förster et qu'il atteigne un minimum exactement à résonance.

Le blocage dipolaire est donc bien mis en évidence. Les paragraphes suivants analysent plus

en détails les résultats du blocage pour les états $38p_{3/2}$, $36p_{3/2}$ et $33p_{3/2}$. Ces états présentent l'intérêt que les sous-niveaux $|m_j|$ sont résolus en champ électrique au niveau des résonances de Förster, l'état $|m_j| = 1/2$ étant donc excité sélectivement. L'analyse porte notamment sur les taux d'excitation mesurés et sur les formes des raies spectrales ou des raies en champ électrique. Une étude complémentaire portant sur les états $43p_{3/2}$, $42p_{3/2}$, $41p_{3/2}$ et $40p_{3/2}$ sera présentée plus loin.

4.4.1.1 Blocage dipolaire pour la résonance de Förster de l'état $38p_{3/2}$

La figure 4.27 montre l'effet du blocage dipolaire dans le cas de l'état $38p_{3/2}$. Le nombre total d'atomes excités (N_{tot}) est d'environ 4700 en champ électrique nul (cf Fig. 4.27 (1)-(a)), soit une densité pic d'environ $3.0 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$. Un minimum marqué pour N_{tot} est présent lorsque le champ est à résonance de Förster ($F=1.46 \text{ V/cm}$), le nombre d'atomes excités n'est alors que de 3400, soit, au centre du nuage Rydberg, une densité pic³⁴ de $2.2 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$ correspondant à une distance internucléaire moyenne valant $R_d = 4.8 \mu\text{m}$. Cette dernière valeur est compatible avec le fait qu'une paire d'atomes ne peut être excitée à résonance de Förster que si la distance internucléaire est plus grande que $R_{min} \sim 4.5 \mu\text{m}$ vérifiant en première approximation $W = \frac{\sqrt{2}\mu_{sp}\mu_{s'p}}{R_{min}^3} \sim \Delta\nu$, où W est le terme de couplage dipôle-dipôle entre les deux atomes et $\Delta\nu$ la résolution spectrale de l'excitation ($\sim 6 - 7 \text{ MHz}$ dans cette expérience, cette valeur varie avec la puissance laser d'excitation). En dehors de résonance,

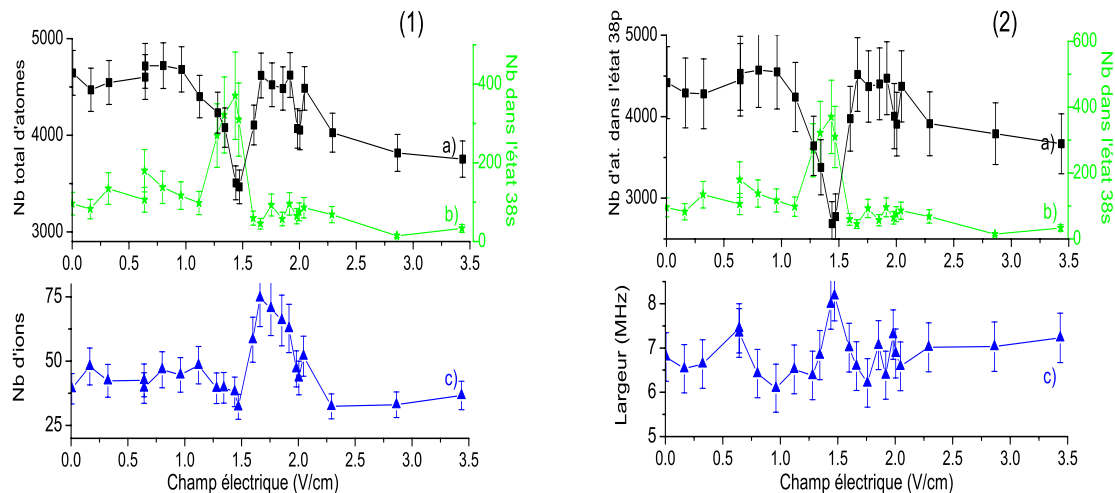


FIG. 4.27 – Etat $38p_{3/2}$. (1) Nombre total d'atomes de Rydberg (carrés), nombre d'atomes dans l'état 38s (étoiles) et nombre d'ions (triangles) en fonction du champ électrique. La résonance de Förster est obtenue pour un champ $F = 1.46 \text{ V/cm}$. (2) Nombre d'atomes dans l'état $38p_{3/2}$ (carrés) et nombre d'atomes dans l'état 38s (étoiles). De l'ordre de $1/5$ du signal p est "transféré" vers les états 38s et 39s, ceci n'explique pas bien sûr la diminution observée sur le signal p , due en grande partie au blocage de l'excitation. La largeur de raie (triangles) montre un faible élargissement à résonance de Förster, de 6.5 à 8.5 MHz.

N_{tot} est relativement constant à champs faibles mais diminue à champs élevés. Ceci est dû aux effets conjoints de la diminution de la force d'oscillateur en champ électrique et du blocage

³⁴La saturation par blocage de l'excitation n'est pas considérée dans ce calcul. Nous considérons uniquement la formule (4.20). La densité au centre du nuage est en fait plus faible.

dipolaire en champ électrique. Un champ de 3.5 V/cm correspond en effet à $\tan^2 \theta = 0.27$ pour $n=38$. La force d'oscillateur a déjà diminué de 5.7% pour un tel champ. En considérant que $\mu_{sp} \sim \mu_{s'p} \sim 0.7 \times \mu_{pd}$, le couplage dipôle-dipôle $p-d$ est $\sim 0.4 \frac{\mu_{sp}\mu_{s'p}}{R^3}$, il est comparable au couplage à résonance de Förster et ceci explique qu'il soit observé.

La figure 4.27 (1)-(b) reporte le nombre d'ions comme sur la Fig. 4.25. Ce nombre d'ions reste faible sur l'aile gauche de la résonance de Förster, concernant moins de 2% de N_{tot} . Ce nombre augmente rapidement sur l'aile des champs élevés de la résonance de Förster et atteint un léger maximum pour un champ égal à $F'=1.65$ V/cm. Ceci est une conséquence de la présence des forces dipolaires. Sur la figure 4.26 (b), il est mis en évidence que l'état propre d'énergie la plus basse du système à deux niveaux est attractif. La première preuve de collisions ionisantes induites par les forces dipolaires a été donnée par [Li et al., 2005] : l'excitation sur une courbe moléculaire attractive conduit à une collision ionisante. Au paragraphe 4.4.5, nous expliquons plus en détails et justifions la présence d'une ionisation résonante légèrement décalée par rapport à la résonance de Förster. Il est pour l'instant important de noter que cette légère résonance d'ionisation sur l'aile droite de la résonance de Förster n'a aucune incidence sur le nombre total d'atomes de Rydberg détectés. S'il y avait un blocage de l'excitation par charges d'espace, le nombre d'ions étant maximum au centre des raies d'excitation, nous devrions observé un blocage de l'excitation supplémentaire pour le champ F' ainsi qu'un élargissement apparent des raies, ce qui n'est pas le cas.

Les figures 4.27 (2)-(a) et (2)-(b) montrent respectivement les signaux $38p_{3/2}$ et $38s$. Pas loin d'un cinquième du signal N_{tot} obtenu à résonance de Förster provient de l'excitation des états $38s$ et $39s$ (à parts égales). Le signal $38p_{3/2}$ présente une forte diminution à résonance de Förster, expliquée par les deux mécanismes, le transfert de l'excitation vers les états s et le blocage de l'excitation. Enfin la figure 4.27 (2)-(c) reprend les largeurs de raie pour les données du nombre total d'atomes de la figure 4.27 (1)-(a). Il apparaît un léger élargissement au voisinage de la résonance de Förster. Ceci est en fait bien compris sur les spectres de la Fig. 4.28. Ces spectres montrent que le blocage est présent principalement au centre des raies. De même qu'avec le blocage par champ électrique, ce blocage au centre des raies conduit à un léger élargissement apparent provenant de la mesure à mi-hauteur de la largeur de raie (cf Fig. 4.27 (2)-(c)).

4.4.1.2 Décalages spectraux : signature de l'interaction moléculaire

Les raies d'excitation s et p présentent des décalages spectraux typiques de l'interaction entre deux atomes de Rydberg. Les raies de l'état $33s$ et de l'état $33p_{3/2}$ sont par exemple enregistrées pour deux champs électriques de part et d'autre de la résonance de Förster $n = 33$ sur la Fig. 4.29. Pour un champ $F_1=5.1$ V/cm sur l'aile gauche de la résonance de Förster (obtenue pour $F=5.27$ V/cm), la raie de l'état s se décale vers le bleu par rapport à la raie de l'état p . Pour un champ $F_2=5.33$ V/cm sur l'aile droite de la résonance de Förster, le décalage est vers le rouge. Seules des paires d'atomes suffisamment proches contribuent au signal s à temps courts. Dans le modèle moléculaire à deux niveaux 4.26, les deux états qu'il est possible d'exciter sont les états $|+\rangle$ ou $|-\rangle$. Le niveau d'énergie de l'état répulsif $|+\rangle$ est décalé vers le bleu par rapport à celui de l'état non perturbé $|pp\rangle$ à gauche de la résonance de Förster car seul cet état est excité à gauche de la résonance, et à droite de résonance, le niveau $|-\rangle$ est décalé vers le rouge du niveau $|pp\rangle$. D'où les décalages énergétiques présentés sur la Fig. 4.29. Le décalage entre les raies s et p est au maximum de l'ordre de 2 MHz sur les ailes de la résonance (nul à résonance) car si le décalage est trop grand, l'excitation du deuxième atome est bloquée, il n'y a donc pas possibilité d'excitation de l'état s .

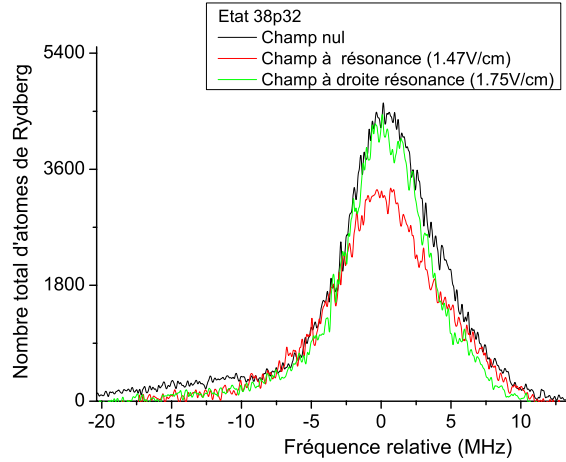


FIG. 4.28 – Spectres de l'état $38p_{3/2}$ pour différents champs électriques, correspondant aux données de la Fig. 4.27. Le blocage de l'excitation à résonance de Förster ($F=1.46$ V/cm) est plus important au centre de la raie que sur les ailes et conduit à un élargissement apparent (mais faible) de la raie (FWMH).

4.4.1.3 Niveaux moléculaires à résonance de Förster

Il semble que le blocage de l'excitation soit limité à $\sim 30\%$ sur la figure 4.25 pour l'ensemble des états $np_{3/2}$. Nous nous proposons dans ce paragraphe d'analyser dans quel mesure cet effet peut être dû à l'anisotropie de l'interaction dipôle-dipôle en tenant compte de la dégénérescence des sous-niveaux Zeeman d'un atome dans le calcul des états moléculaires.

Comme il est montré en annexe A, les couplages dipôle-dipôle varient suivant les différentes valeurs de $m_j = \pm 1/2$. Nous considérons la base d'états non perturbés p_+p_+ , p_-p_- , p_+p_- et p_-p_+ ainsi que les états symétriques $s_+s'_+$, $s_-s'_-$, $s_+s'_-$ et s'_-s_+ (les notations pour le spin sont $|+\rangle \equiv |m_j = +1/2\rangle$ et $|-\rangle \equiv |m_j = -1/2\rangle$) et concernant les états $|nlj\rangle$: $|p\rangle \equiv |np_{3/2}\rangle$, $|s\rangle \equiv |ns\rangle$ et $|s'\rangle \equiv |(n+1)s\rangle$. Nous considérons seulement les états symétriques $ss' \equiv \frac{1}{\sqrt{2}}(|ns(n+1)s\rangle + |(n+1)ns\rangle)$. Les états antisymétriques ne sont pas couplés par interaction dipôle-dipôle aux états pp , il n'y a donc pas lieu d'en tenir compte. En présence de champ électrique, il existe 8 états propres non dégénérés. Le système est donc de manière générale compliqué à décrire (le diagramme d'énergie est cependant proche de celui d'un système à 2 niveaux avec un croisement évité par l'interaction dipôle-dipôle, comme on le voit sur la Fig. 4.30). On voit Fig. 4.31 que les niveaux d'énergie sont 2 à 2 symétriques (d'énergie $\pm v_{dd}$) quel que soit l'angle Θ entre l'axe du champ électrique et l'axe internucléaire. 2 états sont d'énergie $\pm \frac{3\sqrt{2}}{8} \frac{\mu_1\mu_2}{R^3} |1 + 3\cos 2\Theta|$ (avec $\mu_1 = \mu_{sp}$ et $\mu_2 = \mu_{s'p}$), qui n'est autre que l'énergie classique d'interaction dipôle-dipôle à un facteur près, 2 autres sont d'énergie $\pm \frac{\sqrt{2}}{8} \frac{\mu_1\mu_2}{R^3} |7 + 9\cos 2\Theta|$: il existe des angles pour lesquels l'interaction dipôle-dipôle est nulle. Pour les 4 autres états il n'existe pas de zéros d'interaction. A noter que l'état intermédiaire $\Psi_i \equiv \frac{1}{\sqrt{2}}(|7s np\rangle + |np 7s\rangle)$ est couplé à parts égales avec les 4 états sans zéros d'interaction et avec les 4 états avec zéros lors du processus d'excitation laser, et ceci quelque soit l'angle Θ . Dans cette approche le blocage dipolaire dû à la présence du dipôle permanent des états Stark $np_{3/2}(F)$ (blocage dipolaire en champ électrique) n'est pas pris en compte. Pour $n > 35$, le couplage $np - (n-1)d$ est relativement faible à résonance de Förster³⁵. Finalement,

³⁵L'interaction dipôle-dipôle due à ce couplage est cependant responsable de la chute observée à champs

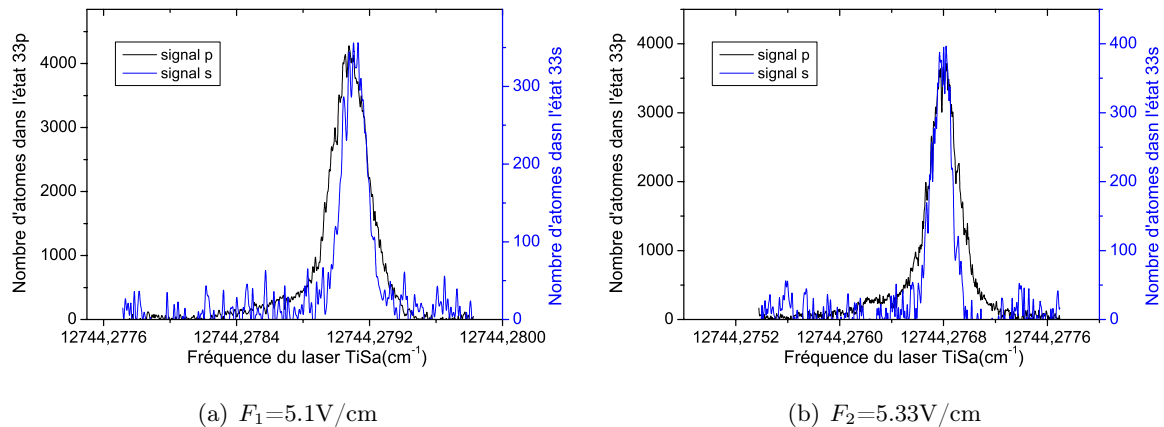


FIG. 4.29 – Spectres obtenus en excitation de l'état Stark $33p_{3/2}$ pour deux champs électriques F_1 et F_2 : Nous détectons simultanément le nombre d'atomes dans l'état $33p_{3/2}$ et le nombre d'atomes présents dans l'état $33s$ (les échelles sont différentes pour les signaux $33s$ et $33p_{3/2}$).

le déplacement en énergie de tous ces niveaux moléculaires par rapport aux niveaux non perturbés est assez élevé. Une moyenne effectuée dans l'annexe donne le déplacement moyen des niveaux d'énergie à résonance de Förster $W_m \approx \frac{1.5\mu_1\mu_2}{R^3}$. Le blocage de l'excitation pourrait même être plus élevé qu'en utilisant le simple couplage par champ électrique (pour un couplage moyen équivalent) car seulement la moitié des états présentent des zéros d'interaction. Nous verrons par la suite que la limitation de l'excitation à 30% est en fait principalement due à la saturation de l'excitation par puissance.

4.4.1.4 Résonances de Förster en champ électrique très faible

Les résonances de Förster des états $41p_{3/2}$, $40p_{3/2}$ ainsi que le comportement des états $42p_{3/2}$ et $43p_{3/2}$ sont étudiées dans ce paragraphe. Dans les mêmes conditions expérimentales que les données de la figure 4.25, il apparaît Fig. 4.32 un blocage important de l'excitation à résonance de Förster pour l'état $40p_{3/2}$, $\sim 30\%$, mais plus faible pour l'état $41p_{3/2}$, semblant limité à 15% (cf. Fig. 4.32). Pour l'état $42p_{3/2}$, une faible limitation de l'excitation d'environ 10% est observée alors qu'aucune limitation n'est observé pour l'état $43p_{3/2}$. Pour l'état $42p_{3/2}$, le décalage en énergie entre les états pp et ss' est de seulement -9.6 MHz et ceci peut expliquer le blocage de l'excitation observé. Ce décalage est -60.9 MHz pour l'état $43p_{3/2}$ et explique l'absence du blocage.

Les nombres d'ions sont également présents sur les tracés de la figure 4.32. Nous voyons qu'à droite des résonances de Förster $n = 41$ et $n = 40$, la résonance du signal d'ions est toujours présente. Une résonance dans le nombre d'ions est également observé pour l'état $42p_{3/2}$. L'interprétation en terme de collisions ionisantes est donnée dans la section 4.4.5.

Pour comprendre la moindre limitation de l'excitation par le blocage dipolaire pour l'état $41p_{3/2}$ et même pour l'état $42p_{3/2}$, il est nécessaire d'évaluer plus exactement les couplages dipôle-dipôle et de considérer tous les états moléculaires possibles. Nous n'avons pas en effet considéré au paragraphe 4.4.1.4 les niveaux magnétiques $m_j = 3/2$ et $m_j = -3/2$. Mais pour des champs relativement faibles, le décalage d'énergie δ_m entre les niveaux $|m_j| = 1/2$ et $|m_j| = 3/2$ est trop petit pour pouvoir négliger le couplage dipôle-dipôle avec les états

élevés pour l'état $38p_{3/2}$.

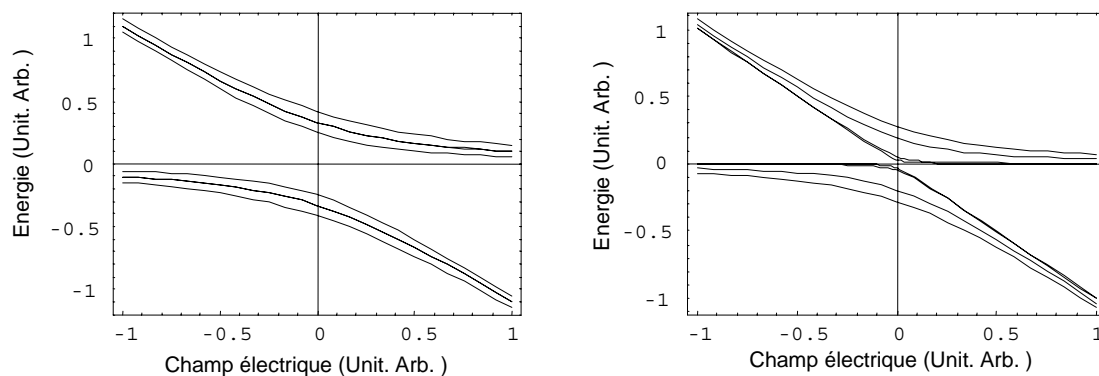


FIG. 4.30 – Position des 8 valeurs propres d'énergie en présence d'un couplage dipôle-dipôle à résonance de Förster, en fonction du champ électrique. On reconnaît un croisement évité classique pour un système à 2 niveaux. Le croisement est plus ou moins évité suivant les états et l'angle Θ entre l'axe internucléaire et l'axe du champ électrique. (gauche) $\Theta \approx 0$. (droite) $\Theta \approx 54^\circ$.

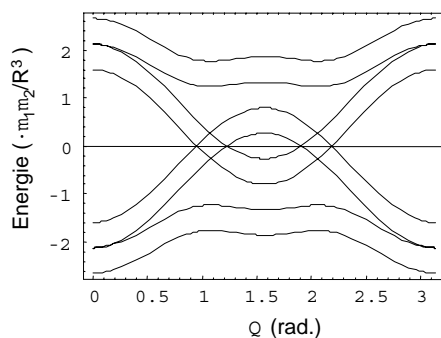


FIG. 4.31 – Position des 8 valeurs propres d'énergie en présence d'un couplage dipôle-dipôle à résonance de Förster, en fonction de Θ , l'angle entre l'axe du champ électrique et l'axe internucléaire. Les valeurs propres d'énergie sont 2 à 2 symétriques par rapport à l'axe d'énergie "nulle".

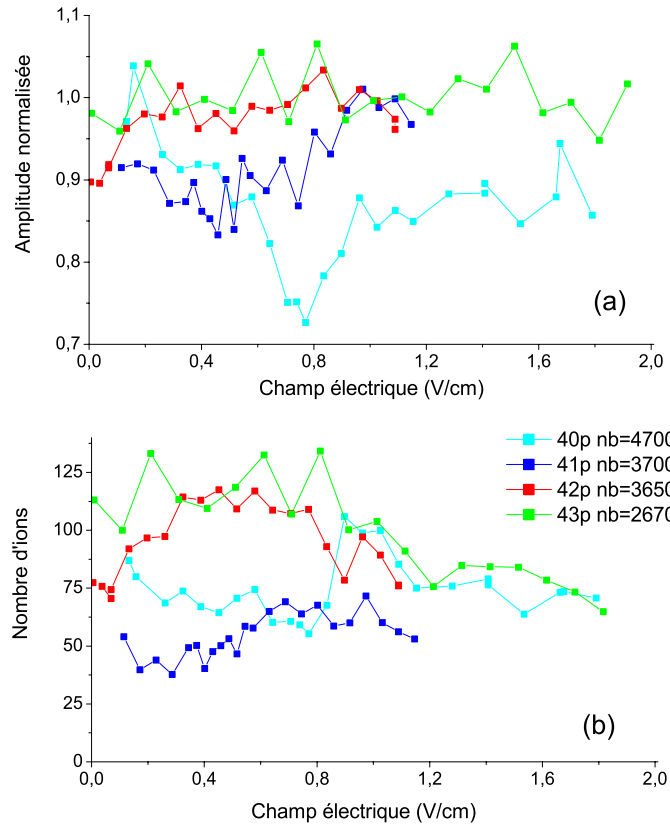


FIG. 4.32 – Avec les mêmes conditions expérimentales que celles décrites Fig. 4.25 : (a) Nombre d'atomes de Rydberg normalisé, en fonction du champ électrique, pour différents états $np_{3/2}$: $43p_{3/2}$, $42p_{3/2}$, $41p_{3/2}$ et $40p_{3/2}$. Le signal est normalisé à un lorsque le signal est approximativement maximum, en champ nul pour $n = 40$, à des champs plus élevés pour $n=41$, 42 et 43. Nous indiquons les nombres d'atomes de Rydberg correspondant dans la légende. Un blocage de l'excitation est présent pour les états $n=40$ et $n=41$ au niveau des résonances de Förster (les champs de résonances expérimentaux sont de 0.75 V/cm et 0.46 V/cm pour, respectivement, $n=40$ et 41). Un léger blocage est également présent pour l'état $n = 42$ en champ nul. (b) Pour chacun des états, les nombres d'ions sont relevés simultanément avec les nombres d'atomes de Rydberg. Des résonances attribuées aux forces dipolaires sont observées pour ces différents états (voir texte).

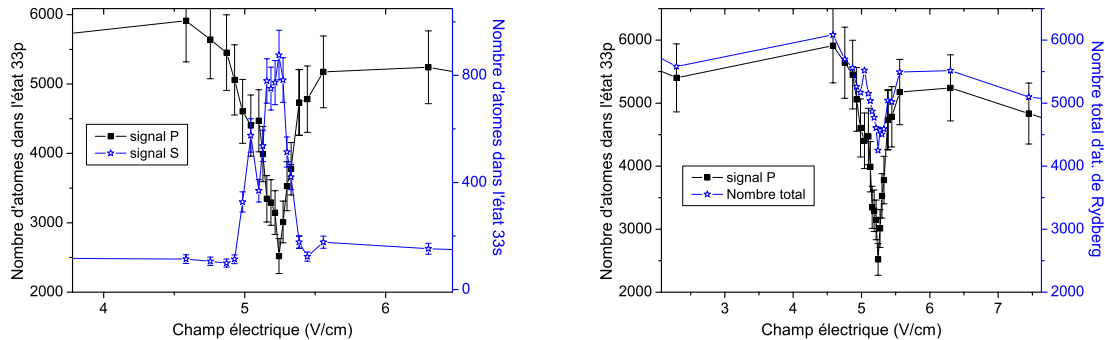
$|m_j| = 3/2$: le décalage δ_m doit être beaucoup plus grand que le couplage dipôle-dipôle pour qu'il soit possible de ne pas considérer les états $|m_j| = 3/2$, nous vérifions expérimentalement que ceci est valide pour $n < 39$. Pour $n=40, 41$ ou 42 , les états $|m_j| = 3/2$ et $|m_j| = 1/2$ sont quasi dégénérés, et l'influence des états $|m_j| = 3/2$ n'est pas du tout négligeable. Le calcul complet en présence du champ électrique n'a pas été effectué. Une étude en champ nul des différents niveaux moléculaires possibles donne probablement un bon résultat tant que les différents niveaux m_j sont dégénérés. Ce calcul a été effectué dans la note 29 page 181. De façon prévisible, les énergies et les états propres en champ nul ne dépendent pas de l'angle Θ (seul le couplage avec l'état intermédiaire Ψ_i dépend de cet angle). Les niveaux d'énergie de nombreux états sont tout simplement non décalés par interaction dipôle-dipôle : il existe des zéros d'interaction dipôle-dipôle quel que soit l'orientation de l'axe internucléaire. Les déplacements d'énergie des états dont l'énergie dépend de l'interaction dipôle-dipôle sont par contre très importants : entre $\sqrt{6}\frac{\mu_1\mu_2}{R^3}$ et $3\sqrt{2}\frac{\mu_1\mu_2}{R^3}$ dans le cas d'une interaction dipôle-dipôle résonante. Comme nous l'avons expliqué dans la note 29, l'état intermédiaire $\frac{|7s, np_{3/2}\rangle + |np_{3/2}, 7s\rangle}{\sqrt{2}}$ est couplé à hauteur de $\sim 25\%$ à ces états "bloquants". La limitation de l'excitation par blocage dipolaire est donc dans tous les cas limitée à 25% en champ électrique nul ou faible pour une paire d'atomes et ceci peut expliquer le moindre blocage observé pour la résonance de Förster de l'état $41p_{3/2}$ et dans une certaine mesure pour l'état $42p_{3/2}$ en champ électrique nul.

4.4.1.5 Formes de raie en champ électrique

Les courbes de diminution du nombre d'atomes total (raie de blocage) présentent une forme pointue très caractéristique. Nous allons voir que les raies de blocage sont aussi beaucoup plus larges en champ électrique que ce qu'il est possible d'attendre en considérant seulement deux atomes séparés par la distance internucléaire moyenne entre atomes excités dans l'état de Rydberg. La largeur en champ électrique des raies d'excitation s ou p correspond par ailleurs à la largeur en champ de la raie de suppression d'excitation (ou de blocage) de N_{tot} . Ceci est bien visible pour l'état $38p_{3/2}$ et encore plus sur la Fig. 4.33 pour l'état $33p_{3/2}$. Les courbes relatives aux états s sont également asymétriques du côté des champs faibles des résonances de Förster. Différentes explications sont discutées dans cette section pour expliquer de telles formes de raies. L'une des questions est de savoir s'il est possible de limiter l'interprétation des résultats à une vision à deux corps comme dans le paragraphe 4.4.1.2 ou s'il est nécessaire de prendre en compte des effets à N corps. Nous allons voir notamment que considérer la distribution du plus proche voisin atome déjà excité permet de lever en partie le paradoxe des élargissements en champ électrique.

Elargissements en champ électrique

Pour mieux quantifier la largeur en champ électrique, les courbes sont tracées en fonction du déplacement Stark du niveau p comme sur la figure 4.34 (b) avec l'état $36p_{3/2}$. Les largeurs en champ électrique sont ainsi converties en fréquences. Ceci donne comme largeurs $\Delta\nu = 50 \pm 10$ MHz pour l'ensemble des résonances de Förster, $n=33, 36, 38$ et 40 . Ces largeurs sont globalement plus grandes que celles qu'il serait possible d'attendre, notamment pour le signal s dans un système à deux niveaux tel que celui de la Fig. 4.26. En effet, supposons par exemple que pour l'état $38p_{3/2}$, la distance internucléaire entre 2 atomes soit donnée par l'espacement internucléaire moyen (correspondant à 4700 atomes en fin d'excitation), soit $4.3 \mu\text{m}$ (le blocage est supposé effectif pour une distance de $4.5 \mu\text{m}$). De ce fait, le couplage dipôle-dipôle $W \sim \frac{\sqrt{2}\mu_{sp} \mu_{s'p}}{R_d^3}$ est d'environ 6.4 MHz. Dans un simple modèle à 2 niveaux, la



(a) Nombre d'atomes dans l'état $33p_{3/2}$ (carrés) et nombre d'atomes dans l'état $33s$ (étoiles) (b) Nombre d'atomes dans l'état $33p_{3/2}$ (carrés) et nombre total d'atomes de Rydberg (étoiles)

FIG. 4.33 – Etat $33p_{3/2}$, données de la Fig. 4.25. Les largeurs en champ électrique des raies de suppression d'excitation (nombre total d'atomes) et de transfert d'excitation (signal s) sont proches.

largeur à mi-hauteur de la raie s en fonction du déplacement Stark devrait être $\frac{2}{\sqrt{3}} \frac{W}{\hbar} \sim 8.5$ MHz (nous utilisons simplement l'expression (1.78) pour les états $|+\rangle$ et $|-\rangle$, tout en supposant que l'effet Stark est au premier ordre linéaire au voisinage de la résonance de Förster). Cette largeur est évidemment très faible comparée aux valeurs données par l'expérience. Mais cette estimation est trop grossière. Premièrement, l'excitation au voisinage de la résonance de Förster d'une telle paire d'atomes est forcément légèrement bloquée, l'excitation s plus faible : un phénomène d'élargissement apparent a lieu, de même que ce qui est observé spectralement. Deuxièmement, nous ne prenons pas en compte la valeur de l'interaction exacte. La valeur moyenne, calculée sur tous les angles possibles et les 8 niveaux de la Fig. 1.12, est cependant $1.5 \times \frac{\mu_{sp} \mu_{s'p}}{R_d^3}$ donc proche de la valeur obtenue en ne considérant qu'un système à 2 niveaux. Troisièmement, il n'est pas tenu compte du fait que le blocage implique globalement les paires d'atomes proches. Pour ces paires d'atomes proches, le blocage complet de l'excitation d'un deuxième atome est encore effectif loin de la résonance de Förster, résultant en un élargissement de la raie de blocage. Le calcul exact de cet élargissement de blocage pour une paire d'atomes est donné dans le modèle de la section 4.4.4.1.

Pour évaluer l'importance de la répartition des atomes et donc des paires, nous raisonnons simplement de manière statistique. En l'absence d'interaction dipôle-dipôle et donc en l'absence de blocage dipolaire, l'état du système à la fin de l'excitation laser est une superposition d'états $\Psi^{(k)}(n)$ contenant n excitations Rydberg, en moyenne n_0 excitations. Statistiquement, ces excitations sont réparties spatialement de manière aléatoire. La distribution spatiale du plus proche voisin excité autour d'un atome excité est donc donnée par la distribution d'Erlang. En présence de blocage dipolaire, pour un état $\Psi^{(k)}(n_0)$ donné, certaines des paires proches d'atomes n'auront pas pu être excitées, seulement un des atomes de la paire pouvant être excité (nous supposons que la portée de l'interaction dipôle-dipôle n'est pas suffisante pour qu'un atome excité bloque l'excitation de deux autres atomes de cet état $\Psi^{(k)}(n_0)$). Statistiquement, la probabilité d'excitation des $\frac{n_0}{2}$ paires d'atomes plus proches voisins³⁶ que contient un état $\Psi^{(k)}(n_0)$ est la probabilité que les deux atomes de chaque paire soit séparés

³⁶Une question peut se poser du choix des paires d'atomes. En fait, pour un état donné $\Psi^{(k)}(n_0)$, les paires sont sélectionnées par ordre croissant d'espacements internucléaires, attendu qu'aucun autre atome ne peut être "apparié" aux paires d'atomes déjà sélectionnées : c'est l'hypothèse d'interaction à deux corps.

d'une distance supérieure à une distance minimale R_{min} donnée en première approximation par :

$$\frac{|\Delta|}{2} \left(\sqrt{1 + \frac{(1.5 \times \frac{\mu_{sp}\mu_{s'p}}{R_{min}^3})^2}{(\frac{\Delta}{2})^2}} - 1 \right) = \Delta\nu \quad (4.40)$$

où Δ est l'écart énergétique entre les états pp et ss' et $\Delta\nu$ est la résolution spectrale de l'excitation. Rappelons que cette équation exprime que le décalage du niveau d'énergie³⁷ $|+\rangle$ ou $|-\rangle$ (suivant le niveau excité sur l'aile des champs faibles ou l'aile des champs forts de la résonance de Förster) par rapport au niveau non perturbé $|pp\rangle$ est égal à la résolution de spectrale de l'excitation $\Delta\nu$. Le raisonnement est ici binaire, soit la distance séparant les deux atomes d'une paire proche est suffisante pour permettre l'excitation, soit elle ne l'est pas. Le "frontière" entre possibilité d'excitation ou non est en pratique moins marquée (cf. le modèle de la section 4.4.4.1).

La probabilité que deux plus proches voisins dans un état $\Psi^{(k)}(n_0)$ soient séparés d'une distance supérieure à R_{min} est donnée par la distribution d'Erlang :

$$P(R_{min}) = e^{-\left(\frac{R_{min}}{R_d}\right)^3} \quad (4.41)$$

où R_d est le rayon de Wigner-Seitz, calculé à partir de la densité d'atomes excités pour une excitation loin de la résonance de Förster.

Ainsi, le nombre d'atomes N_{tot} qu'il est possible d'exciter est tout simplement donné par :

$$N_{tot} \approx \frac{N_{tot0}}{2} \left(1 + e^{-\left(\frac{R_{min}}{R_d}\right)^3} \right) = \frac{N_{tot0}}{2} \left(1 + \exp \left(- \frac{\sqrt{\left(\frac{1.5\mu_{sp}\mu_{s'p}}{\Delta/2}\right)^2 \frac{1}{\left(1 + \frac{\Delta\nu}{|\Delta|/2}\right)^2 - 1}}}{R_d^3} \right) \right) \quad (4.42)$$

où $N_{tot0} \equiv n_0$ est le nombre d'atomes qu'il est possible d'exciter loin de la résonance de Förster.

Cette expression est valide uniquement pour un blocage de l'excitation inférieur à 50% mais comme on le voit sur le Fig. 4.34 (b) (les spectres correspondant sont donnés sur la Fig. 4.35), elle reproduit assez fidèlement l'allure générale de la raie de blocage à résonance de Förster pour l'état $n = 36$. Pour une meilleure précision, l'interaction dipôle-dipôle en champ électrique due au couplage Stark $p - d$ devrait être rajoutée, mais cela ne peut se faire directement sur la formule (4.42).

L'ajustement de la courbe expérimentale utilise quant à lui la formule empirique suivante :

$$g(\nu) = (1 - a\nu) \left(1 - \frac{A w}{(2(\sqrt{2} - 1)|\nu - \nu_c| + w)^2} \right) \quad (4.43)$$

où a , A , w and ν_c sont des paramètres ajustables. a décrit la diminution globale du signal en champ électrique, A , w et ν_c sont respectivement l'amplitude, la largeur et le centre de la raie de blocage.

Cette forme de raie très pointue est typique de l'interaction dipôle-dipôle en $1/R^3$ et reste un

³⁷Nous négligeons toujours la polarisabilité de l'état s.

sujet d'étude à l'heure actuelle³⁸.

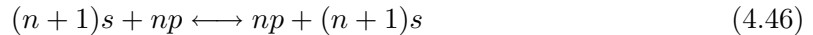
L'élargissement donné par la formule (4.42) semble encore un peu faible. Calculons simplement cet élargissement. Deux atomes ne peuvent pas être excités à une distance inférieure à R_{min1} donnée par $1.5 \frac{\mu_1 \mu_2}{R_{min1}^3} \sim \Delta\nu$ à résonance de Förster et $1 - e^{-\left(\frac{R_{min1}}{R_d}\right)^3} \sim \alpha$ est la probabilité de blocage de l'excitation d'une paire d'atomes. Cherchons alors le décalage énergétique $\Delta_{1/2}$ tel que le blocage ne soit plus que de moitié celui observé à résonance de Förster. Dans ce cas, la distance inférieure à laquelle l'excitation n'est pas possible est R_{min2} donnée par $1 - e^{-\left(\frac{R_{min2}}{R_d}\right)^3} = 0.5\alpha$. Cette distance vérifie par ailleurs la relation (4.40).

Soit finalement :

$$\frac{\Delta_{1/2}}{2} \left(\sqrt{1 + \left(\frac{\ln(1-\alpha)}{\ln(1-\alpha/2)} \right)^2} \times \left(\frac{\Delta\nu}{\Delta_{1/2}/2} \right)^2 - 1 \right) = \Delta\nu \quad (4.44)$$

A résonance de Förster, α vaut environ 0,6 pour un blocage de 30% des atomes. Pour $\Delta\nu = 6$ MHz, nous trouvons ainsi une largeur à mi-hauteur de la raie de blocage $\Delta_{1/2}=33$ MHz. Notons que cette largeur ne dépend de la densité que via le facteur α . La valeur trouvée est effectivement un peu faible par rapport aux données expérimentales. La raie de blocage pour l'état $36p_{3/2}$ est par ailleurs l'une des plus fines en champ électrique, les largeurs obtenues pour les autres résonances de Förster étant plutôt de l'ordre de 50 ± 10 MHz. La formule (4.44) surestime également la largeur que l'on peut attendre de ce modèle de paires d'atomes car expérimentalement, la référence du nombre d'atomes utilisé pour normaliser la courbe de la figure 4.34 est prise à ~ 1 V/cm, alors que d'après le modèle, il existe déjà un blocage de l'excitation pour un tel champ électrique.

Pour expliquer l'élargissement expérimental, il est probablement nécessaire de considérer des interactions à plusieurs corps. Il n'est en effet pas possible de réduire le système à une interaction avec le plus proche voisin. Notamment, nous avons vu dans la section 1.3.4 l'importance de la migration de l'excitation suivant les deux réactions :



Alors que l'interaction $pp \leftrightarrow ss'$ n'est résonante que pour un champ électrique donné (à résonance de Förster), les réactions (4.45) et (4.46) sont résonantes quelque soit le champ électrique (le couplage dipôle-dipôle $ps \leftrightarrow sp$ est aussi efficace que le couplage $pp \leftrightarrow ss'$ à résonance de Förster). Ainsi, la composante $|ss'\rangle$ de l'état de paire excité au départ, $|+\rangle$ ou $|-\rangle$ (cf l'expression (1.78)), aussi petite soit-elle sur les ailes de la résonance de Förster, se diffuse rapidement dans l'environnement via les réactions (4.45) et (4.46), et le système se retrouve dans l'état $|pp\rangle$, superposition des états $|+\rangle$ et $|-\rangle$. Le système réagit alors rapidement via la classique réaction, non résonante dans ce cas :



³⁸D'après un calcul de V. Akulin (Laboratoire Aimé Cotton), une transition microonde entre 2 niveaux Rydberg en présence d'interaction dipôle-dipôle dans un nuage d'atomes de Rydberg conduit à une forme de raie très similaire.

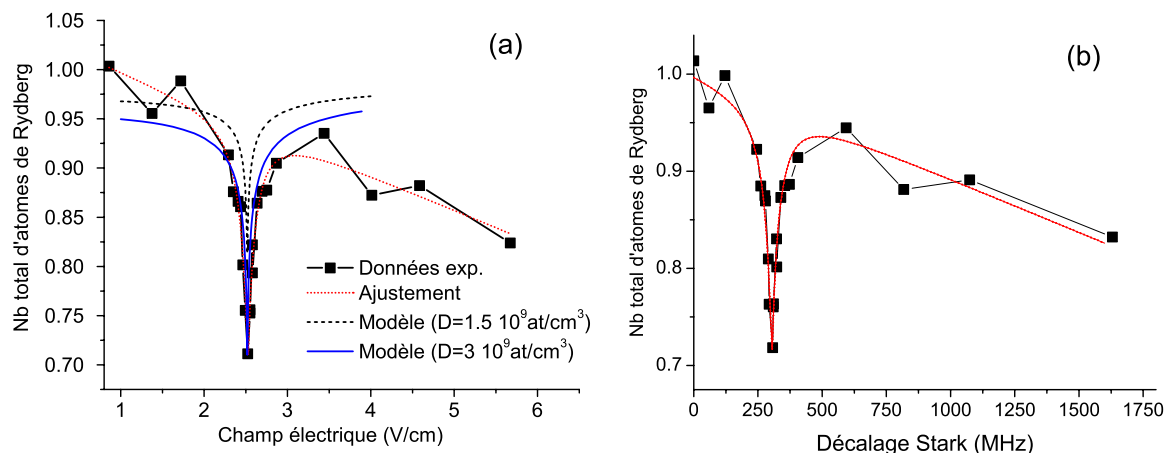


FIG. 4.34 – Nombre normalisé d’atomes excités en fonction du champ électrique (a) et du décalage Stark exprimé en MHz (b) autour de la résonance de Förster pour $n = 36$. Les ajustements utilisent une loi empirique explicitée dans le texte (formule (4.43)). La largeur de la résonance (FWMH) est 40 ± 5 MHz. Les modèles utilisent l’approximation du blocage par un seul plus proche voisin excité (formule (4.42)) avec deux densités différentes D au centre du nuage d’atomes.

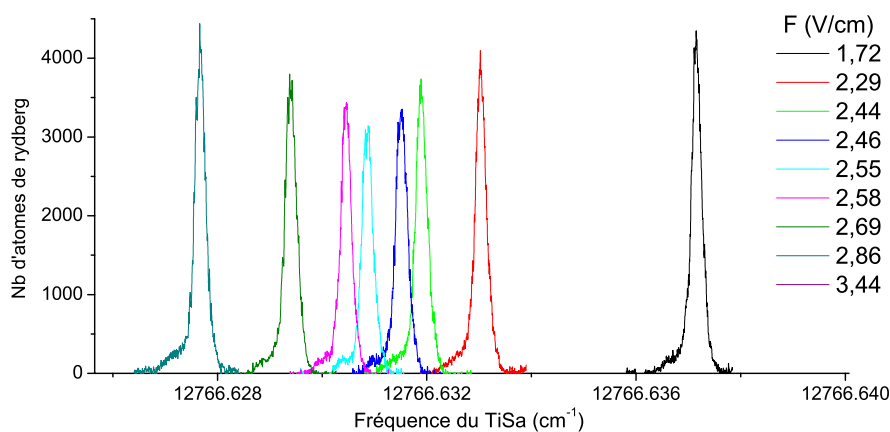


FIG. 4.35 – Spectres d’excitation de l’état Stark $36p_{3/2}$ pour différents champs électriques autour de la résonance de Förster, mettant en évidence la limitation de l’excitation par blocage dipolaire (maximum à 2.55 V/cm sur cette figure).

Cette dernière réaction (4.47) est très rapide hors résonance, le temps de transfert de l'excitation³⁹ vers ns et $(n+1)s$ est en effet $\approx 1/\Delta$ où Δ est l'écart d'énergie entre les niveaux pp et ss' . Le résultat de tels processus est de diffuser les excitations s et s' dans l'échantillon d'atomes de Rydberg pendant l'excitation laser, donc d'élargir les raies de transfert d'excitation obtenues, notamment vers les faibles champs, car les atomes dans l'état $|+\rangle$ sont plus à même d'interagir avec l'environnement en raison de la force dipolaire répulsive. Les processus de migration suivant les réactions (4.45) et (4.46) sont suffisamment rapides pour augmenter les excitations ns et $(n+1)s$ au cours de l'excitation laser et pour bloquer l'excitation d'autres atomes par interaction $ps \leftrightarrow sp$. Afin de préciser la possibilité d'un tel processus à N corps, une étude en densité de la forme de raie en champ électrique est proposée pour la résonance de Förster $n = 41$ au paragraphe 4.4.2.

Asymétrie des raies d'excitation en champ électrique

Les raies d'excitation s en champ électrique sont légèrement asymétriques (cf Fig. 4.33), elles tendent en effet à être élargies vers les champs faibles (ceci est observé également pour les états $36p_{3/2}$ et $41p_{3/2}$). N_{tot} présente également une légère asymétrie pour $n = 38$, (elle n'est cependant le fait que d'une seule donnée), mais pas pour $n = 33$ ni $n = 36$ (cf Fig. 4.34).

Une explication possible pour l'asymétrie pourrait être le chemin d'ionisation suivi par les dimères pendant la détection : en effet, comme nous le verrons au chapitre 5 (plus particulièrement dans la section 5.3.3), pour une excitation à gauche de la résonance de Förster dans l'état de paire $|+\rangle$, les signaux s et s' proviennent adiabatiquement de l'état $|+\rangle$. Pour une excitation à droite de résonance, le chemin suivi doit être diabatique depuis l'état $|-\rangle$ pour observer les signaux s et s' . Pour l'état $38p_{3/2}$, la frontière entre transfert diabatique et adiabatique⁴⁰ se situerait pour un couplage dipôle-dipôle $\frac{\sqrt{2}\mu_1\mu_2}{R^3}$ de l'ordre de 15-20 MHz pour une excitation à gauche de la résonance de Förster, ce qui n'est pas impossible (sur l'aile de la résonance de Förster, les paires d'atomes contribuant aux signaux s et s' sont d'abord les paires d'atomes proches) mais reste cependant limité compte-tenu de la présence du blocage dipolaire de l'excitation (lui-même plus ou moins effectif suivant la position par rapport à la résonance de Förster). Pour une excitation sur l'aile droite de la résonance, il est compréhensible qu'il soit plus difficile d'observer le signal s provenant de l'état $|-\rangle$. Les ordres de grandeur seront discutés dans la section 5.3.3, mais il est probable que la détection joue un rôle dans l'asymétrie observée. Il est possible que la dynamique des forces dipolaires joue aussi un rôle dans ce système : alors que sur l'état $|-\rangle$ la force dipolaire entre les deux atomes du dimère est attractive et augmente le couplage en rapprochant les atomes, cette force est répulsive sur l'état $|+\rangle$, ce qui conduit les deux atomes à interagir fortement avec l'environnement via les réactions de migration (4.45) et (4.46).

Conclusion Nous avons étudié en détail de nombreuses résonances et mis en évidence qu'un grand nombre des résultats se comprend dans la vision très simplifiée d'un blocage entre deux atomes. Notamment, les densités obtenues sont compatibles dans ce simple modèle avec un blocage de l'ordre de 30%. Certains effets, tel qu'un fort élargissement en champ électrique ou l'asymétrie des raies de transfert vers les états s et s' nécessitent probablement de considérer

³⁹La réaction (4.47) produit des oscillations de Rabi entre les état pp et ss' . Après un temps t , la population dans l'état ss' est $\frac{4(W/\Delta)^2}{1+4(W/\Delta)^2} \times \sin^2(\frac{\Delta t}{2})$

⁴⁰Cette frontière sera évaluée au chapitre 5 et dépend beaucoup de la forme de l'impulsion du champ d'ionisation.

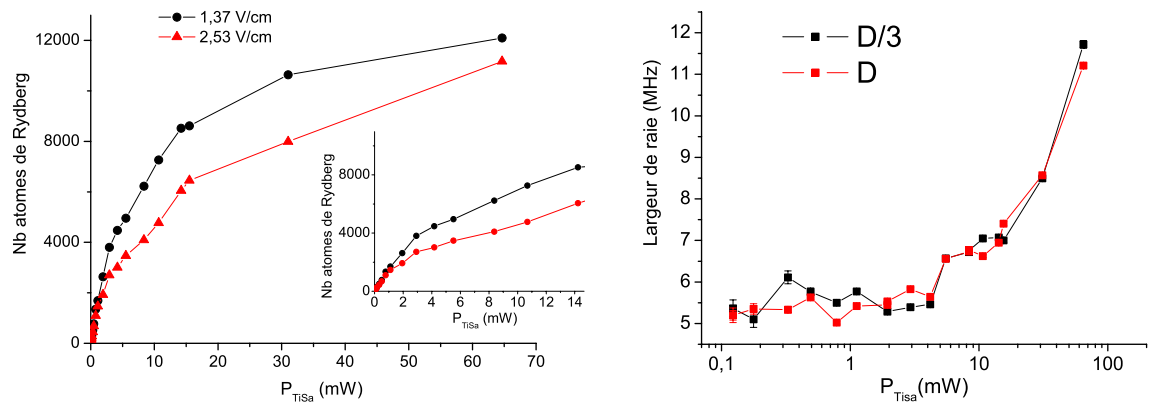
des effets à plusieurs corps, et notamment les réactions de migration $ps \rightarrow sp$ et $ps' \rightarrow s'p$. Une étude numérique portant sur l'étude d'un petit nombre d'atomes permettra sans doute de conclure. Des études complémentaires en densité sont fournies dans les paragraphes suivants afin de donner un meilleur diagnostic expérimental du blocage dipolaire.

4.4.2 Etudes en densité

Comme pour le blocage dipolaire en champ électrique, nous effectuons des études en faisant varier la densité atomique initiale (avant excitation, en utilisant toujours la coupure du laser repompeur) ou l'intensité laser d'excitation (laser Ti:Sa), pour vérifier la dépendance de l'efficacité du blocage dipolaire avec la distance interatomique moyenne. Comme nous allons le voir, la saturation par puissance laser rend cette étude délicate et nécessite de travailler avec de très faibles puissances d'excitation. Elle est en effet responsable d'un élargissement des raies et donc d'une baisse de la résolution spectrale de l'excitation qui limite l'effet du blocage dipolaire.

Problématique de la saturation par puissance

Avec nos conditions expérimentales, la puissance de saturation est de seulement 8 mW pour $n = 36$ (intensité de saturation $I_{sat} \sim 45 \text{ W/cm}^2$), comme le montre la Fig. 4.36.



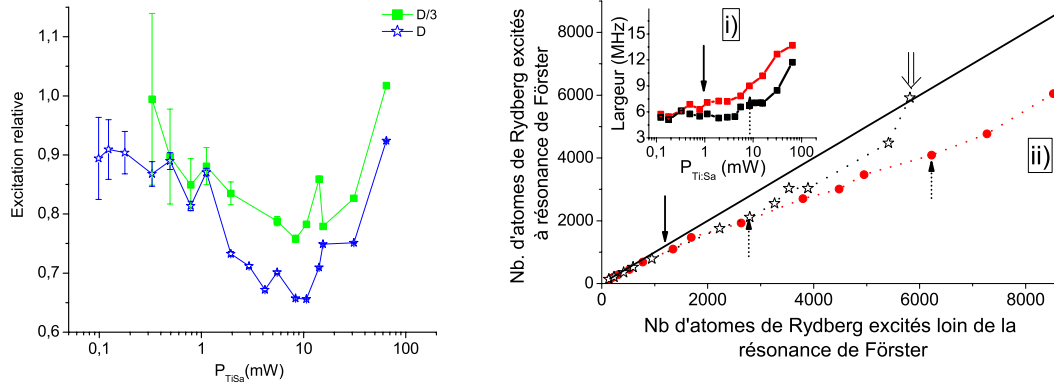
(a) Nombre d'atomes de Rydberg excités à résonance de Förster (champ électrique $F=2.53 \text{ V/cm}$) et loin de la résonance de Förster (champ électrique $F'=1.37 \text{ V/cm}$) pour une densité initiale d'atomes $D \sim 8 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$.

(b) Largeurs de raie pour deux densités initiales d'atomes D et D/3, avec un champ électrique $F'=1.37 \text{ V/cm}$ éloigné de la résonance de Förster.

FIG. 4.36 – Comportement de l'excitation de l'état $36p_{3/2}$ en fonction de la puissance du laser Ti:Sa. La saturation de l'excitation par puissance (caractérisée par un élargissement des raies dépendant uniquement de la puissance laser) vient compliquer la suppression de l'excitation due au blocage dipolaire.

Le nombre d'atomes excités dans l'état $36p_{3/2}$ en fonction de la puissance du laser Ti:Sa sature très rapidement (cf Fig. 4.36 (a)), et ce même pour une excitation pour un champ électrique $F'=1.37 \text{ V/cm}$ éloigné de la résonance de Förster ($F=2.52 \text{ V/cm}$). L'élargissement des raies d'excitation en fonction de la puissance du laser Ti:Sa est donné Fig. 4.36 (b) pour le champ F' et pour deux densités initiales d'atomes dans l'état $7s$, D et D/3 ($D \sim 8 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$) : il est indépendant de la densité initiale hors de la résonance de Förster et justifie que la saturation est uniquement due à la puissance laser d'excitation (nous avons vu que la présence d'interactions

conduit aussi à un élargissement apparent des raies. Elles auraient pu être dans notre étude de type Van der Waals ou de type dipôle-dipôle en champ électrique). La courbe de saturation de l'excitation à résonance de Förster est quant à elle plus prononcée (cf Fig. 4.36 (a)).



(a) Rapports des amplitudes d'excitation Rydberg obtenues à résonance de Förster (Champ $F=2.53$ V/cm) et loin de résonance (Champ $F'=1.37$ V/cm) pour les deux densités $D \sim 8 \times 10^9$ at/cm⁻³ (étoiles) et D/3 (carrés), en fonction de la puissance du laser Ti:Sa.

(b) (ii) Nombre d'atomes excités à résonance de Förster en fonction du nombre d'atomes excités loin de résonance (Champ F') pour une même puissance laser et une même densité initiale d'atome D (ronds pleins) ou D/3 (étoiles vides). (i) Elargissements des raies d'excitation pour les champs F et F' (courbes du haut et du bas respectivement) en fonction de la puissance du laser Ti:Sa.

FIG. 4.37 – Comportement de l'excitation de l'état $36p_{3/2}$. L'absence de blocage serait caractérisée Fig. (a) par une ligne horizontale $y=1$ et Fig. (b)(ii) par une droite de pente égale à 1. Le début de la saturation de l'excitation par le blocage dipolaire est caractérisée par les flèches continues alors que le début de la limitation du blocage par la saturation en puissance est indiqué par les flèches brisées. La double flèche indique la limitation quasi complète de l'excitation dans le cas de la densité D/3 (cf Fig. 4.36).

Pour donner une image plus nette de cette limitation de l'excitation, les rapports R entre les nombres d'atomes excités loin de la résonance de Förster (champ F') et à résonance (champ F) sont tracés en fonction de la puissance laser Fig. 4.37(a). Cette étude est réalisée pour les deux densités initiales d'atomes dans l'état $7s$, D et $D/3$. Dans le cas de la densité initiale D , ce rapport part de 0.90 ± 0.5 à faibles puissances, décroît pour une puissance d'excitation d'environ 1 mW, avant d'atteindre une valeur minimale de 0.65 pour une puissance de 10 mW. Ce rapport caractérise directement le blocage qu'il est possible d'atteindre, soit au maximum environ 35%. Un comportement assez similaire est observé lorsque la densité d'atomes initialement dans l'état $7s$ est $D/3$, l'efficacité maximale du blocage qu'il est possible d'obtenir est cependant plus faible, $\sim 25\%$. Pour une puissance du laser Ti:Sa supérieure, l'efficacité du blocage diminue. La raison d'un tel effet est la saturation par puissance de l'excitation. En effet, on voit sur la Fig. 4.36 (b) que la résolution de l'excitation partant de 5.5 ± 0.5 MHz commence à augmenter à partir d'une puissance de 5 mW (alors que le ratio R atteint un palier) puis croît plus fortement à partir de 11 mW. Ainsi, la largeur spectrale de l'excitation augmente, des paires beaucoup plus proches peuvent être excités et l'efficacité du blocage dipolaire diminue. Sur la figure 4.37 (b)-(ii), nous traçons le nombre d'atomes excités (N_{tot}) à résonance de Förster en fonction du nombre d'atomes excités loin de la résonance (N_{tot}) pour les deux densités D et $D/3$ (ce sont les mêmes données qu'en 4.37 (a)). L'efficacité du blocage se caractérise par l'éloignement par rapport à la courbe de pente 1 (en traits noir). Les deux courbes correspondant aux

deux densités (étoiles pour la densité $D/3$ et ronds pleins pour la densité D) sont superposées jusqu'à ce que ce que N_{tot} atteigne 2800 atomes (flèche en pointillé sur la figure 4.37), soit une puissance d'excitation de 10 mW pour la densité $D/3$ et tout au plus 2 mW pour la densité D . Pour des valeurs de N_{tot} supérieures (donc des puissances d'excitation supérieures), l'efficacité du blocage diminue pour la densité $D/3$, il continue d'augmenter dans le cas de la densité D jusqu'à ce que N_{tot} atteigne 6000-7000 (soit une puissance de 10 mW pour le laser Ti:Sa).

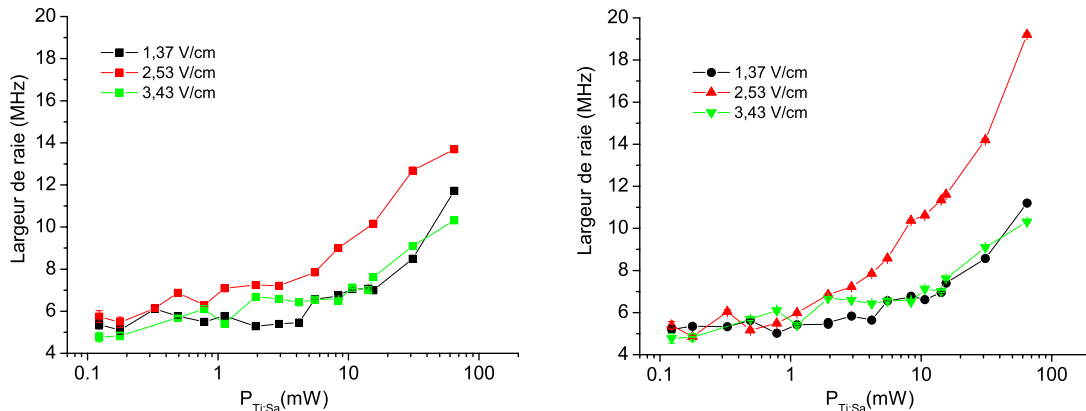


FIG. 4.38 – Largeurs des raies d'excitation de l'état $36p_{3/2}$ en fonction de la puissance du laser Ti:Sa, correspondant aux données des Fig. 4.36. (a) Densité initiale d'atomes $D/3$, champs électriques $F'=1.37$ V/cm (gauche de la résonance de Förster), $F=2.53$ V/cm (résonance de Förster) et $F''=3.43$ V/cm (droite de la résonance de Förster). (b) Densité initiale d'atomes D , même champs électriques qu'en (a).

Il est donc mis en évidence que le comportement du blocage dipolaire de l'excitation dépend essentiellement de la densité d'atomes excités dans l'état Rydberg pour une même résolution spectrale d'excitation mais un comportement différent est obtenu en fonction de la densité initiale figure 4.37(a) si l'excitation est saturée. Egalement, les élargissements apparents des raies à résonance de Förster sont plus grands pour la densité D (cf Fig. 4.38) car le blocage est plus efficace. La différence d'élargissement (mesuré à résonance de Förster et hors résonance) décroît à fortes excitations pour la densité $D/3$ (disparition du blocage) mais pas pour la densité D . Essentiellement, il est observé un élargissement vers le bleu des raies d'excitation (cf Fig. 4.39) qu'il est assez difficile d'interpréter, sinon comme un effet multiphotonique : l'excitation directe à deux photons depuis l'état $6p$ est efficace pour l'excitation d'un seul atome (voir Fig. 2.23), elle l'est d'autant plus si le niveau est décalé vers le bleu de la transition.

Le comportement du blocage dipolaire en fonction de la densité obtenu à résonance de Förster pour l'état $36p_{3/2}$, est confirmé par les résultats obtenus pour l'état $41p_{3/2}$ (cf Fig. 4.40 et 4.41). Le nombre d'atomes excités est étudié en fonction de la puissance du laser Ti:Sa pour trois champs différents, à gauche de la résonance de Förster ($F'=0.11$ V/cm), à résonance de Förster ($F=0.46$ V/cm) et à droite de la résonance ($F''=1.15$ V/cm).

Cette étude montre une limitation de l'excitation plus importante à résonance de Förster en raison du blocage dipolaire. De même, la saturation par puissance implique une limitation du blocage, pour l'état $41p_{3/2}$ à environ 22% du nombre total d'atomes excités hors résonance. Les ratios entre les nombres d'atomes excités pour les champs F et F'' par rapport au nombre d'atomes excités pour un champ F' sont donnés sur la figure 4.40 (b). Un léger blocage est présent pour le champ F' (proche de la résonance) et ce choix de référence n'est pas forcément le plus judicieux. A fortes puissances, le signal semble diminuer rapidement pour le champ

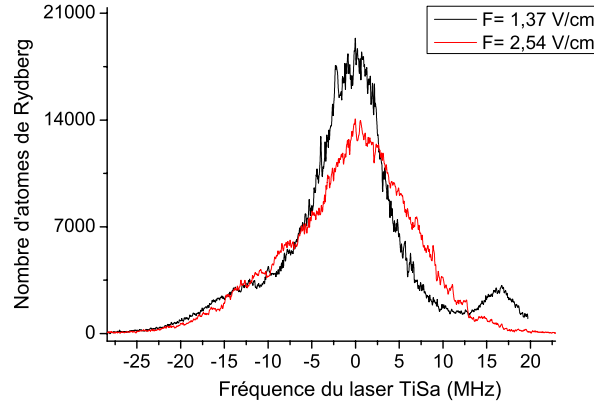


FIG. 4.39 – Spectres de l'état $36p_{3/2}$ pour deux champs électriques, à résonance de Förster ($F=1.37$ V/cm) et hors résonance ($F'=2.53$ V/cm). La fréquence du laser Ti:Sa est rapportée à 0 au centre des raies. La puissance du laser est 31 mW.

électrique F'' . Deux explications sont possibles, la présence d'ions sur l'aile droite de la résonance ou l'interaction dipôle-dipôle en champ électrique (la deuxième semble plus probable). La valeur limitée du blocage pour l'état $41p_{3/2}$ a été interprétée comme étant liée aux propriétés des différents potentiels moléculaires au paragraphe 4.4.1.3. Nous voyons ainsi qu'il est difficile de quantifier l'effet du blocage pour la résonance de Förster de l'état $41p_{3/2}$, même si a priori elle confirme les résultats obtenus pour l'état $36p_{3/2}$.

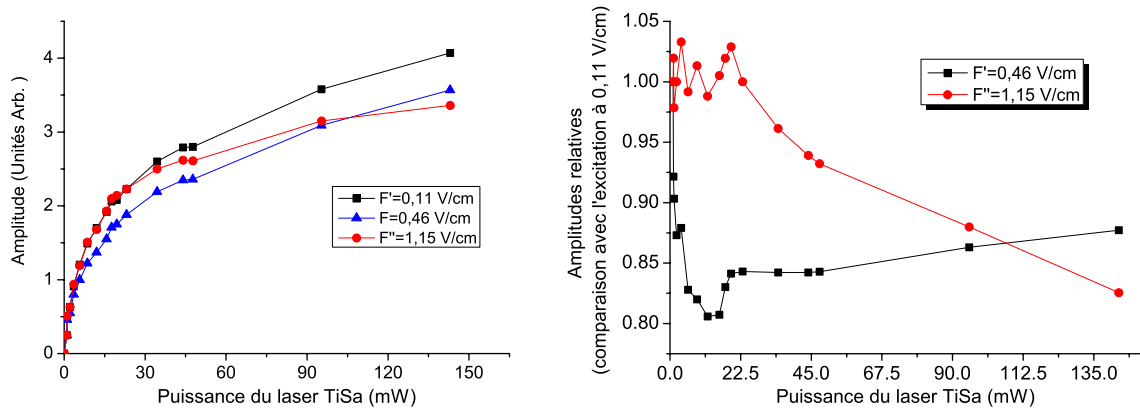


FIG. 4.40 – Etude en fonction de l'intensité du laser Ti:Sa sur l'état $41p_{3/2}$, pour trois champs électriques, $F=0.46$ V/cm (résonance de Förster), $F'=0.11$ V/cm et $F''=1.15$ V/cm. (a) Amplitude d'excitation pour les 3 champs différents. Pour les deux champs hors résonance, l'excitation est saturée principalement par puissance. A résonance de Förster se rajoute le blocage dipolaire. (b) Rapports entre les amplitudes d'excitation Rydberg obtenues pour les champs F et F'' et l'amplitude obtenue en champ faible (Champ $F'=0.46$ V/cm). Un rapport égal à 1 signifierait l'absence de blocage dipolaire.

Etude en densité des élargissements de raie en champ électrique Enfin, nous étudions le comportement en densité de la raie de blocage en champ électrique pour l'état $41p_{3/2}$. Pour deux puissances d'excitation différentes (8 et 20 mW) la résonance de Förster de l'état

$41p_{3/2}$ est étudiée en fonction du champ électrique sur la figure 4.41. Le champ électrique est converti en fréquences via le déplacement Stark de l'état $41p_{3/2}$. Il apparaît un fort élargissement en champ de cette raie de blocage, passant de 20 ± 5 MHz à 90 ± 30 MHz alors que la puissance d'excitation est seulement multipliée par un facteur 2.5 et que le nombre d'atomes excités à résonance de Förster passe de 3000 à 5000. La raie de blocage présente également une asymétrie prononcée vers les fréquences élevées. Cette asymétrie est probablement due au blocage en champ électrique. Dans cette étude, une puissance d'excitation de 20 mW est supérieure à la puissance de saturation (~ 10 mW). En utilisant les formules (4.44) et (4.42) dans un simple modèle de paires d'atomes, on trouverait des largeurs de raie en champ de ~ 20 MHz et ~ 35 MHz pour les deux puissances utilisées, 8 et 20 mW respectivement (la résolution de l'excitation est supposée être de 6 et 8 MHz respectivement). Le nombre d'atomes qu'il serait possible d'exciter hors résonance est difficile à déterminer en raison du blocage en champ électrique mais il n'est clairement pas possible d'expliquer simplement l'élargissement observé. L'explication d'un tel élargissement requiert probablement de considérer les processus à n corps de diffusion via les réactions (4.45) et (4.46). Une excitation légèrement saturée par puissance pourrait permettre l'excitation de paires proches dont le rôle est probablement important sur les ailes de la résonance dans le mécanisme de migration et de diffusion de l'excitation (cf paragraphe 4.4.1.5).

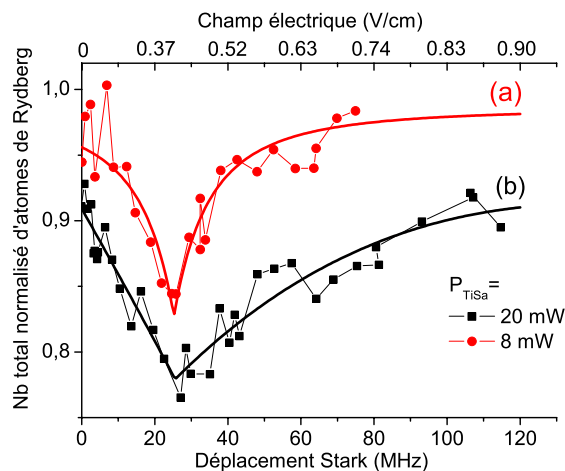


FIG. 4.41 – Nombre normalisé d'atomes excités en fonction du décalage Stark (V/cm et MHz) de l'état $41p_{3/2}$, autour de la résonance de Förster pour $n = 41$. Le champ électrique est converti en fréquence en utilisant le déplacement Stark expérimental. Les deux courbes correspondent à deux nombres différents d'atomes excités à résonance de Förster, 3000 (a) et 5000 (b), obtenus pour deux puissances laser différentes, 8 et 20 mW respectivement. Le facteur de normalisation est pris comme étant le nombre d'atomes excités pour un décalage Stark plus élevé (200 MHz). Les ajustements utilisent la loi empirique (4.43). Les largeurs (FWHM) des deux résonances de blocage sont 20 ± 5 MHz et 90 ± 30 MHz.

4.4.3 Conclusion

En conclusion, nous avons démontré l'efficacité du blocage dipolaire limitée à résonance de Förster, cependant limitée à 30% dans nos expériences. Cette mise en évidence a nécessité de surmonter plusieurs difficultés qui tendent à masquer ou à supprimer l'effet du blocage dipolaire. Nous avons tout particulièrement noté l'effet de la saturation par puissance dont

les conséquences sur le blocage dipolaire ont été bien caractérisées. Ainsi, le blocage dipolaire dépend de la densité initiale d'atomes, ici dans l'état $7s$, et du taux d'excitation vers l'état Rydberg. Lorsque l'intensité de saturation du laser exciteur est atteinte, l'élargissement par puissance permet l'excitation de paires proches et va supprimer l'effet de blocage dipolaire. Ce point est assez délicat et doit être bien contrôlé si on veut comprendre les données.

Nous ne revenons pas ici sur le rôle des ions qui a pu être limité pour ne pas compromettre la démonstration de l'effet de blocage dipolaire. L'interprétation de nos données pose un certain nombre de problèmes mais il apparaît que l'essentiel de nos résultats est compris en considérant l'interaction avec le plus proche voisin. Il reste que des effets liés à la migration de l'excitation s , à la dynamique et à la dégénérescence des niveaux d'énergie doivent être inclus pour expliquer complètement les résultats expérimentaux.

Pour atteindre un meilleur blocage, il serait possible d'augmenter de façon importante la densité d'atomes dans l'état $7s$ en évitant l'effet Autler-Townes sur l'état $6p_{3/2}$, ou mieux encore d'utiliser une excitation multiphotonique directement depuis l'état $6s$. Afin de justifier les différents raisonnements intuitifs ou statistiques développés jusqu'à présent, le paragraphe suivant est dédié à une description plus rigoureuse de l'excitation laser à résonance de Förster.

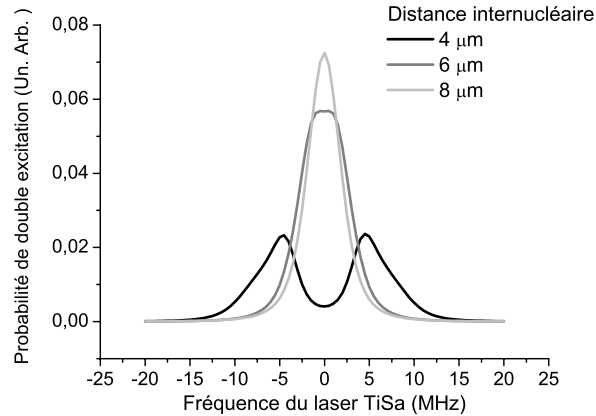
4.4.4 Modélisation du blocage dipolaire à résonance de Förster

Comme pour la modélisation du blocage dipolaire en champ électrique, un premier modèle est dévolu à expliciter de manière exacte la probabilité d'excitation dans un état Rydberg de deux atomes interagissant via l'interaction dipôle-dipôle à résonance de Förster. Un deuxième modèle consacré à une description plus générale de l'excitation d'un système de N atomes interagissant via l'interaction dipôle-dipôle à résonance de Förster est en cours d'étude et n'est pas exposé dans ce manuscrit. Des difficultés supplémentaires rencontrées par rapport à l'analyse effectuée pour le blocage dipolaire en champ électrique sont qu'il faut tenir compte des états ns et $(n+1)s$ en plus de l'état np pour chacun des atomes et que l'interaction dipôle-dipôle n'est pas diagonale dans la base non perturbée ss' et pp .

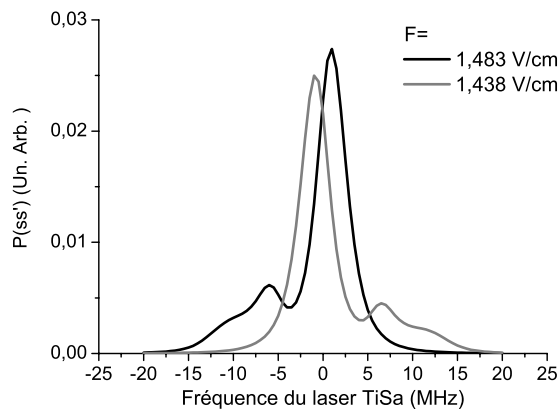
4.4.4.1 Blocage dipolaire pour l'excitation de deux atomes

Nous considérons un système de deux atomes à 2 niveaux, interagissant au voisinage d'une résonance de Förster. Les 4 états significatifs sont les états $|7s\rangle|7s\rangle$, $\frac{|7s\rangle|np_{3/2}\rangle + |7s\rangle|np_{3/2}\rangle}{\sqrt{2}}$ et les états $|+\rangle$ et $|-\rangle$ (voir Fig. 4.26). Les états $|+\rangle$ et $|-\rangle$ sont les états moléculaires Rydberg (1.78) définis au chap. 1.3.4.2. En principe, 8 états propres sont possibles mais le système moléculaire global est proche d'un système à deux niveaux couplés par une interaction moyenne $W_m \approx 1.5 \frac{\mu_{sp}^2}{R^3}$ (cf Fig. 4.30), le facteur 1.5 provenant du fait que l'état $|pp\rangle$ n'est couplé qu'à l'état symétrique $\frac{|ss'\rangle + |s's\rangle}{\sqrt{2}}$. La diminution des forces d'oscillateur et le blocage dipolaire en champ électrique sont supposés négligeables par rapport au blocage de l'excitation obtenu par l'interaction dipôle-dipôle à résonance de Förster (il est montré dans l'annexe A que l'interaction dipôle-dipôle en champ est au moins 3 fois plus faible au niveau des résonances de Förster si $n > 30$). Comme dans la section 4.3.3.1, le calcul est effectué dans l'approximation dipolaire (et du champ tournant) en négligeant l'émission spontanée des états de Rydberg.

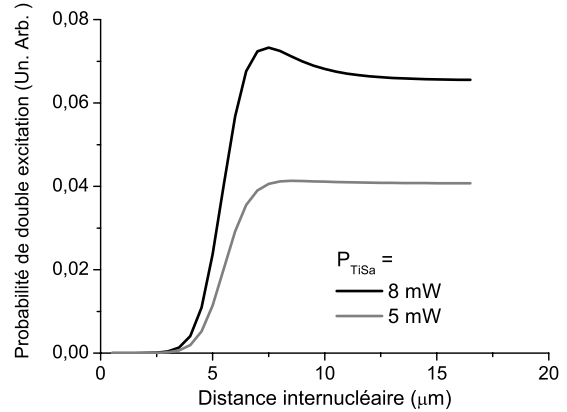
Les courbes sont données pour l'état $38p_{3/2}$ sur la figure 4.42, dans des conditions d'excitation proches de l'expérience décrite p. 189 (laser Ti:Sa de puissance 8 mW focalisé sur $75 \mu\text{m}$). Les spectres de double excitation dans l'état Rydberg (probabilité que la paire d'atomes soit détectée dans les états $|pp\rangle$ ou $|ss'\rangle$) à résonance de Förster pour trois distances internucléaires R différentes (Fig. 4.42(a)) montrent que l'excitation chute très rapidement au centre



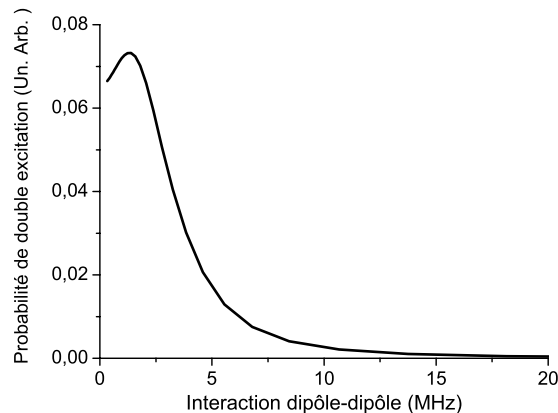
(a) Spectre théorique de double excitation dans l'état Rydberg pour deux atomes distants de 4, 6 et $8\mu\text{m}$.



(b) Spectre d'excitation de l'état $|38s39s\rangle$ (ss') pour deux champs électriques de part et d'autre du champ à résonance de Förster. La distance internucléaire est $R=5\mu\text{m}$. La fréquence du laser Ti:Sa est rapportée à 0 lorsque le décalage spectral par rapport à la transition $7s \rightarrow 38p_{3/2}$ est nul.



(c) Probabilité de double excitation en fonction de la distance internucléaire R , pour deux puissances d'excitation du laser Ti:Sa, 5 et 8 mW. L'interaction dipôle-dipôle prise en compte est $W = 1.5 \times \frac{\mu_{ps}^2}{R^3}$.



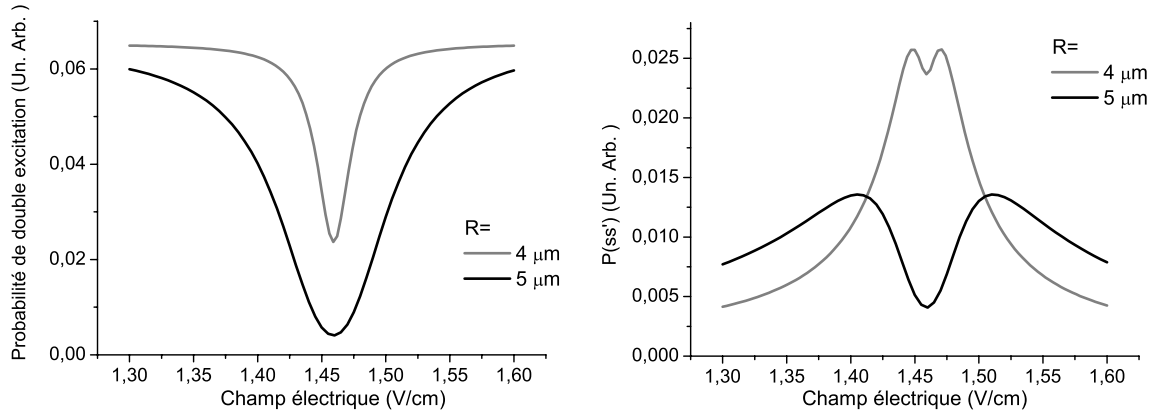
(d) Probabilité de double excitation en fonction du couplage dipôle-dipôle entre les deux atomes.

FIG. 4.42 – Probabilités d'excitation en fonction de la distance internucléaire R et de la fréquence du laser Ti:Sa. Sauf spécification, le laser Ti:Sa est de puissance 8 mW et focalisé sur $75\mu\text{m}$.

de la raie lorsque R diminue. L'excitation hors résonance est permise par des excitations à un mais aussi deux photons. Dans l'expérience, la probabilité que des paires d'atomes très proches soient excités est faible même en l'absence d'interaction dipôle-dipôle (les densités d'atomes dans l'état $7s$ sont peu élevées). L'élargissement par la présence de transitions à 2 photons n'est pas observé dans ce cas. Les spectres expérimentaux sont une moyenne sur la distribution spatiale gaussienne des atomes, sur tous les angles et états possibles. Pour reproduire les spectres expérimentaux, il faudrait moyenner, comme pour le modèle en champ (cf l'expression (4.21)).

La probabilité de double excitation au centre de la raie en fonction de R est détaillée Fig. 4.42(c). Entre 5 et 7 μm , la probabilité d'excitation passe de 0 à 100% lorsque la puissance d'excitation est de 5 mW. Pour une puissance de 8 mW, un maximum d'excitation est présent pour la distance $R=7 \mu\text{m}$. Il provient directement de la cohérence de l'excitation (il disparaît à temps d'excitation plus longs). Parallèlement, la distance à partir de laquelle l'excitation est bloquée diminue légèrement quand la puissance augmente (la distance R pour laquelle 50% de la double excitation est bloquée passe de 6 à 5 μm quand la puissance passe de 5 à 30 mW). Le blocage dipolaire est donc limité aux fortes puissances, conformément à l'observation expérimentale. En fonction du couplage dipôle-dipôle W_m entre les deux atomes (Fig. 4.19(d)), 50% de l'excitation est bloquée lorsque le couplage est d'environ 3,5 MHz et $\sim 85\%$ est bloquée lorsque le couplage atteint 6 MHz.

Les spectres d'excitation s (probabilité d'excitation dans l'état $|38s39s\rangle$) de la Fig. 4.42(b) pour deux champs électriques de part et d'autre de la résonance de Förster font apparaître un léger décalage spectral du maximum d'excitation s par rapport à la position du niveau non perturbé $|38p_{3/2}38p_{3/2}\rangle$. Ce décalage observé expérimentalement (cf Fig. 4.28) était attendu. Ces spectres comportent 3 pics, le pic principal pour le niveau moléculaire $|\pm\rangle$ le plus proche du niveau $|38p_{3/2}38p_{3/2}\rangle$, le plus faible pour l'autre niveau $|\mp\rangle$ et enfin le pic d'excitation à 2 photons.



(a) Probabilité de double excitation dans les états $|+\rangle$ et $|-\rangle$ en fonction du champ électrique. L'élargissement en champ électrique commence lorsque le blocage devient quasiment total au centre de la raie de blocage.

(b) Probabilité d'excitation de l'état $|38s39s\rangle$ en fonction du champ électrique pour deux distances internucléaires $R=4 \mu\text{m}$ et $R=5 \mu\text{m}$.

FIG. 4.43 – Probabilités de doubles excitations en fonction du champ autour de la résonance de Förster de l'état $38p_{3/2}$. Le laser Ti:Sa est de puissance 8 mW et focalisé sur 75 μm . Le décalage de la fréquence du laser Ti:Sa par rapport à la transition $7s \rightarrow 38p_{3/2}$ est choisi nul.

Enfin, regardons les spectres d'excitation en champ électrique (Fig. 4.43). Figure 4.43(a), le trou dans la courbe de la probabilité de double excitation (dû au blocage dipolaire) s'approfondit beaucoup et surtout s'élargit en champ électrique quand la distance internucléaire passe de 5 à 4 μm (alors que le couplage dipôle-dipôle est multiplié par un facteur 2, la largeur en champ est multipliée par plus de 3, passant de 6 à près de 23 MHz). L'élargissement en champ électrique provient tout simplement de ce que le blocage sature au centre de la raie (il atteint 100% !). Dans l'expérience, le blocage n'atteint que 60% du total de l'excitation si l'on considère une paire d'atomes, il n'est donc pas saturé en général mais il peut l'être pour des paires d'atomes proches. Les réactions de migration ont été invoquées de façon naturelle pour expliquer les largeurs en champ électrique (l'élargissement en champ électrique est de près de 50 MHz expérimentalement). Les différents états moléculaires possibles devraient être aussi étudiés attentivement, car les niveaux d'énergie de certains de ces états peuvent être fortement déplacés par l'interaction dipôle-dipôle. Le spectre d'excitation s en champ électrique (Fig. 4.43(a)) semble également fortement élargi par la présence du blocage au centre de la raie (élargissement "apparent"), plus encore que la raie de blocage en champ électrique.

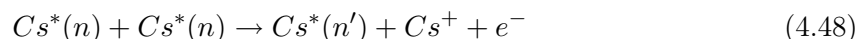
L'ensemble de ces résultats permet de confirmer un grand nombre d'observations expérimentales. Expérimentalement, nous avons vu qu'une saturation de 30% est obtenue lorsque la densité atteint $2 \times 10^9 \text{ at/cm}^{-3}$, soit une distance internucléaire d'environ 5 μm . La saturation était principalement effective au centre des raies et les raies en champ électrique était fortement élargies. Ces résultats sont retrouvés ici. Les largeurs en champ électrique ont une première origine certaine dans un phénomène de saturation du blocage de l'excitation de paires d'atomes proches. Ce résultat conforte le modèle statistique développé au paragraphe 4.4.1.5.

4.4.5 Interprétation des phénomènes de collisions froides ionisantes à résonance de Förster

L'objet de ce paragraphe est d'expliquer simplement les résonances ioniques observées par exemple sur la figure 4.32 à champs légèrement plus élevés que la résonance de Förster. Une explication qualitative a déjà mentionné l'importance des forces dipolaires attractives à droite des résonances de Förster, pouvant conduire à une ionisation lorsque les deux atomes sont suffisamment rapprochés. Dans cette section, nous rappelons d'abord les résultats expérimentaux puis nous analysons les temps de collision pouvant rendre compte des résonances d'ionisation observées.

4.4.5.1 Ionisation Penning

Nous avons jusqu'à présent parlé de collision ionisante. Il s'agit plus exactement d'un processus d'ionisation Penning, dans lequel un des deux atomes subit une transition vers un niveau Rydberg fortement lié (d'énergie plus faible) alors que l'autre subit une transition vers un état du continuum :



Ce processus est un phénomène d'autoionisation moléculaire permis lorsque les deux atomes interagissent suffisamment et donc après que les deux atomes sont suffisamment rapprochés par les forces dipolaires (entre autres). L'autoionisation provient d'un couplage entre l'état moléculaire "lié" $Cs^*(n) - Cs^*(n)$ et l'état "prédissozié" $Cs^*(n') - Cs^+ + e^-$. Une étude plus détaillée est donnée dans [Hahn, 2000]. Une étude décrivant de manière classique la trajectoire des ions et des électrons [Robicheaux, 2005] fait apparaître que l'ionisation Penning

est possible et très rapide à partir du moment où les deux atomes sont distants d'environ $2 \times 2(n^*)^2 a_0$. L'ionisation peut donc être considérée comme effective à partir de $3R_0(n)$, où $R_0(n) \approx 3/2(n^*)^2 a_0$ est le rayon d'un atome de Rydberg.

4.4.5.2 Observations expérimentales : Résonances d'ionisation Penning

Les nombres d'ions sont présentés en parallèle avec les nombres d'atomes de Rydberg sur les figures 4.25 et 4.32. Loin de résonance de Förster, entre 40 et 80 ions sont détectés (après un délai de 700 ns pendant lequel des collisions froides ionisantes ou une ionisation par rayonnement du corps noir se produisent). Ce nombre diminue légèrement sur l'aile gauche de la résonance de Förster pour atteindre un minimum à résonance mais par contre atteint de façon résonante un maximum sur l'aile droite de la résonance de Förster. Le nombre d'ions passe par exemple très rapidement de 55 à 110 pour l'état $40p_{3/2}$ (cf Fig. 4.44). Ceci est une conséquence de la présence des forces dipolaires. Dans la figure 4.26 (b), il est mis en évidence que l'état propre d'énergie la plus basse du système à deux niveaux est attractif. La première preuve de collisions ionisantes induites par les forces dipolaires a été donnée par [Li et al., 2005] : l'excitation sur une courbe moléculaire attractive conduit à une collision ionisante.

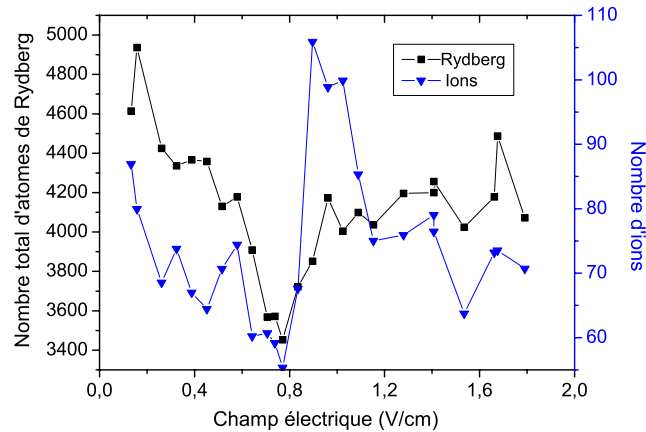


FIG. 4.44 – Etat $40p_{3/2}$. Nombre d'atomes de Rydberg (carrés), et nombre d'ions (triangles) en fonction du champ électrique. La résonance de Förster est obtenue pour un champ $F = 0.75$ V/cm. La largeur en champ électrique de la raie de saturation est de l'ordre de 40 MHz (voir texte). Le nombre d'ions diminue à gauche de la résonance de Förster mais ce nombre augmente à droite de résonance : à gauche de résonance, l'excitation d'un dimère se fait principalement sur une courbe répulsive alors qu'à droite de résonance, l'excitation se fait sur la courbe attractive du dimère.

A résonance de Förster, l'excitation de paires proches d'atomes est rendue impossible par blocage dipolaire. La distance internucléaire minimum possible entre deux atomes est relativement élevée : même si ces deux atomes sont excités sur une courbe moléculaire attractive (50% des excitations à résonance de Förster), les fonctions d'onde électroniques de chacun des deux atomes ne se recouvrent pas⁴¹. Un temps relativement long est nécessaire pour que la collision rapproche suffisamment les deux atomes. Il est à noter également qu'à résonance de Förster, le nombre d'atomes excités globalement diminue, en conséquence les processus d'ionisation ne

⁴¹Le rayon d'un atome de Rydberg est d'environ 130 nm pour $n=40$. Les distances minimales d'excitation sont plutôt de l'ordre de 4 μm .

correspondant pas à l'interaction entre atomes de Rydberg aussi. Nous comprenons donc bien la légère diminution du nombre d'ions à résonance de Förster.

La résonance dans le nombre d'ions observée sur l'aile droite peut également s'expliquer. Des paires d'atomes beaucoup plus proches qu'à résonance de Förster peuvent être excitées. Cette excitation a lieu sur la courbe moléculaire attractive, les taux d'ionisation y sont beaucoup plus importants. Le même phénomène s'observe pour l'état $42p_{3/2}$: bien que le niveau ss' soit situé à près de -9.6 MHz du niveau pp , un blocage de l'excitation est observé (en champ nul, certains états moléculaires sont très attractifs, alors que d'autres n'ont au contraire aucun effet sur l'excitation) et une résonance sur le nombre d'ions est observée pour un faible champ électrique. Pour l'état $43p_{3/2}$, le décalage des niveaux d'énergie par interaction dipôle-dipôle (plus exactement, le décalage est de type Van der Waals en $\frac{-C_6}{R^6}$) n'est pas suffisant pour induire un blocage de l'excitation, par contre il est suffisamment fort pour que la force d'attraction en $\frac{-6C_6}{R^7}$ dérivant du potentiel d'interaction induise des collisions ionisantes. Il apparaît également que le nombre d'ions provenant de collisions ionisantes augmente avec n , logiquement car les forces dipolaires sont de plus en plus fortes. Pour les états $n < 34$, les forces dipolaires sont trop faibles et aucune résonance sur les nombres d'ions n'est observée à temps courts.

4.4.5.3 Interprétation des résonances d'ionisation Penning

Pour simuler la résonance d'ionisation à résonance de Förster, nous reprenons quelques considérations simples développées dans [Robicheaux, 2005]. Il est montré dans ce paragraphe que pour décrire correctement les taux d'ionisation observés, il est nécessaire de prendre en compte l'anisotropie de l'interaction dipôle-dipôle.

S'il n'est pas tenu compte de la dépendance angulaire de l'interaction dipôle-dipôle, il y a collision possible entre deux atomes lorsque l'excitation est effectuée sur l'état attractif $|-\rangle$,

d'énergie supposée radiale $U(R) = \frac{\Delta_{ppss'}}{2} \left(1 + \sqrt{1 + \left(\frac{W(R)}{\Delta_{ppss'}/2}\right)^2}\right)$ avec $W(R) = \frac{1.5\mu_1\mu_2}{R^3}$ et $\Delta_{ppss'}$

le décalage (négatif et dépendant du champ électrique) entre les niveaux pp et ss' .

Par conservation de l'énergie, la vitesse $v(R)$ lorsque les deux atomes sont séparés d'une distance R est :

$$v(R) = \sqrt{\frac{2}{\mu} |U(R) - U(R_0)|} \quad (4.49)$$

où R_0 est l'espacement internucléaire de départ et $\mu = \frac{mCs}{2}$ est la masse relative des deux atomes et il est admis que la vitesse initiale relative est nulle. Le temps nécessaire pour que les deux atomes passe de R_0 à R_f est :

$$T(R_f) = \int_{R_0}^{R_f} \frac{1}{v(R)} dR \quad (4.50)$$

Le calcul (4.50) ne donne qu'un ordre de grandeur du temps de collision et n'est en fait pas suffisant pour expliquer la résonance du nombre d'ions à droite de la résonance de Förster.

En effet, en l'absence de blocage dipolaire de l'excitation, la distribution spatiale d'un atome plus proche voisin excité autour d'un atome est donnée par la distribution d'Erlang.

En présence de blocage de l'excitation le plus proche voisin est contenu dans le volume $\mathcal{V} = \mathcal{V}_{\mathcal{PMO}} - \frac{4}{3}\pi R_{min}^3$, R_{min} étant le rayon minimum permettant l'excitation (nous utilisons le fait que l'efficacité du blocage varie très rapidement avec R), pris comme solution de l'équation $\Delta_{ppss'} - U(R_{min}) = \Delta\nu$, avec $\Delta\nu \approx 6$ MHz. En définissant R_{max} le rayon R_0 maximum permettant l'ionisation en un temps inférieur à un temps τ (dans la formule (4.50)), la

probabilité P de collision avec ionisation d'un des deux atomes après un temps inférieur à τ serait donnée par :

$$P \propto \int_{R_{min}}^{R_{max}} \frac{4\pi R^2}{\frac{4\pi}{3}R_d^3} e^{-\left(\frac{R}{R_d}\right)^3} dR = e^{-\left(\frac{R_{min}}{R_d}\right)^3} - e^{-\left(\frac{R_{max}}{R_d}\right)^3} \quad (4.51)$$

Cette intégrale n'a évidemment de sens que si $R_{max} > R_{min}$, ce qui en général n'est pas le cas en considérant le temps τ entre excitation et détection dans l'expérience, typiquement 700-1000 ns. La distance R_{min} est d'environ $5.5 \mu\text{m}$ à résonance de Förster pour l'état $38p_{3/2}$ et ne diminue que lentement hors de la résonance (cf Fig. 4.45(a)). Les temps typiques de collisions à résonance de Förster ($F = 1.46 \text{ V/cm}$) et pour le champ électrique $F' = 1.65 \text{ V/cm}$ (correspondant au champ électrique de la résonance d'ionisation) sont donnés sur la figure 4.45(b) en fonction de la distance internucléaire. Avec le champ électrique $F' = 1.65 \text{ V/cm}$ il faut nécessairement que les atomes soient distants d'au plus $2.1 \mu\text{m}$ pour qu'une collision ait lieu pendant les premières 1000 ns, soit une distance 2.5 fois plus petite que la distance minimale d'excitation.

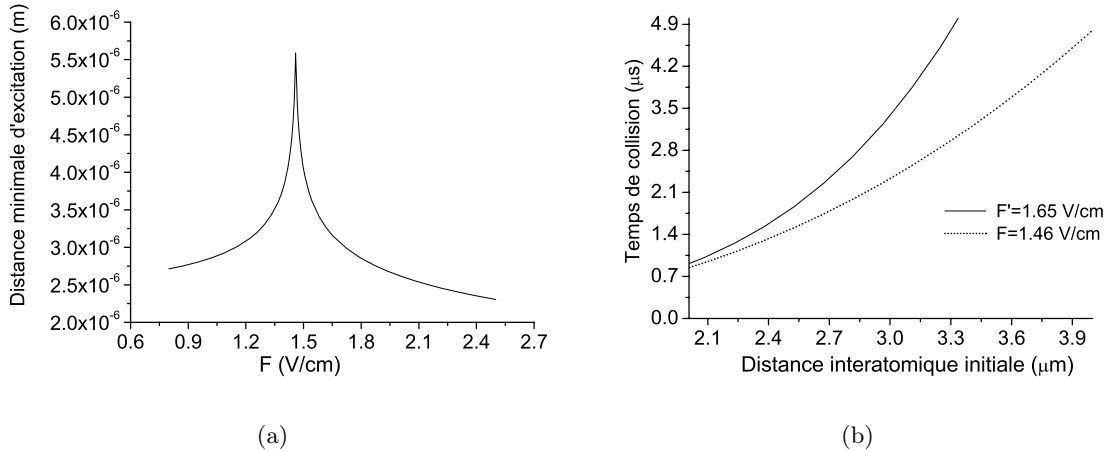


FIG. 4.45 – (a) Distance interatomique minimum R_{min} (voir texte) permettant l'excitation d'une paire d'atomes au voisinage de la résonance de Förster de l'état $38p_{3/2}$. (b) Temps de collision permettant l'ionisation par procédé Penning d'un des atomes (voir texte) en fonction de la distance interatomique initiale pour deux champs différents, $F=1.46 \text{ V/cm}$ (résonance de Förster de l'état $38p_{3/2}$) et $F'=1.65 \text{ V/cm}$ (position de la résonance d'ionisation expérimentale).

De fait, pour retrouver le résultat expérimental, il faut tenir compte de la particularité des différents niveaux d'énergie. En champ électrique (exemple de l'état $38p_{3/2}$), des paires d'atomes très proches peuvent être excitées pour des directions particulières des axes internucléaires Θ par rapport à l'axe défini par le champ électrique. En effet, quatre des états propres à résonance de Förster ont des zéros d'interaction pour des directions particulières.

Ainsi, la probabilité d'ionisation P s'écrit maintenant :

$$P \propto \int_0^\pi \int_{R_{min}(\Theta)}^{R_{max}(\Theta)} \frac{1}{\frac{4}{3} \pi R_d^3} e^{-\left(\frac{R}{R_d}\right)^3} 2\pi R^2 \sin \Theta dR d\Theta \quad (4.52)$$

Le calcul de $R_{max}(\Theta)$ doit a priori tenir compte de la trajectoire de collision non radiale en champ électrique (cf section 1.3.2.3). Pour les angles particuliers permettant l'excitation de paires proches, les temps de collision sont approximativement deux fois plus longs que ceux

donnés par l'expression (4.50) pour un même espacement interatomique initial. Mais en toute rigueur, il faudrait tenir compte de la distribution thermique des vitesses initiales (qui peut jouer un rôle important), et surtout tenir compte du fait que le phénomène d'autoionisation n'est a priori pas limité spatialement même s'il est plus important à courte distance. Un calcul exact devrait être mené pour retrouver les taux exacts d'ionisation. Nous multiplions finalement le temps calculé avec la formule (4.50) par 2 pour évaluer le temps de collision. $R_{min}(\Theta)$ est calculé en prenant l'état propre d'énergie décalé d'une énergie $-\frac{3}{8}\sqrt{2}|1-3\cos^2\Theta|$ à résonance de Förster, par rapport au niveau non perturbé $|38p_{3/2}, 38p_{3/2}\rangle$.

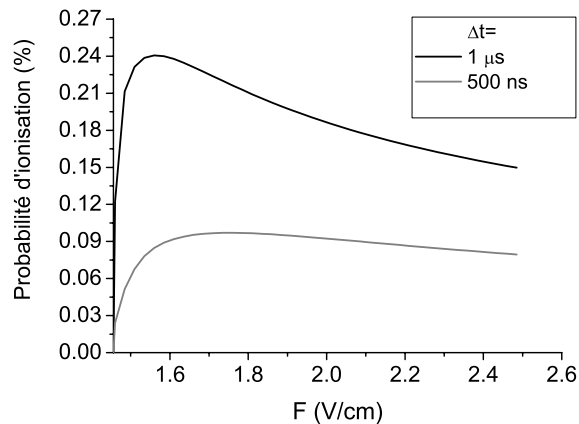


FIG. 4.46 – Probabilité d'autoionisation (formule (4.51)) pour une excitation sur l'état $|-\rangle$ à droite de la résonance de Förster $38p_{3/2}$ (le champ à résonance est $F_F \approx 1.46$ V/cm), après un délai Δt entre excitation et détection. La densité d'atomes excités dans l'état Rydberg est supposée être 2.5×10^9 at/cm⁻³ en l'absence d'interaction.

Le résultat du calcul de la probabilité d'ionisation en utilisant la formule (4.52) est donné Fig. 4.46 pour l'état $38p_{3/2}$ en champ électrique. La densité atomique loin de la résonance de Förster est supposée être $\sim 2.5 \times 10^9$ at/cm⁻³. Le calcul n'est bien sûr réalisé que sur l'aile des champs forts de la résonance de Förster, là où l'interaction est attractive. Le résultat, même s'il ne reproduit pas exactement les données expérimentales est que, comme nous l'avions indiqué dans la partie expérimentale, du fait du blocage de l'excitation, l'ionisation est plus importante sur l'aile de la résonance à temps courts. Après 500 ns, l'ionisation est limitée à résonance de Förster car l'excitation de paires proches collisionnant rapidement a été inhibée. On voit par ailleurs que le taux d'ionisation trouvé par le calcul est plus faible que celui obtenu expérimentalement, de l'ordre de 0.5% du nombre total d'atomes de Rydberg pour la résonance d'ionisation de l'état $38p_{3/2}$. Un calcul plus complet est nécessaire.

En champ nul, un certain nombre d'états sont tout simplement des zéros d'interactions et permettent l'excitation de paires proches. L'excitation de paires proches se fait cependant vers des états non attractifs qui ne devraient pas conduire à une collision. La distribution des vitesses initiales devrait probablement être considérée pour expliquer les taux d'ionisation observés.

4.4.5.4 Conclusion : blocage de l'ionisation

Par le calcul précédent, très simplifié, nous avons retrouvé les résultats expérimentaux qui avaient été interprétés de manière qualitative. Le blocage des paires d'atomes proches à

résonance de Förster permet de limiter de façon importante les taux d'ionisation et d'une manière générale les mouvements relatifs des atomes excités entre eux. L'importance du blocage dipolaire pour la conservation de la cohérence en empêchant le mouvement des atomes avait déjà été soulevé par [Jaksch et al., 2000]. Ce rôle est dans une certaine mesure confirmé. La résonance d'ionisation observée sur l'aile des champs forts des résonances de Förster est par contre due à l'anisotropie de l'interaction dipôle-dipôle. Cette anisotropie sera peut-être une limitation qu'il sera important d'étudier pour pouvoir utiliser le blocage dipolaire.

4.4.6 Conclusion : blocage à résonance de Förster et perspectives

Un blocage dipolaire de l'excitation de l'ordre de 30% a été observé à résonance de Förster, confirmant que l'excitation d'un atome vers un état $np_{3/2}$ avec $n \sim 38$ est a priori bloquée à résonance de Förster si cet atome se trouve à une distance inférieure à $\sim 4.5 \mu\text{m}$ d'un autre atome excité. Des modèles simples basés sur l'interaction entre paires d'atomes permettent déjà d'expliquer un certain nombre de résultats. En information quantique, il pourrait être intéressant d'augmenter la portée du blocage dipolaire pour rendre plus aisée une expérience de blocage total de l'excitation : il est nécessaire dans ce cas de diminuer la largeur spectrale de l'excitation ou de rechercher d'autres configurations de blocage de l'excitation utilisant des niveaux de nombre quantique principal n plus élevés. L'interaction dipôle-dipôle en champ électrique est un candidat très prometteur. D'importantes possibilités d'utilisation de l'interaction dipôle-dipôle en champ électrique ont ainsi été précisées dans la conclusion 4.3.2.4.

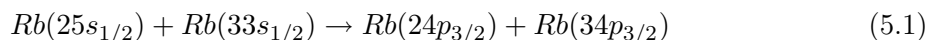
Il n'en reste pas moins que le système étudié à résonance de Förster est extrêmement riche et complexe. Nous ne reviendrons pas ici sur l'interprétation des résultats expérimentaux ni sur les difficultés que nous avons rencontrées pour l'observation du blocage dipolaire à résonance de Förster, que nous avons résumées dans la conclusion de la partie expérimentale au paragraphe 4.4.3. Outre les problèmes d'élargissements par puissance ou ceux liés à la distribution des paires proches d'atomes proches qui nous permettent d'expliquer un grand nombre de phénomènes, il faudrait également considéré les processus à N corps de migration des excitations ns et $(n+1)s$ dans l'environnement des autres atomes ainsi que l'effet des forces dipolaires. Ce sont ces mécanismes physiques que nous nous proposons d'étudier plus en détail dans le chapitre suivant, et notamment leurs effets à résonance de Förster sur la cohérence locale dans un ensemble d'atomes de Rydberg.

Chapitre 5

Excitation large bande d'un ensemble d'atomes froids de Rydberg : Analyse par creusement spectral à résonance de Förster

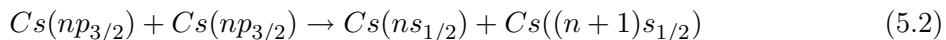
5.1 Introduction

Au chapitre précédent, nous avons axé l'étude de l'interaction dipôle-dipôle sur le blocage dipolaire de l'excitation vers des états de Rydberg dans le cas d'une excitation monomode quasi-continue. Ce schéma d'excitation peut a priori permettre d'atteindre un blocage total de l'excitation à l'intérieur d'une sphère dont le diamètre, de près d'une dizaine de micromètres, est la limite en deçà de laquelle le couplage dipôle-dipôle est supérieur à la résolution spectrale de l'excitation pour deux atomes séparés par cette distance. Lorsqu'on considère les atomes d'un piège magnéto-optique, un tel volume contient un grand nombre d'atomes, plusieurs dizaines pour une densité de 10^{11} at/cm³, mais un seul peut être excité. Avec une excitation large bande, tous les atomes sont au contraire susceptibles d'être excités quelque soit l'environnement des autres atomes, et ainsi le blocage dipolaire de l'excitation n'est pas attendu (cf section 2.3.1). Les atomes de Rydberg sont alors répartis de manière stochastique. La répartition des atomes va se manifester par une distribution des niveaux d'énergie en quasi-bande, caractéristique des interactions dipôle-dipôle dans un ensemble d'atomes de Rydberg. On peut sonder une telle distribution par spectroscopie micro-onde ou laser. Des expériences utilisant des excitations par rayonnement micro-onde ont mis en évidence des élargissements démontrant l'existence de quasi-bandes de niveaux d'énergie. Nous avons déjà mentionné et décrit l'expérience de l'article [Afrousheh et al., 2004] en introduction du chapitre 4, qui consiste à sonder sur une transition micro-onde la distribution des niveaux d'énergie après excitation d'atomes de rubidium vers des états de Rydberg. Les nombreuses expériences de transfert résonant d'excitation ont également montré des élargissements importants en fonction du champ électrique, résultant d'une quasi-bande de niveaux d'énergie dû aux interactions dipôle-dipôle [Mourachko et al., 1998, Anderson et al., 1998]. Le rôle de l'interaction dipôle-dipôle dans les élargissements de raie en champ électrique a été confirmée par l'expérience [Mourachko et al., 2004] où la réaction de transfert résonant d'énergie



est perturbée¹ par la présence d'atomes excités dans l'état $34s_{1/2}$ qui présentent un très fort couplage dipôle-dipôle avec l'état $33p_{3/2}$ et augmentent donc l'importance des couplages de type $sp \rightarrow ps$. Cette expérience est une démonstration de l'importance de la migration des produits de la réaction (5.1) selon la réaction $34p_{3/2} + 33s_{1/2} \rightarrow 33s_{1/2} + 34p_{3/2}$, de même temps caractéristique que la réaction $34p_{3/2} + 34s_{1/2} \rightarrow 34s_{1/2} + 34p_{3/2}$. Comme nous l'avons décrit longuement dans la section 1.3.4.2, les interactions dipôle-dipôle entre plusieurs atomes conduisent aux grands élargissements spectraux obtenus expérimentalement.

L'expérience que nous avons envisagée pour analyser l'interaction-dipôle-dipôle dans un ensemble d'atomes de Rydberg est de réaliser une excitation large bande avec un laser pulsé et d'analyser la distribution des niveaux d'énergie avec un laser continu monomode. Pour cela, nous réalisons une spectroscopie de désexcitation stimulée vers un autre niveau, le niveau $7s_{1/2}$, permettant de réaliser un creusement spectral (Hole Burning) du nombre d'atomes de Rydberg excités initialement. Nous avons utilisé cette technique spectroscopique pour étudier la distribution des niveaux d'énergie d'un ensemble d'atomes excités dans un état $np_{3/2}$ au voisinage de la résonance de Förster :



Il est intéressant de noter qu'un ensemble d'atomes de Rydberg après une excitation pulsée est un système quasiment isolé du fait de la longue durée de vie des états de Rydberg (incluant l'effet du rayonnement du corps noir). Le gaz de Rydberg suit donc une évolution hamiltonienne, qui doit permettre une conservation de la cohérence durant un long temps. La cohérence d'un sous-système au sein de ce nuage de Rydberg ne dépend donc a priori que des interactions du sous-système avec les autres atomes de Rydberg.

Les auteurs de l'article [Anderson et al., 2002] ont utilisé une méthode interférométrique de type Ramsey pour étudier la cohérence d'un gaz d'atomes de Rydberg à résonance de Förster. Il s'agit d'étudier la cohérence locale de paires d'atomes au passage de la résonance de Förster (5.1) obtenue pour un champ électrique F_0 en fonction des réactions de migration dans l'environnement des autres atomes $24p_{3/2} + 25s_{1/2} \rightarrow 24p_{3/2} + 25s_{1/2}$ et $34p_{3/2} + 33s_{1/2} \rightarrow 33s_{1/2} + 34p_{3/2}$. Dans cette expérience, les atomes (fournis par un PMO) sont excités de manière pulsée dans les états $25s_{1/2}$ et $33s_{1/2}$ pour un champ électrique hors résonance (F) : l'état de départ $\Psi(0)$ est alors l'état $\Psi(0) = ss' \equiv |25s_{1/2}33s_{1/2}\rangle$. La méthode d'interférences de Ramsey consiste à appliquer deux impulsions de champ électrique de durée t_0 permettant de mettre la réaction (5.1) à la résonance de Förster. A résonance, la population oscille entre les états $pp \equiv |24p_{3/2}34p_{3/2}\rangle$ et ss' , avec la période $\frac{h}{E_+ - E_-}$, où E_+ et E_- sont les énergies des états propres $|+\rangle$ et $|-\rangle$ superpositions symétrique ou antisymétrique des états pp et ss' (voir p. 188 pour la définition des états propres à résonance de Förster). La présence de ces oscillations est caractéristique de la cohérence des paires d'atomes interagissant à résonance de Förster [Robicheaux et al., 2004]. Les deux impulsions de champ électrique sont séparées par une période de durée T pendant laquelle la réaction (5.1) est mise hors résonance, les composantes de l'état $\Psi(t)$ projeté sur les états non perturbés pp et ss' évoluant alors séparément aux fréquences de Bohr, $E_{pp}(F)/h$ et $E_{ss'}/h$ respectivement. Si seule la réaction (5.1) est considérée, la population transférée dans l'état ss' après la séquence d'impulsions peut se mettre sous la forme :

$$P(ss') \propto \cos^2\left(\frac{(E_{pp}(F) - E_{ss'})T}{2\hbar}\right) \sin^2\left(\frac{(E_+ - E_-)t_0}{2\hbar}\right) \quad (5.3)$$

¹L'expérience a consisté à vérifier que la présence d'un troisième atome excité dans l'état $34s_{1/2}$ autour de deux atomes dans les états $25s_{1/2}$ et $33s_{1/2}$ interagissant via la réaction (5.1), était équivalente à la présence d'un troisième atome dans l'état $33s_{1/2}$.

Pour τ maintenu constant et T variable, la population transférée dans les états s et s' oscille à la fréquence $f = \frac{E_{pp}(F) - E_{ss'}}{2h}$.

En présence des réactions de migration, qui, on le rappelle, sont toujours résonantes, les niveaux d'énergie de chaque paire d'atomes sont modifiés par l'environnement des autres atomes. Hors de la résonance de Förster, le niveau d'énergie pp est couplé à une bande de niveaux due à la présence des autres atomes essentiellement présents dans les états s et s' (état pouvant s'écrire² $|pp\rangle \otimes \mathcal{E}$ où \mathcal{E} désigne l'environnement des atomes s et s'). La bande de niveaux résulte de la considération de tous les échanges possibles entre une excitation p de cette paire et une excitation s d'un atome de l'environnement. Pour τ maintenu constant et T variable, il en "résulte" un brouillage rapide des oscillations (l'état du système $\Psi(t)$ est dans une superposition de niveaux évoluant avec des fréquences de Bohr différentes pendant la phase d'évolution libre de durée T). Finalement, le signal d'interférences observé dans la publication [Anderson et al., 2002] est de la forme $S = A + Be^{-T/\tau} \cos(2\pi fT)$, où τ est une constante caractérisant un brouillage quasi-exponentiel des interférences. Cette constante dépend de la densité atomique, elle varie dans cette expérience entre 30 et 100 ns pour une densité atomique variant de 10^9 à 5×10^9 at/cm⁻³. Ces valeurs sont en accord avec les couplages dipôle-dipôle $ps \leftrightarrow sp$ et $ps' \leftrightarrow s'p$ calculées en considérant uniquement deux autres atomes s et s' dans l'environnement de la paire d'atomes proches [Anderson et al., 2002]. Dans l'article [Robicheaux et al., 2004], les auteurs ont montré que les forces dipolaires ne peuvent pas expliquer la rapidité de la perte de cohérence observée dans l'expérience [Anderson et al., 2002]. Les processus de migration des excitations ns et $(n+1)s$ sont la principale cause de cette perte de cohérence. Cette expérience présente par rapport aux expériences qui ont été réalisées dans le césium un très fort effet de migration en comparaison du couplage dû à l'effet de la réaction de transfert (5.1) qui lui correspond à un couplage dipôle-dipôle modéré de deux atomes au départ dans des états de n différents.

Nos expériences ont consisté à réaliser la spectroscopie de l'état $np_{3/2}$ au voisinage de résonance de Förster. Nous avons observé la possibilité de désexciter les atomes transférés dans les états ns et $(n+1)s$ au voisinage d'une résonance de Förster, ce qui indique que la réaction de Förster (5.2) est réversible. Par analogie avec l'expérience [Anderson et al., 2002], nous avons interprété cette désexcitation des états ns et $(n+1)s$ comme une propriété de cohérence de chacune des paires d'atomes, malgré la présence de son environnement. En réalisant la spectroscopie de l'état ns au voisinage de la résonance de Förster, il apparaît un décalage spectral systématique et inattendu entre les fréquences centrales des raies de désexcitation des états ns et $np_{3/2}$. L'analyse de ce décalage suggère que seul l'état $|+\rangle$ est détecté. Différentes hypothèses sont émises pour expliquer un tel résultat. Il semble qu'il faille étudier attentivement le rôle de la détection des atomes de Rydberg par ionisation par champ électrique ainsi que le rôle des forces dipolaires illustrées par la Fig. 4.26 (b). Le temps de décohérence de notre système a pu être étudié indirectement en analysant la possibilité ou non de désexciter les états ns et $(n+1)s$, i. e. en analysant la réversibilité de la réaction (5.2). Les causes de cette perte de cohérence sont encore expliquées ici par la migration des excitation ns et $(n+1)s$.

Dans ce chapitre, nous présentons les résultats expérimentaux publiés dans l'article [Mudrich et al., 2005] et qu'on analyse en termes de décohérence. Pour parvenir à ces résultats, nous avons utilisé la spectroscopie dite de creusement spectral que nous avons introduite page 94. Nous en rappelons d'abord le principe. Les résultats expérimentaux concernant la possibilité de désexciter les états ns et $(n+1)s$ puis les décalages spectraux entre les fréquences centrales des spectres de creusement spectral des états ns et $np_{3/2}$ au niveau des résonances

²Cette description est très simplifiée et suppose que les paires d'atomes en interaction peuvent se distinguer du reste du système sans pouvoir totalement négliger l'interaction avec l'environnement.

de Förster $24p_{3/2} + 24p_{3/2} \rightarrow 24s_{1/2} + 25s_{1/2}$ et $25p_{3/2} + 25p_{3/2} \rightarrow 25s_{1/2} + 26s_{1/2}$ sont ensuite présentés. Une étude particulière concerne l'évolution temporelle des spectres de creusement spectral à résonance de Förster. Enfin, les différentes interprétations possibles de tels résultats sont discutées.

5.2 Schéma de désexcitation : spectroscopie par creusement spectral

La possibilité d'utiliser un schéma d'excitation dit "pulsé-continu" (PC) a été discutée au chapitre 2. Ce schéma est reproduit sur la figure 5.1. Il n'a pas pu être complètement exploité pour l'étude du blocage dipolaire en raison des sources importantes de photoionisation parasite qu'il génère. Dans certaines conditions, il a été montré qu'une spectroscopie par creusement spectral pouvait être utilisée en champ électrique statique. En effet, si le champ électrique statique est suffisant (> 40 V/cm), les ions peuvent être repoussés suffisamment loin de la zone d'excitation en un temps caractéristique de l'ordre de $1 \mu s$. Il est alors possible de tirer parti d'un creusement spectral qui apparaît dans le spectre élargi par la distribution d'ions (cf Fig. 2.15 et 2.20). Ce creusement spectral pourrait permettre de détecter la présence d'interactions entre atomes de Rydberg.

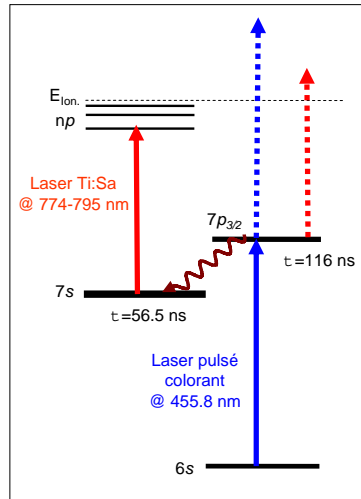


FIG. 5.1 – Schéma de pompage PC - creusement spectral. L'excitation vers l'état de Rydberg est effectuée suivant le schéma exposé au chap 2.3.2 (excitation vers l'état $7p_{3/2}$ avec un laser colorant pulsé, désexcitation spontanée vers l'état $7s$, réexcitation vers un état de Rydberg avec le laser continu Ti:Sa). Le dépompage est ensuite réalisé par le laser continu Ti:Sa par désexcitation vers l'état $7s$ de courte durée de vie. Deux voies possibles de photoionisation apparaissent : ionisation à 2 photons depuis l'état $6s$ avec le laser colorant pulsé (pouvant être en grande partie minimisée) et ionisation directe à un photon avec le laser Ti :Sa (restant toujours proportionnelle au nombre d'atomes de Rydberg excités).

Pour effectuer une spectroscopie dite de "creusement spectral", la séquence d'impulsions présentée Fig. 5.2 est utilisée. Après l'impulsion du laser à colorant pulsé permettant l'excitation de l'état $7p_{3/2}$ et ensuite celle l'état $7s$ par désexcitation spontanée, une première impulsion du laser Ti:Sa, de durée Δt_1 permet d'exciter les atomes vers un état de Rydberg depuis l'état $7s_{1/2}$, $F = 4$. Les ions sont alors accélérés hors de la zone d'interaction avec les atomes pendant un temps Δt sous l'effet d'un champ électrique statique. Après ce laps de temps Δt , les atomes dans les états $7s_{1/2}$ et $7p_{3/2}$ sont également désexcités en raison de la

courte durée de vie de ces états. Une deuxième impulsion de durée Δt_2 du laser Ti:Sa est alors appliquée pour désexciter les atomes de Rydberg $np_{3/2}$ les atomes vers l'état $7s_{1/2}, F = 4$, d'où ils retombent vers l'état $6p$ par émission spontanée. Finalement, une impulsion du champ électrique d'ionisation est appliquée avec un délai variable pour réaliser la détection sélective des états de Rydberg. L'impulsion est en général appliquée juste après la fin de la séquence d'impulsions lasers, mais peut aussi être décalée temporellement pour cette expérience.

Excitation et creusement spectral utilisent la même fréquence du laser Ti:Sa. L'excitation avec un désaccord important par rapport à la résonance $7s_{1/2} \rightarrow np_{3/2}$ est permise par la présence des photoions. Lorsque ces ions se sont "échappés", le creusement est efficace uniquement à la fréquence de la résonance atomique. Par conséquent, le trou dû au creusement spectral est beaucoup plus fin que la raie d'excitation (cf Fig. 5.2).

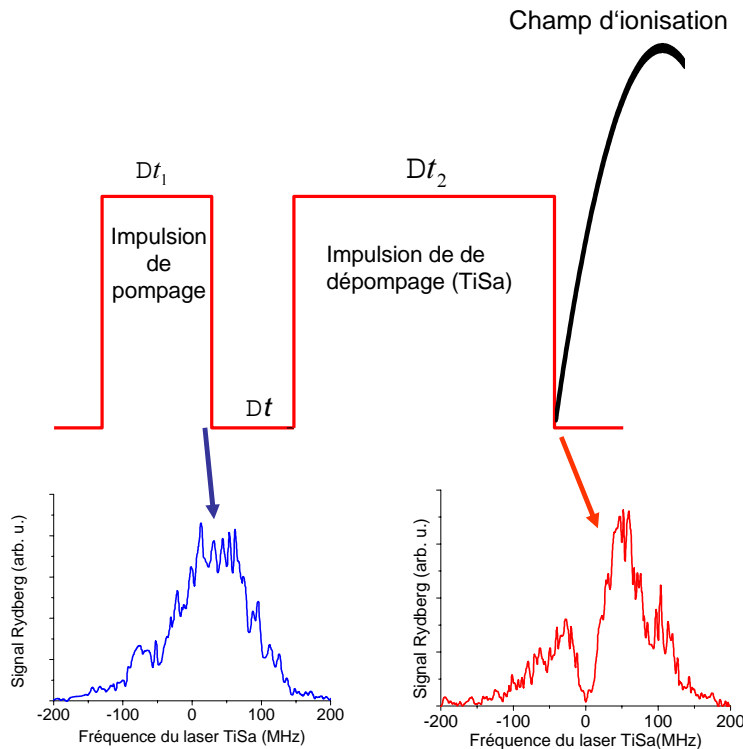


FIG. 5.2 – Séquence temporelle du schéma de spectroscopie de creusement spectral. Une première impulsion de durée Δt_1 permet d'exciter les atomes vers un état de Rydberg : $\Delta t_1 = 10$ ns lorsque l'excitation est pulsée suivant le schéma (a) de la Fig. 5.5, $\Delta t_1 \sim 300$ ns pour une excitation avec le laser Ti:Sa suivant le schéma 5.1. Le dépompage est effectué après un temps variable, Δt , par une deuxième impulsion (durée Δt_2) du laser Ti:Sa. Le dépompage se manifeste par un *trou* dans le spectre d'excitation.

Des études systématiques en fonction de la durée ou de la puissance de la deuxième impulsion laser font apparaître que ce creusement spectral présente une largeur dépendant beaucoup des conditions expérimentales. Pour des temps courts de dépompage (impulsion de durée Δt_2) et des faibles puissances du laser Ti:Sa, la largeur du creusement spectral est < 10 MHz. Cette largeur est comparable à celle obtenue dans les études concernant le blocage dipolaire, attendu également ici. Par contre, nous voyons sur la figure 5.3 que le creusement spectral s'élargit dès que la désexcitation atteint près de 100% au centre de la raie. Cet élargissement est lié à la puissance du laser et à la durée de l'impulsion. Pour une puissance fixe du laser Ti:Sa de 200 mW (soit une intensité maximum de ~ 300 W/cm²) l'élargissement apparaît lorsque Δt_2 excède 1 μ s. Après $\Delta t_2 = 3$ μ s, l'élargissement obtenu est d'environ 30 MHz. Pour une durée

fixe $\Delta t_2 = 5 \mu\text{s}$, l'élargissement apparaît pour une puissance du laser supérieure à 30 mW. Le comportement de l'élargissement obtenu expérimentalement est en accord avec les calculs du chapitre 2.

Pour utiliser cette spectroscopie afin d'analyser la distribution des niveaux de Rydberg d'un ensemble d'atomes, il faut se placer dans des conditions où le creusement spectral n'est pas élargi, et donc utiliser une impulsion de désexcitation de faible puissance et de courte durée. Cette technique de spectroscopie telle que considérée ici ne permet pas d'obtenir des densités importantes, nécessaires à l'observation des interactions dipôle-dipôle entre atomes de Rydberg. En effet, malgré la possibilité de saturer fortement la première impulsion d'excitation, les ions limitent le nombre d'atomes qu'il est possible d'exciter en élargissant les spectres d'excitation (plus d'une centaine de mégahertz pour les spectres de la figure 5.3). L'effet Stark des états $np_{3/2}$ augmentant rapidement avec n , cette spectroscopie se limite à l'étude de n relativement bas. Elle est également limitée par la nécessité de réaliser une spectroscopie en champ électrique relativement élevé, ce qui reviendra à considérer des résonances de Förster pour des n bas (cf section suivante).

Nous avons étudié avec cette méthode les états de nombre quantique principal $n < 28$. Un calcul simple de l'interaction dipôle-dipôle en champ électrique qu'il est possible d'obtenir dans le cas des données de la figure 5.3 (a) montre la difficulté pour observer un élargissement du creusement spectral dû à cette interaction. Le couplage dipôle-dipôle moyen entre atomes séparés par une distance interatomique moyenne égale à $0.9R_d$ est donné par $v_{dd} \approx \sin^2 \theta \frac{\mu_{pd}^2}{R_d^3}$, soit pour l'état $23p_{3/2}$ à 127 V/cm, $v_{dd} = 1,4$ MHz dans le cas de la plus forte densité³. Cette valeur est assez faible comparée la résolution spectrale de la désexcitation (~ 10 MHz). A ce point, il semble que la méthode considérée n'est pas applicable à l'observation du blocage dipolaire ou pour observer la formation d'une quasi-bande de niveaux d'énergie. Pour cela, il faut augmenter fortement le nombre d'atomes excités et supprimer toute création de photoions.

Pour aller plus loin, la spectroscopie par creusement spectral a été appliquée à la désexcitation stimulée d'atomes de Rydberg excités au préalable avec un laser pulsé (cf. Schéma 5.5 et 5.2). Une première impulsion fournie par un laser colorant pulsé (de durée $\Delta t_1 = 9$ ns) excite les atomes du PMO depuis l'état $6p_{3/2}$ vers un état de Rydberg $np_{3/2}$ (transition autorisée en présence de champ électrique). Après un délai Δt_p suffisant pour permettre aux ions de s'échapper de la zone d'excitation, une impulsion du laser Ti:Sa (de durée Δt_2) désexcite les atomes vers l'état de courte durée de vie $7s_{1/2}$, $F = 4$. Un spectre de creusement spectral obtenu pour l'état $25p_{3/2}$ pour un champ électrique de 43.8 V/cm est montré Fig. 5.4. La largeur importante ici obtenue, de quelques 60 MHz est une conséquence de la forte puissance (~ 200 mW) et de la longue durée $\Delta t_1 = 5 \mu\text{s}$ de l'impulsion de dépompage. Une proportion importante des atomes sont excités dans l'état $|m_j| = 3/2$ car l'excitation pulsée ne permet pas l'excitation sélective de l'état $|m_j| = 1/2$. Ceci explique qu'environ 40 % des atomes ne peuvent pas être désexcités par le laser Ti:Sa réalisant la transition $25p_{3/2}$, $|m_j| = 1/2 \rightarrow 7s_{1/2}$, $|m_j| = 1/2$.

L'intérêt de cette spectroscopie est qu'elle permet d'obtenir rapidement une forte densité d'atomes de Rydberg avec un nombre réduit d'ions qui de plus disparaissent de la zone du PMO en un temps inférieur à $1 \mu\text{s}$. Elle rend ainsi possible la réalisation d'une spectroscopie haute résolution, sans charge d'espace parasite⁴.

³Le volume d'excitation est cylindrique. Nous supposons un nuage à symétrie sphérique de rayon caractéristique $75 \mu\text{m}$, ce qui donne a priori une valeur surestimée pour la densité atomique : 9×10^9 at/cm³ pour 60000 atomes excités. Un champ électrique de 127 V/cm correspondant à $\tan^2 \theta = 1.2$ pour l'état $23p_{3/2}$.

⁴La source principale d'ions dans le cas d'une excitation pulsée est l'émission spontanée amplifiée. Le nombre d'ions est cependant bien plus faible qu'en excitation PC.

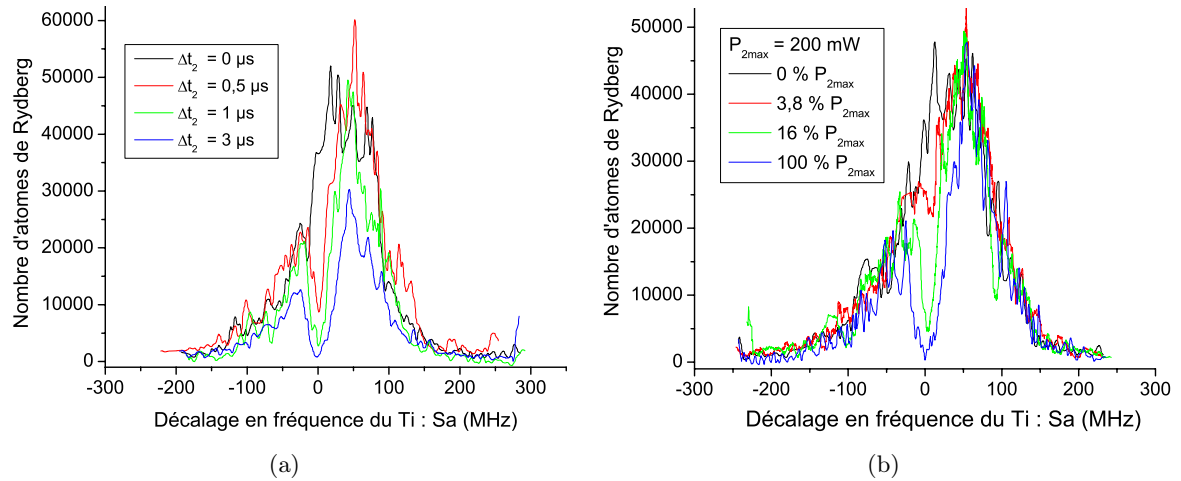


FIG. 5.3 – Spectroscopie de creusement spectral de l'état $23p_{3/2}$ (à 127 V/cm) en faisant varier, dans un premier temps (cas a), la durée de la deuxième impulsion Δt_2 de 0 à 3 μs (avec $P_2 = 200$ mW) et, dans un deuxième temps (cas b), sa puissance P_2 de 0 à 200 mW (avec $\Delta t_2 = 5$ μs). Ces expériences ont été réalisées en imposant $\Delta t_1 = 300$ ns et $\Delta t = 1$ μs . Comme prédit par le modèle (cf. Fig. 2.13 et 2.15), le trou de dépompage devient de plus en plus prononcé et s'élargit lorsque la durée d'illumination ou la puissance de l'impulsion laser augmentent.

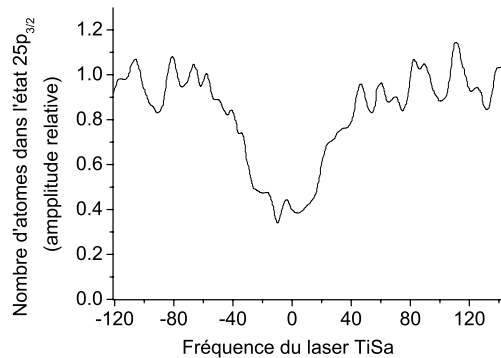


FIG. 5.4 – Spectre de creusement spectral d'atomes excités dans l'état $25p_{3/2}$ par un laser pulsé réalisant la transition $6p_{3/2} \rightarrow 25p_{3/2}$ pour un champ électrique de 43.8 V/cm. Le laser Ti:Sa utilisé pour la désexcitation stimulée est de puissance 200 mW et son waist au niveau du PMO est ~ 150 μm .

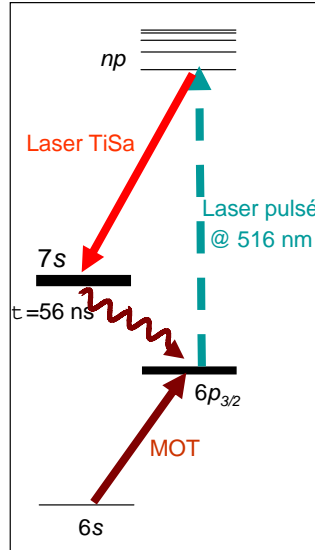


FIG. 5.5 – Schéma de spectroscopie par creusement spectral après excitation pulsée. L'excitation vers les états de Rydberg np se fait directement avec un photon du laser à colorant pulsé (les deux états $|m_j| = 1/2, 3/2$ sont excités), à partir de l'état $6p$ (la transition $6p \rightarrow np$ est autorisée en champ électrique). Le dépompage utilise ensuite le laser continu Ti:Sa en désexcitant les atomes vers l'état $7s$ de courte durée de vie.

5.3 Spectroscopie par creusement spectral du croisement évité à résonance de Förster

La dynamique du transfert résonant d'énergie a été étudiée au niveau de deux résonances de Förster différentes :

$$24p_{3/2}, |m_j| = 1/2 + 24p_{3/2}, |m_j| = 1/2 \rightarrow 24s_{1/2} + 25s_{1/2} \quad (5.4)$$

$$25p_{3/2}, |m_j| = 1/2 + 25p_{3/2}, |m_j| = 1/2 \rightarrow 25s_{1/2} + 26s_{1/2} \quad (5.5)$$

Différentes techniques ont été utilisées pour caractériser la dynamique temporelle du transfert résonant d'excitation. Dans un premier temps, nous étudions le transfert résonant d'excitation avec la méthode d'excitation PC (cf Fig. 5.1) et étudions quelques particularités liés à la présence des photoions. Ensuite, sont abordés les études par creusement spectral à résonance de Förster en utilisant le schéma d'excitation 5.5 notamment. Ces études constituent le résultat principal de ce chapitre.

5.3.1 Observation du transfert d'excitation à résonance de Förster

La dynamique du transfert d'excitation à résonance de Förster (réaction (5.4)) est illustrée par la figure 5.6. Les atomes sont excités dans l'état $24p_{3/2}$ avec le schéma d'excitation PC (cf Fig. 5.1). L'impulsion d'excitation du laser Ti:Sa de durée 300 ns permet d'obtenir une densité pic d'atomes dans l'état Rydberg typiquement⁵ de l'ordre de $3-4 \cdot 10^9$ at/cm⁻³. Le délai

⁵La densité est déterminée de manière assez imprécise. Le laser Ti:Sa et le laser pulsé sont contrapropageants et excitent un nuage d'atomes de forme allongée. Le waist du laser Ti:Sa au niveau du PMO est d'environ 150 μm , celui du laser pulsé est estimé à environ 200 μm et le rayon caractéristique du PMO est supposé être de 300 μm . Le nombre d'atomes excités est ~ 150000 . La détermination de la densité pic doit aussi prendre en compte la saturation par puissance de l'excitation.

entre excitation et détection varie entre 0 et 5 μs . Le nombre d'atomes détectés dans l'état $24s$ part d'une valeur quasi nulle mais augmente rapidement pour atteindre un maximum après environ 500 ns. Près de 35 % des atomes au départ dans l'état $24p_{3/2}$ sont transférés dans les états $24s$ et $25s$. Ensuite, la décroissance des signaux est essentiellement due aux durées de vie finie des niveaux $24s$ et $24p_{3/2}$.

L'interaction dipôle-dipôle obtenue pour deux atomes séparés par l'espacement internucléaire moyen est de l'ordre du MHz. L'excitation, de largeur spectrale 15-20 MHz (car saturée) est élargi par puissance et aucun phénomène de blocage de l'excitation n'est donc possible. Le nombre d'atomes dans les états $24s$ et $25s$ est quasi nul juste après la fin de l'excitation car l'état d'excitation d'une paire d'atomes dans l'état Rydberg est une superposition cohérente des états $|+\rangle$ et $|-\rangle$ combinaisons linéaires symétriques ou antisymétriques des états pp et ss' (un léger désaccord à résonance ne change pas ce résultat comme l'indique le résultat (2.4)). Le rôle des ions est avant tout de rajouter un désaccord inhomogène en champ électrique par rapport à la position de la résonance de Förster, ils minimisent donc le transfert d'excitation. L'accélération par le champ électrique externe doit cependant être bien étudiée pour déterminer exactement leur importance pendant le transfert résonant d'excitation.

En première approximation, un temps caractéristique du transfert d'excitation⁶ d'environ 500 ns signifie un couplage moyen entre atomes d'environ 2 MHz, à comparer à la valeur de 1 MHz estimée pour deux atomes espacés de la distance interatomique moyenne. Considérer un ensemble de paires en interaction donne un ordre de grandeur raisonnable du temps de transfert pour une excitation à résonance de Förster [Westermann et al., 2006] mais pour plus de précision, il a été démontré dans la référence [Westermann et al., 2006] qu'au moins 6 atomes doivent être considérés pour reproduire les signaux expérimentaux. Lorsque plus de deux atomes sont considérés, les couplages d'échange $sp \rightarrow ps$ et $s'p \rightarrow ps'$ sont responsables de la diffusion des excitations s et s' dans l'échantillon d'atomes p et permettent d'expliquer les largeurs en champ électrique des transferts d'excitation.

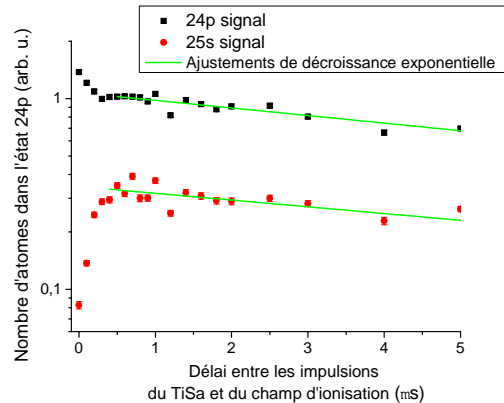


FIG. 5.6 – Evolution temporelle du nombre d'atomes transférés vers l'état $25s$ et du nombre d'atomes restants dans l'état $24p$ après excitation de l'état $24p$ suivant le schéma d'excitation 5.1 (a). L'excitation est effectuée à $F=59.11$ V/cm (résonance de Förster de l'état $24p_{3/2}$, $|m_j| = 1/2$). Le temps d'excitation avec le laser Ti:Sa est 300 ns et le délai entre excitation et détection est variable.

⁶A résonance de Förster, le transfert dans l'état $|ss'\rangle$ après un temps t est $|\langle\Psi_{ss'}|\Psi(t)\rangle|^2 = \sin^2(2\pi Wt)$, où W est le couplage dipôle-dipôle en MHz. Le transfert est total après $t_0 = \frac{1}{4W}$. Pour un ensemble de paires séparées par une distance aléatoire, les oscillations ne sont pas observées, le signal devrait converger vers un transfert de 50 %.

5.3.2 Décalage spectral observé par spectroscopie de creusement spectral et cohérence de l'interaction dipôle-dipôle

Les résonances de Förster des états $24p_{3/2}$ et $25p_{3/2}$ (bien caractérisées dans l'expérience [Mourachko et al., 1998]) ont été étudiées par spectroscopie de creusement spectral. Nous avons montré au paragraphe 5.2 qu'après excitation d'atomes vers des états $np_{3/2}$ avec un laser pulsé (cf. schéma 5.5) ou avec la méthode d'excitation pulsée-continue avec élargissement par la présence d'ions à l'excitation (cf. schéma 5.1), il est possible de les désexciter efficacement vers l'état $7s$. Compte-tenu du bruit coup à coup des excitations pulsées, il nous a été difficile de bien caractériser la largeur du creusement spectral et les études en densité, tout en montrant un léger élargissement pour les densités les plus grandes n'ont pas amené à une caractérisation quantitative des interactions dipôle-dipôle entre atomes de Rydberg. Bien que l'excitation présentait de multiples avantages, une forte excitation dans des états Rydberg avec un nombre d'ions pouvant être minimisé, nous avons considéré qu'une excitation non monomode ne pouvait pas apporter de résultat, ce qui nous a amenés à développer le schéma d'excitation continu à 3 couleurs (cf. schéma 2.3). Cependant, une observation très intéressante et inattendue a été la possibilité de désexciter très efficacement les atomes dans les états ns et $(n+1)s$ à résonance de Förster, alors que ces états ne sont a priori pas couplés à l'état $7s$ par le laser Ti:Sa utilisé pour la désexcitation. Une explication possible était la possibilité de désexciter les états de paire $|+\rangle$ et $|-\rangle$ lorsqu'est réalisé la spectroscopie de creusement spectral. En balayant la fréquence du laser Ti:Sa, nous avons observé un décalage spectral δ_{sp} systématique entre les fréquences correspondant au creusement spectral maximum pour les états ns et $np_{3/2}$. Celui-ci suggère en fait que la possibilité d'observer la désexcitation des états s et s' au voisinage des résonances de Förster est limitée aux paires d'atomes excités dans l'état de paire $|+\rangle$. Cette désexcitation a été perçue comme est une preuve de la réversibilité des réactions (5.4) et (5.5). Les résultats de ces études sont présentés dans cette partie. Les positions centrales des raies sont mesurées en spectroscopie de creusement spectral, d'abord avec pompage pulsé-continu ou PC (voir schéma 5.2), puis en pompage pulsé (voir schéma 5.5). Une étude temporelle du creusement spectral à résonance de Förster a permis de caractériser dans une certaine mesure la décohérence du système pour les réactions (5.4) et (5.5). Un certain nombre d'hypothèses sont analysées afin d'expliquer les divers résultats expérimentaux obtenus.

5.3.2.1 Mise en évidence du décalage spectral

Etude par creusement spectral après excitation PC

Dans cette expérience, une première impulsion du laser Ti:Sa permet l'excitation à partir du niveau $7s_{1/2}$ vers l'état $24p_{3/2}$ au voisinage de la résonance de Förster. Le nombre d'atomes excités est de l'ordre 150000, soit une densité évaluée précédemment à environ $3-4 \times 10^9$ at/cm⁻³. Après un délai variable, une deuxième impulsion d'une durée d'une microseconde est envoyée pour réaliser le creusement spectral. La figure 5.7 montre la réalisation du creusement spectral lorsqu'on détecte avec les mêmes conditions expérimentales les atomes dans l'état $24p_{3/2}$ et dans l'état $25s$. On rappelle que l'élargissement du spectre à l'excitation permettant de mettre en évidence le creusement spectral est dû à la présence des ions. La démonstration est donc faite qu'une grande partie des atomes transférés dans les états $24s$ et $25s$ à résonance de Förster peuvent être désexcités vers l'état $7s_{1/2}$ (cf Fig. 5.7), jusqu'à

60% des atomes présents initialement dans ces états. Sur la figure 5.7, le creusement spectral de l'état $24p_{3/2}$ est relativement étroit, suggérant que la désexcitation est réalisée principalement lorsque les ions se sont complètement éloignés⁷. Ce résultat n'est pas étonnant puisque le creusement spectral ne peut être réalisé que pour une fréquence identique à l'excitation et à la détection, condition globalement vérifiée uniquement pour un champ parasite nul en raison de la dynamique des ions et du champ électrique, donc à la résonance de la transition $7s_{1/2} \rightarrow 24p_{3/2}$. Une observation importante est que le creusement spectral des états $24s$ et $25s$ apparaît comme systématiquement décalé vers le bleu par rapport au creusement spectral de l'état $24p_{3/2}$. Ce décalage atteint 20 MHz sur les spectres des états $25s$ et $24p_{3/2}$ de la figure 5.7, pris pour un champ électrique 59.11 V/cm à résonance de Förster. La fonction d'ajustement permettant de définir la position centrale du creusement spectral est empirique. Elle est de la forme $N(\nu) = L(\nu) \times (1 - G(\nu))$, où $L(\nu)$ est une fonction lorentzienne définissant le profil de la raie d'excitation alors que $G(\nu)$ est une fonction gaussienne définissant le profil du creusement spectral. L'élargissement du creusement spectral de l'état $25s$ par rapport à celui de l'état $24p_{3/2}$ pourrait être dû au couplage dipôle-dipôle pouvant créer une quasi-bande de niveaux d'énergie. Le décalage spectral pourrait être interprété comme le fait que nous observons uniquement l'état de paire $|+\rangle$, combinaison linéaire des états pp et ss' car celui-ci est décalé vers le bleu du niveau pp dans le schéma de croisement évité à résonance de Förster. La désexcitation des états s et s' serait possible par désexcitation directe d'une paire d'atomes, la composante pp de l'état de paire étant effectivement couplée par le champ électrique du laser à l'état intermédiaire de l'excitation $\frac{1}{\sqrt{2}}(|7s\rangle|24p_{3/2}\rangle + |24p_{3/2}\rangle|7s\rangle)$. Du fait de l'importance du décalage spectral par rapport à la résolution spectrale de la désexcitation (~ 20 MHz), nous allons voir au paragraphe suivant qu'une désexcitation via une transition directement à 2 photons vers l'état $|7s7s\rangle$ est en fait assez probable. Le décalage spectral présenté ici tend à accréditer l'hypothèse que ce sont des paires d'atomes pouvant interagir à résonance de Förster qui sont dépeuplées.

Malgré l'utilisation de la technique de creusement spectral, la présence du nuage d'ions créés par photoionisation avec le laser pulsé reste un inconvénient important. En effet, les quelques 10000 à 50000 ions créés⁸ par le laser pulsé se déplacent dans la direction du champ

⁷Un temps de 800 ns est nécessaire pour que le champ électrique créé par un nuage de 15000 ions et au départ de rayon caractéristique $150 \mu\text{m}$ soit divisé par un facteur 10 au niveau du PMO. Ce calcul est effectué pour un champ statique accélérateur de 59.11 V/cm.

⁸Ce nombre varie beaucoup suivant les expériences en raison de la faible durée de vie du colorant utilisé pour le laser pulsé (Coumarine 450).

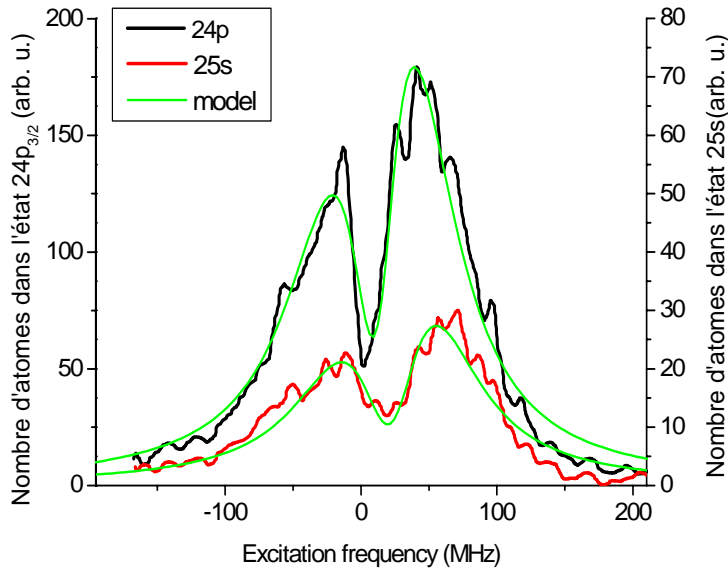


FIG. 5.7 – Creusement spectral des états $24p$ et $25s$ après une excitation PC (Pompage pulsé-continu), en présence d'un champ de 59.11 V/cm, donc à résonance pour la réaction de Förster $24p + 24p \rightarrow 25s + 24s$. L'efficacité du creusement spectral est caractérisée par la profondeur du trou. Les ajustements des courbes expérimentales utilisent une fonction définie de manière empirique (voir texte).

électrique statique et crée un champ électrique parasite⁹, qui rapidement s'oppose au champ électrique statique pendant la première impulsion d'excitation du laser Ti:Sa (voir Fig. 3.8 et les études du chapitre 3). De ce fait, l'excitation est fortement perturbée, d'où les élargissements caractéristiques mais aussi la forte asymétrie des raies d'excitation p vers le bleu (le creusement spectral est décalé vers le rouge par rapport au maximum d'excitation). Comme nous le suggérons au paragraphe 5.3.3, ceci a un effet puisque le champ parasite créé par les ions modifie la position du champ électrique total par rapport à la résonance de Förster et de ce fait les propriétés du transfert résonant d'excitation.

Décalage spectral : étude par creusement spectral après excitation pulsée

Pour améliorer le diagnostic du décalage spectral entre les signaux s et p , l'étude par creusement spectral des résonances de Förster a été réalisée avec le schéma d'excitation pulsée

⁹Le champ parasite moyen ΔF_m créé par les ions suivant l'axe du champ électrique externe est en moyenne donné par :

$$\Delta F_m = \int_0^\infty \pi r^2 \rho(r) \Delta F(r) dr \quad (5.6)$$

Cette expression est établie après avoir effectué une moyenne angulaire. $\rho(r)$ est le profil normalisé de la distribution spatiale des atomes dans l'état fondamental de l'excitation (ici l'état $7s$), $\Delta F(r)$ est le champ parasite supposé être à symétrie sphérique. Seule est considérée la projection du champ parasite suivant l'axe du champ externe (Oz) car nous avons vu dans la section ?? que seule cette composante est significative en champ électrique externe. Finalement, pour un nuage d'ions gaussien de densité au centre $n_i(0)$, ce champ parasite moyen vaut environ :

$$\Delta F_m \sim 0.21 \times \Delta F_{max} = 0.21 \times 2.38 n_i(0) \sigma \sqrt{2} \frac{q_i}{4\pi\epsilon_0} \quad (5.7)$$

soit seulement un cinquième du champ maximum créé par le nuage d'ions. Ce résultat suppose que le nuage d'atomes dans l'état $7s$ et le nuage d'ions sont de même rayon caractéristique. Un nuage de 15000 ions de rayon $\sigma \sim 100 \mu\text{m}$ crée a priori un champ électrique parasite moyen de quelques 0.4 V/cm. Un tel champ électrique parasite peut être responsable d'un élargissement de raie de près de 150 MHz, comme on peut l'observer Fig. 5.7).

permettant l'excitation depuis l'état $6p_{3/2}$. Dans ce cas, l'excitation est quasi instantanée et donc non perturbée par la dynamique des ions. L'étude a été effectuée pour les deux états $24p_{3/2}$ et $25p_{3/2}$ avec des résultats assez similaires. Les résultats de l'étude concernant l'état $25p_{3/2}$ autour de la résonance de Förster (5.5) sont ici reportés. Dans cette expérience, le nombre d'ions n'excède pas 10000 alors que la densité d'atomes excités dans l'état Rydberg est augmentée par un facteur ~ 3 (~ 650000 atomes sont excités par une impulsion du laser pulsé avec une énergie proche de $100 \mu\text{J}$). L'amplitude des transferts d'excitation vers les états $25s$ et $26s$ quelques microsecondes après l'excitation par le laser pulsé est présentée sur la figure 5.9 (b) pour différents champs électriques de part et d'autre de la résonance de Förster. L'amplitude maximum du transfert d'excitation est obtenue pour un champ d'environ 44.08 V/cm . L'impulsion du laser Ti:Sa réalisant le creusement spectral est envoyée juste après l'impulsion du laser pulsé. Elle est d'une durée de quelques $5 \mu\text{s}$ et de puissance 200 mW . Les largeurs spectrales des trous de creusement spectral sont de presque 80 MHz , dues principalement à l'impulsion longue du laser Ti:Sa (élargissement temporel).

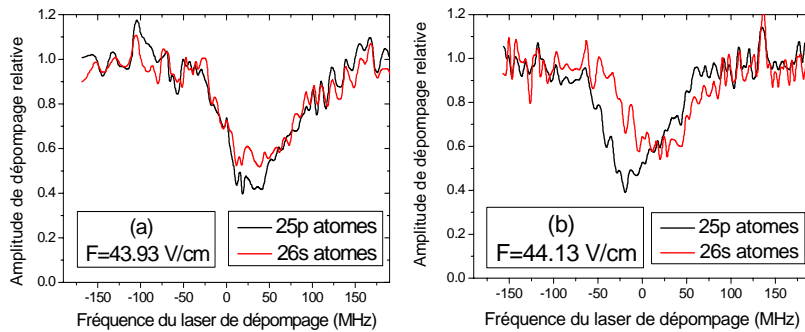


FIG. 5.8 – Creusement spectral des états $25p$ et $26s$. L'excitation (pompage pulsé) est effectuée pour deux champs électriques, de part et d'autre de la résonance de Förster $25p + 25p \rightarrow 26s + 25s$ ((a) 43.93 V/cm et (b) 44.13 V/cm). La fréquence du laser de dépompage (Ti:Sa) est rapportée à 0 au centre de la raie. Les signaux p et s sont normalisés à un pour un signal avant dépompage.

Des décalages importants sont encore observés entre les positions centrales des raies de creusement spectral d'atomes dans les états $26s$ et $25p_{3/2}$ de part et d'autre de la résonance de Förster. La figure 5.9 (a) donne les positions des raies de dépompage s et p autour de la résonance de Förster (obtenue pour un champ électrique $F_0 = 44.08 \text{ V/cm}$). Ce qu'on voit apparaître est qu'effectivement le creusement spectral de l'état $26s$ semble être efficace uniquement sur la partie répulsive du croisement évité par l'interaction dipôle-dipôle à résonance de Förster. Les spectres correspondant, tracés sur la figure 5.8, mettent en évidence un décalage de presque 50 MHz à droite de la résonance de Förster. Ainsi, seul serait détecté l'état répulsif $|+\rangle$ d'une paire d'atomes, combinaison linéaire symétrique ou antisymétrique¹⁰ des états $|pp\rangle$ et $|ss'\rangle$. Un ajustement à partir des données expérimentales du niveau d'énergie de l'état $|+\rangle$, $E_+ = \frac{\Delta}{2} \left(1 + \sqrt{1 + \frac{W^2}{(\Delta/2)^2}} \right)$ avec Δ le décalage d'énergie entre les niveaux pp et ss' dépendant du champ électrique, permet de trouver une interaction de l'ordre de 15 MHz (cf Fig. 5.9 (a)). Il est évidemment intéressant de se poser la question de la justification d'un tel ajustement. Si la désexcitation d'une paire d'atomes excitée au départ dans l'état $|+\rangle$ était réalisée vers l'état intermédiaire $|\Psi_i\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|7s\rangle|24p_{3/2}\rangle + |24p_{3/2}\rangle|7s\rangle)$ comme cela a été suggéré au paragraphe

¹⁰(Suivant l'angle entre l'axe internucléaire de la paire d'atomes et l'axe du champ électrique, l'état $|+\rangle$ est soit symétrique, soit antisymétrique, de même pour l'état $|-\rangle$).

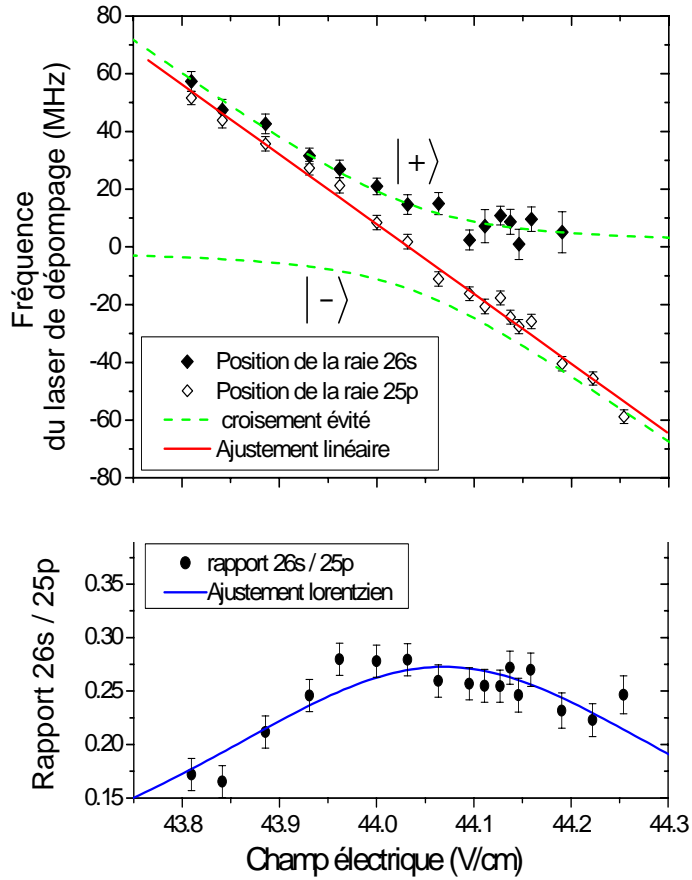


FIG. 5.9 – (a) Positions des minima dans les spectres 26s et 26p (cf Fig. 5.8) pour différentes valeurs du champ électrique de part et d'autre de la résonance de Förster. La droite en trait plein est un ajustement linéaire des positions de la raie 25p, les courbes en pointillé sont les courbes de potentiel $V_+(F)$ et $V_-(F)$ d'un modèle de croisement évité à 2 niveaux (voir texte) permettant d'ajuster les positions des raies 26s sur la partie répulsive. (b) Nombre d'atomes désexcités depuis l'état 26s relativement au nombre d'atomes désexcités depuis l'état 25p en fonction du champ électrique.

5.3.2.1, il est certain que le croisement serait observé de façon différente (l'état $|\Psi_i\rangle$ est en effet sensible au décalage Stark, la fréquence de la transition $|+\rangle \rightarrow |\Psi_i\rangle$ devrait augmenter à droite de la résonance). Il est en fait probable que sur l'aile des champs forts de la résonance de Förster, la détection de l'état $|+\rangle$ soit le fait d'une transition à deux photons vers l'état fondamental $|7s_{1/2}, 7s_{1/2}\rangle$. Ceci justifie d'ailleurs mieux a posteriori la nécessité expérimentale d'utiliser de fortes puissances pour réaliser la détection. Le décalage spectral entre les résonances de creusement spectral des états s et p ne dépend pas de la densité à droite de la résonance de Förster, ce qui justifie le fait que nous mesurons le niveau d'énergie de l'état $|+\rangle$ variant peu en champ électrique. Il n'est par contre pas possible de conclure pour la désexcitation en présence d'un champ électrique $F < F_0$ mais il est possible (voire probable) qu'elle soit effectuée à un photon vers l'état intermédiaire $|\Psi_i\rangle$. Finalement, la mesure de 15 MHz n'est pas exactement la mesure de l'interaction possible entre deux atomes. Différentes hypothèses seront étudiées pour donner l'explication du décalage δ_{sp} . Une des explications donnée au paragraphe 5.3.3 est liée à la présence de forces dipolaires attractives. Lorsque deux atomes sont excités dans l'état de paire $|-\rangle$, ils exercent une force mutuelle attractive qui les rapproche. Si les forces dipolaires sont suffisantes, elles pourraient amener les atomes à collisionner. Un phénomène similaire à la prédissociation serait également possible avec un couplage entre l'état $|-\rangle$ et d'autres potentiels moléculaires lorsque les atomes sont suffisamment rapprochés. L'état $|+\rangle$ est quant à lui répulsif et serait moins couplé à l'environnement des autres états moléculaires. Une dernière hypothèse est simplement que la non observation de l'état $|-\rangle$ est peut être seulement un problème de détection. Avant de développer plus en détail les différentes interprétations possibles, les évolutions temporelles du décalage et du creusement spectral sont étudiées au paragraphe suivant.

Dynamique et cohérence de l'interaction dipôle-dipôle

Le décalage spectral observé par spectroscopie de creusement spectral suggère que nous détectons l'état de paire $|+\rangle$ pour chaque paire d'atomes interagissant à résonance de Förster. Cette étude peut en quelque sorte renseigner sur la cohérence locale du système complet d'atomes. Il est intéressant de savoir dans quelle mesure ces réactions de Förster (5.4) ou (5.5) sont également réversibles, donc d'étudier la cohérence de ces réactions.

Les résultats expérimentaux des Fig. 5.10 et 5.11 montrent que cette cohérence est limitée. Une première expérience est réalisée sur la résonance de Förster (5.4) avec le schéma d'impulsions 5.2, dans lequel est utilisé un délai Δt_P variable entre l'impulsion de pompage PC (durée $\Delta t_1 = 300$ ns et puissance $P_{Tis_a} \sim 200$ mW) et l'impulsion de désexcitation (durée $\Delta t_2 = 1$ μ s et puissance $P_{Tis_a} \sim 200$ mW). La probabilité de désexcitation des atomes présents dans les états s et s' chute rapidement. Cette désexcitation devient quasiment inefficace après un temps de l'ordre de 1 μ s. Ces résultats sont comparés à une expérience de pompage pulsé-dépompage (cf Fig. 5.11) conduisant à une observation similaire pour la résonance de Förster (5.5).

Une interprétation possible de cette expérience a été décrite en introduction de ce chapitre lorsque nous avons présenté l'expérience [Anderson et al., 2002]. La cohérence de l'interaction dipôle-dipôle entre deux atomes proches à résonance de Förster est rapidement "détruite" par les interactions avec l'environnement et notamment les réactions d'"échange" d'excitations $sp \leftrightarrow ps$ et $s'p \leftrightarrow ps'$ des produits s et s' de la réaction (5.5) dans l'environnement des autres atomes. La migration de des excitations s et s' à travers tout l'échantillon rend probablement le recouplage vers l'état Ψ_i beaucoup moins efficace et peut expliquer les temps rapides de perte de cohérence. Nous développons ce point au paragraphe 5.3.3 où nous discutons notamment le fait que les forces répulsives ne jouent qu'un rôle mineur lorsqu'une paire d'atomes est excitée

dans l'état de paire répulsif. Une question est de savoir si le terme "étude de cohérence" est bien adapté dans notre expérience. En effet, le système de deux atomes proches est cohérent tant que la population oscille entre les états pp et ss' pour une excitation initiale dans l'état pp [Robicheaux et al., 2004]. Si l'état $|-\rangle$ est couplé à d'autres états moléculaires, les oscillations ne sont plus possibles et le système a normalement complètement perdu sa cohérence bien que nous puissions encore désexciter les paires d'atomes dans l'état $|+\rangle$. Nous verrons cependant dans la section 5.3.3 que la non observation de l'état $|-\rangle$ est peut être seulement un problème de détection. Dans ces conditions, on peut dire que la décroissance observée du signal de désexcitation de l'état $|+\rangle$ renseigne sur la cohérence locale de chaque paire (bien qu'elle ne soit pas une étude proprement dit de la cohérence, au sens où nous n'étudions pas les oscillations de Rabi possibles entre les populations dans les états ss' et pp pour une paire d'atome donnée).

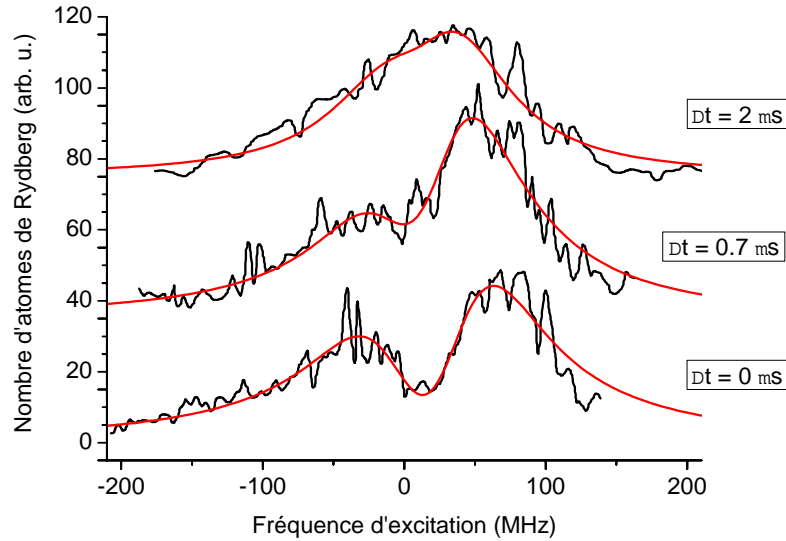


FIG. 5.10 – Dépendance temporelle de l'efficacité de dépompage de l'état 25s à résonance de Förster (l'état 25s est un produit de la réaction $24p + 24p \rightarrow 24s + 25s$, résonante pour $F=59.11$ V/cm). Le dépompage est réalisé suivant les schémas des Fig. 5.1 et 5.2. Le temps d'excitation avec le laser Ti:Sa est $\Delta t_1 = 300$ ns, le temps de dépompage $\Delta t_2 = 1 \mu s$. Le délai Δt_p entre les deux impulsions de pompage-dépompage est variable.

Il est finalement raisonnable d'affirmer que la désexcitation des états ns et $(n+1)s$ a permis de mettre en évidence l'état $|+\rangle$ du croisement évité à résonance de Förster. La possibilité d'une désexcitation efficace de l'état $|+\rangle$ est rapidement perdue et cela semble être une signature de la cohérence du système. Cependant, l'interprétation exacte de ces expériences n'a toujours pas été donnée. Dans le paragraphe suivant, nous analysons les divers mécanismes pouvant rendre compte des résultats obtenus.

5.3.3 Interprétations : forces et environnement

Détection et suivi adiabatique

Pour interpréter tous ces résultats, différentes hypothèses doivent être étudiées, dont notamment les rôles possibles de la détection par ionisation par champ électrique. Pour une paire d'atomes à résonance de Förster, le suivi des niveaux lorsqu'on applique une rampe de champ électrique nécessaire à l'ionisation par champ pour la détection est plus ou moins diabatique ou adiabatique (cf Fig. 5.12). S'il y avait un suivi essentiellement diabatique des niveaux, les signaux détectés s et p proviendraient directement des états ss' et pp . Par contre, si le suivi

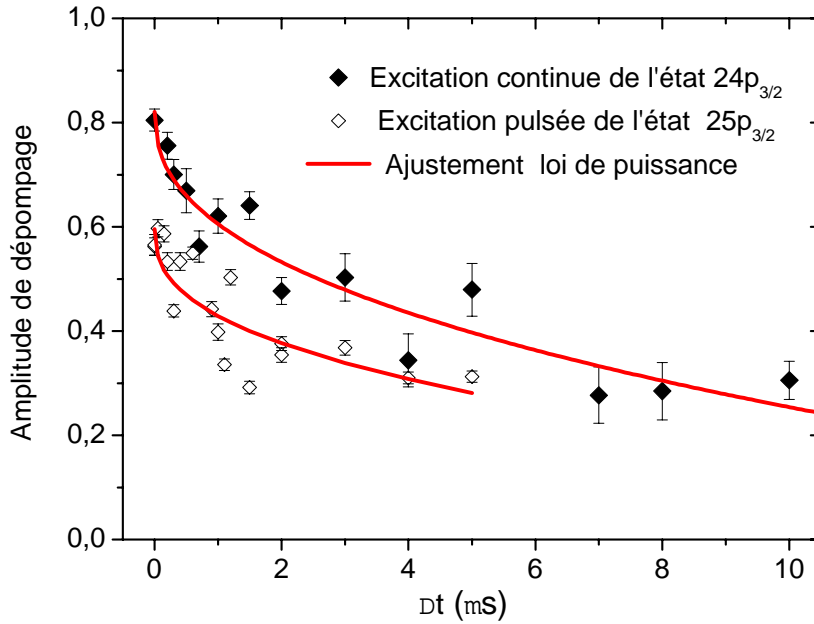


FIG. 5.11 – Evolution temporelle de l’amplitude de dépompage après excitation suivant les deux schémas décrits Fig. 5.1 et 5.5 (des états 25p et 24p respectivement). Comme sur la Fig. 5.10, Le délai Δt_p entre les deux impulsions de pompage-dépompage est variable. La diminution de l’amplitude de dépompage (donc l’efficacité de dépompage) diminue rapidement lorsque le délai entre les deux impulsions augmente (l’amplitude de dépompage est plus faible dans le cas de l’excitation pulsée, car les deux états $|m_j| = 1/2$ et $|m_j| = 3/2$ sont excités simultanément, mais seul l’état $|m_j| = 1/2$ est désexcité par le laser Ti:Sa.

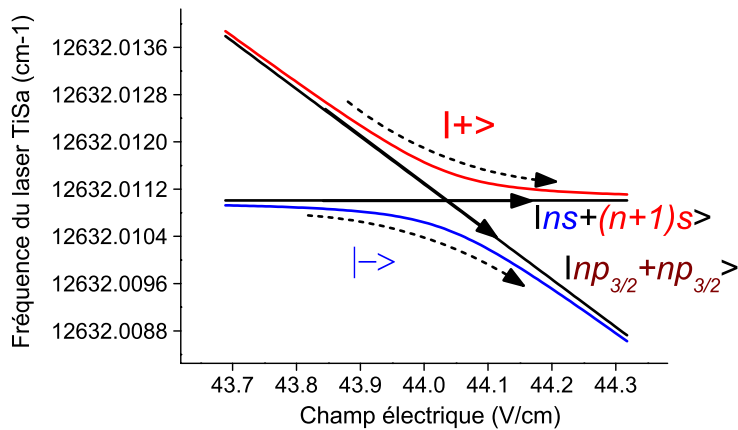


FIG. 5.12 – Schéma du croisement évité de la résonance de Förster de l’état $25p_{3/2}$. On reconnaît les états non perturbés $|ns(n+1)s\rangle$ et $|np_{3/2}np_{3/2}\rangle$ ainsi que les nouveaux états propres en présence d’interaction dipôle-dipôle, $|+\rangle$ et $|-\rangle$. Les flèches pleines indiquent que le suivi du croisement est diabatique au cours de l’ionisation. Les flèches en tiretés indiquent le suivi adiabatique du croisement.

était essentiellement adiabatique, les signaux s et s' détectés proviendraient uniquement de l'état $|+\rangle$, le signal p provenant de l'état $|-\rangle$. Avec cette dernière hypothèse, l'état $|-\rangle$ serait éventuellement desexcité, mais cette désexcitation ne serait pas observée pour le signal s détecté. Il est notable que deux atomes excités sur l'état $|-\rangle$ tendent à se rapprocher sous l'effet d'une force dipolaire attractive. L'option d'un passage adiabatique lors de la détection doit donc être envisagée sérieusement. Les résultats d'un calcul assez simple sont présentés dans le paragraphe ci-dessous. Il est montré qu'après un certain temps, quelques microsecondes, un certain nombre de paires d'atomes (notamment celles qui sont initialement assez proches pour contribuer de façon importante aux signaux s et s') sont suffisamment rapprochées pour que le couplage dipôle-dipôle entre ces paires d'atomes proches permettent un passage adiabatique du croisement évité. Une subtilité également discutée dans la note 12 est le fait que l'état d'une paire d'atomes juste après l'excitation est une superposition cohérente des états $|+\rangle$ et $|-\rangle$.

Expérimentalement, le champ électrique d'ionisation est balayé assez lentement à travers le croisement évité de la résonance de Förster. Le champ électrique d'ionisation utilisé varie lentement au départ, de la forme $F(t) = b(e^{t/t_0} - 1)$ avec une pente à l'origine de $b/t_0 = 100 \text{ V/cm}/\mu\text{s}$ (et $t_0 = 1 \mu\text{s}$) pour la détection de l'état $24p_{3/2}$ par exemple. Un calcul Landau-Zener exact¹¹ montre que la "transition" entre passage diabatique et passage adiabatique a lieu lorsque l'interaction atteint quelques 10 MHz pour une excitation à résonance de Förster (ce calcul ne tient pas compte du mouvement des atomes au cours de l'ionisation par champ). Pour une excitation sur l'aile droite de la résonance de Förster, le signal provient en grande partie de l'état $|+\rangle$. Par contre, pour une excitation à gauche de la résonance de Förster, la non observation de l'état $|-\rangle$ nécessite une plus grande interaction, plus de 20 MHz au moins (le facteur déterminant est la vitesse à laquelle est traversé le croisement évité dû à l'interaction dipôle-dipôle). Pour l'étude en excitation pulsée de la résonance de Förster de l'état $25p_{3/2}$, la densité atomique est de l'ordre de $\sim 6.5 \times 10^9 \text{ at/cm}^{-3}$ (cette densité correspond à l'excitation de 600000 atomes par le laser pulsé dont le waist au niveau du PMO est supposé être de $250 \mu\text{m}$). Les atomes sont alors séparés en moyenne par la distance $\sim 0.9R_d \sim 3 \mu\text{m}$ où R_d est le rayon de Wigner-Seitz. L'interaction possible entre atomes séparés par la distance internucléaire moyenne n'excède donc pas 2 MHz, même à résonance de Förster pour l'état $25p_{3/2}$. Cependant, des paires très proches peuvent être excitées avec la méthode d'excitation pulsée. Pour des atomes séparés de seulement $1 \mu\text{m}$, cette interaction est voisine de $W(R) \sim \frac{\mu_{sp}\mu_{s'p}}{R^3} \sim 75 \text{ MHz}$. Bien sûr, juste après l'excitation, très peu d'atomes ont un plus proche voisin situé à une si petite distance : seuls 2.5 % d'entre eux.

Cela suggère cependant de considérer de façon attentive l'effet des forces dipolaires. Les forces dipolaires tendent à rapprocher deux atomes proches excités dans l'état de paire $|-\rangle$ attractif alors que par contre l'interaction est répulsive pour une excitation sur l'état $|+\rangle$. Des paires d'atomes excités sur l'état attractif à gauche de la résonance de Förster pourraient ainsi avoir tendance à passer plus adiabatiquement le croisement évité que des paires excitées sur l'état répulsif. Une étude des forces dipolaires à résonance de Förster (pour l'état $23p_{3/2}$) a déjà été réalisée dans l'article [Fioretti et al., 1999]. Cet article fait état d'une variation forte du nombre d'atomes s détectés pour des excitations sur la branche répulsive ou sur la branche attractive. Les ordres de grandeur des temps de collision sous l'effet des forces dipolaires ont été évalués au chapitre 4.4.5 pour interpréter les collisions ionisantes observées lorsque l'état de paire attractif est excité. Une différence importante dans l'expérience décrite dans cette section est la possibilité d'exciter des paires très proches fortement couplées par l'interaction dipôle et réagissant donc quasiment instantanément. Nous reprenons exactement le même calcul¹² en considérant l'état $25p_{3/2}$ au voisinage de résonance de Förster. Pour une excitation à réso-

¹¹Le résultat varie de façon importante par rapport au calcul habituel de la probabilité de passage à travers un croisement évité (cf formule (1.31)), lorsque le champ électrique "de départ" est proche du champ électrique de la résonance de Förster. Pour calculer la probabilité de transition, nous utilisons simplement le résultat de l'article [Rubbmark et al., 1981].

¹²Rappelons le calcul d'un ordre de grandeur du temps de déplacement sous l'effet des forces dipolaires. $v(R)$

nance de Förster, on trouve avec ce calcul que des paires d'atomes séparées par une distance d'environ $3 \mu\text{m}$ au départ se retrouvent séparées de $1.7 \mu\text{m}$ après $5 \mu\text{s}$, l'interaction étant alors de quelques 15 MHz. Ce temps est plutôt de $8 \mu\text{s}$ si le champ électrique est de 0.06 V/cm plus faible que le champ de la résonance de Förster. Il est fort bien possible que les forces dipolaires empêchent dans une certaine mesure l'observation de l'état $|-\rangle$, d'autant que la détection n'est réalisée qu'après plus de $5 \mu\text{s}$ dans l'expérience de spectroscopie par creusement spectral après excitation pulsée. La question peut se poser également pour des paires d'atomes excitées sur l'état répulsif $|+\rangle$. Deux atomes séparés initialement de $1.7 \mu\text{m}$ à $2.7 \mu\text{m}$ se retrouvent à une distance de l'ordre de $3 \mu\text{m}$ après environ $5 \mu\text{s}$. Les atomes s'éloignent donc relativement lentement l'un de l'autre (l'accélération due à la force répulsive diminue rapidement à mesure que les atomes s'éloignent), cela affecte nécessairement moins la détection.

La méthode de détection des atomes par ionisation par champ électrique est potentiellement une bonne raison pour observer de façon prépondérante la composante $|+\rangle$ de l'état ss' pour un certain nombre de paires d'atomes. Cette explication semble cependant trop radicale car il est probable que toutes les paires ne suivent pas toutes un chemin adiabatique lors de l'ionisation. Un calcul plus complet devrait être entrepris pour déterminer l'effet exact des forces dipolaires pendant la détection¹³. On peut imaginer que la non mise en évidence de l'état $|-\rangle$ pourrait être liée aussi à un mélange des niveaux s et p avec les niveaux de la multiplicité, hypothèse que nous étudions au paragraphe suivant.

Mélange avec des états de n et l différents

Les temps de collision entre atomes restent relativement longs, plusieurs microsecondes est la vitesse relative du mouvement entre les deux atomes séparés d'une distance R :

$$v(R) = \sqrt{\frac{2}{\mu} |U(R) - U(R_0)|} \quad (5.8)$$

où R_0 est l'espacement internucléaire de départ, $\mu = \frac{mCs}{2}$ est la masse relative des deux atomes et $U(R) = \frac{\Delta}{2} \left(1 + \sqrt{1 + \left(\frac{W(R)}{\Delta/2} \right)^2} \right)$ pour l'état attractif, avec $W(R) \sim \frac{\sqrt{2}\mu_{sp}\mu_{s'p}}{R^3}$. Le temps nécessaire pour que la distance interatomique entre les deux atomes passe de R_0 à R_f est :

$$T(R_f) = \int_{R_0}^{R_f} \frac{1}{v(R)} dR \quad (5.9)$$

Le mouvement des atomes sous l'effet des forces dipolaires doit en fait être décrit de manière plus rigoureuse et bien tenir compte des conditions initiales, notamment lorsque l'état initial est une superposition des états $|+\rangle$ et $|-\rangle$. Pour une excitation à résonance de Förster, l'état du système peut s'écrire en première approximation :

$$\Psi(R, t) = \frac{1}{\sqrt{2}} (\Psi_+(R, t)|+\rangle + \Psi_-(R, t)|-\rangle) \quad (5.10)$$

où $|\pm\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|pp\rangle + |ss'\rangle)$. L'état du système $\Psi(t)$ est une superposition des deux états possibles, attractifs ou répulsifs. Chacune des composantes Ψ_{\pm} vérifie séparément :

$$i \frac{\partial \Psi_{\pm}}{\partial t} = \left[\frac{P^2}{2\mu} \pm W \right] \Psi_{\pm}(R, t) \quad (5.11)$$

où $\frac{P^2}{2\mu}$ est le hamiltonien d'énergie cinétique. La probabilité de détecter l'état ss' est $P_{ss'}(t) = \frac{1}{2} (1 + \text{Re}[\langle \Psi_+(t) | \Psi_-(t) \rangle])$. Alors que le paquet d'onde se localise en deux positions distinctes de l'espace, le recouvrement entre les deux composantes $\langle \Psi_+(t) | \Psi_-(t) \rangle$ devient nul au cours du temps. Dans la limite des faibles mouvements $\Psi_-(R, t)$ et $\Psi_+(R, t)$ sont indépendants de R mais ceci n'est pas notre cas [Robicheaux et al., 2004].

¹³L'étude devrait ajouter des effets à N corps. Nous avons notamment vu que l'ajout d'un troisième atome élargit le croisement évité par l'interaction dipôle-dipôle et que les couplages d'échange $sp \leftrightarrow ps'$ introduisent d'autres croisements évités (cf section 1.3.4.2).

pour la majeure partie des paires d'atomes et il n'est pas évident que les forces dipolaires attractives puissent conduire à une collision. Aucun ion issu de collision n'a en particulier pu être observé. Une redistribution vers d'autres états $n'l'$ que ceux excités au départ n'a pas non plus été observée. On aurait pu penser à un couplage de l'état de paire $|-\rangle$ à d'autres états moléculaires attractifs ou répulsifs. Notamment, on peut par exemple imaginer des couplages entre les composantes ss' et pp de l'état $|-\rangle$ avec des états du type $|n'l', n''l''\rangle$ responsable d'un mélange de l et d'un mélange de n (ceci est possible car les niveaux $25s$ et $26s$ sont situés à l'intérieur des multiplicités d'états $n = 28$ et $n = 29$ respectivement¹⁴). D'autres couplages moléculaires sont également possibles. Une interprétation des transferts d'excitation (hors des situations résonantes) a par exemple été donnée en termes de mouvement dans des potentiels couplés¹⁵ [Zanon et al., 2002, de Oliveira et al., 2003]. A résonance de Förster, les mouvements attractifs induits par les forces dipolaires sont assez rapides pour rapprocher les atomes et pour que les couplages avec d'autres états moléculaires soient possibles. Une description complète des niveaux moléculaires et des couplages possibles devrait être entreprise pour déterminer les possibilités de tels couplages.

Quelques particularités des états moléculaires à résonance de Förster ne sont pas à exclure non plus, par exemple liées à la présence du couplage Stark $np_{3/2} - nd_{5/2}$ et donc de l'interaction dipôle-dipôle en champ électrique. Cependant, l'effet reste faible et n'a probablement pas de lien propre avec les observations expérimentales de ce chapitre¹⁶.

Forces dipolaires et migration de l'excitation

Le phénomène de diffusion des excitations s et s' restreint probablement l'interprétation à deux corps que nous avons donnée pour expliquer par exemple l'influence possible de la détection sur l'observation du décalage spectral δ_{sp} . Nous savons en effet que les réactions de migration $sp \rightarrow ps$ et $ps' \rightarrow s'p$ sont importantes notamment sur les ailes de la résonance parce qu'elles sont résonantes quelque soit le champ électrique et permettent ainsi une diffusion rapide des produits de la réaction de transfert $pp \rightarrow ss'$ d'une paire d'atomes proches. Retournée à l'état pp après diffusion, cette paire d'atomes réagit à nouveau rapidement. Finalement, le transfert d'excitation au sein d'un gaz d'atomes de Rydberg est efficace sur une grande plage de champs électriques autour de la résonance de Förster¹⁷. Après diffusion, les excitations s

¹⁴Pour le champ électrique autour de résonance de Förster ($F=44.06$ V/cm), les états s traversent les multiplicités (cf par exemple le diagramme Stark 1.3), chaque croisement est légèrement évité car l n'est pas un bon nombre quantique en champ électrique. La spectroscopie des premiers croisements a été effectuée par les auteurs de l'article [Nosbaum et al., 1995] pour les états $n = 24, 25$ et 26 du césium.

¹⁵De la même façon, de tels couplages permettent de comprendre les collisions avec changement de structure fine dans les pièges magnéto-optique [Gallagher and Pritchard, 1989]. Les potentiels à très longue distance [Boisseau et al., 2002, Singer et al., 2005] dont le terme attractif est en $\frac{C_6}{R^6}$ permettent de comprendre les transferts observés (par exemple pour des collisions du type $pp \rightarrow ss'$ étudiées très loin des résonances de Förster). A chaque vibration du système dans le potentiel à longue distance, la molécule a une certaine probabilité de changer d'états moléculaire.

¹⁶De fait, les résonances de Förster étudiées dans ce chapitre sont obtenues pour un couplage Stark caractérisé par un paramètre $\tan^2 \theta$ de l'ordre de un (voir la définition au paragraphe 1.3.2.1). Le couplage correspondant $W_F \sim \frac{1}{2} \frac{\mu_{pd}^2 (1 - 3 \cos^2 \Theta)}{R^3}$, modifie quelque peu le croisement évité. Suivant l'angle Θ , le croisement évité est soit légèrement déplacé vers les champs électriques faibles, soit déplacé vers les champs électriques élevés.

¹⁷Une question pourrait être de savoir si le transfert d'excitation peut être plus efficace lorsque les paires d'atomes sont excités dans l'état $|+\rangle$ que dans l'état $|-\rangle$. Les forces dipolaires répulsives permettent dans une certaine mesure un couplage plus fort à l'environnement. Cependant, il a déjà été mentionné au paragraphe 5.3.3 que les mouvements de répulsion restent limités et de fait ne jouent probablement qu'un rôle limité à temps courts (le transfert d'excitation est effectif durant les 500 premières nanosecondes). La composante $|-\rangle$ de l'état de paire excité pourrait être couplé à d'autres potentiels, pouvant par cet effet limiter ainsi l'efficacité de diffusion, mais là encore les temps de transfert sont trop courts pour que cela puisse vraiment avoir un effet.

et s' n'appartiennent pas forcément à un état de paire mais peuvent être délocalisées sur un grand ensemble d'atomes. Il est ainsi probable¹⁸ que la diffusion soit à l'origine de la perte rapide de la possibilité d'observer l'état $|+\rangle$ sur la figure 5.11. Alors que les excitations s et s' sont diffusées dans l'échantillon, leur désexcitation laser est beaucoup plus difficile, l'état de paire sp n'étant pas couplé à l'état intermédiaire de désexcitation.

Comparaison avec l'excitation continue haute résolution

Au chapitre 4.4.1.1 (notamment en page 192), il avait été spécifié que pour une excitation laser à haute résolution (schéma d'excitation à 3 couleurs), le décalage spectral δ_{sp} était faible (positif à gauche de la résonance de Förster, négatif à droite), à temps courts. Le décalage δ_{sp} reste identique en excitation continue avec un long délai entre excitation et détection pour la résonance de Förster $38p_{3/2}$. Les décalages à temps courts pour l'excitation de l'état $25p_{3/2}$ au voisinage de résonance de Förster sont également différents de ce qui a été présenté dans le paragraphe précédent. Ceci est raisonnable pour une excitation haute résolution. Pour un champ plus petit que le champ électrique de la résonance de Förster, seul l'état $|+\rangle$ est excité. Pour un champ plus élevé, seul l'état $|-\rangle$. Il avait par contre été noté que la raie d'excitation s en champ électrique était asymétrique du côté de l'état $|+\rangle$. Nous pouvons tout à fait suggérer que cet effet est similaire à celui observé dans ce chapitre. L'asymétrie pourrait être notamment due à la détection, des paires d'atomes excités dans l'état $|-\rangle$ loin sur l'aile droite (champs forts) de la résonance de Förster ayant peu de chance d'être détectées. Les études présentées dans ce chapitre utilisent des excitations soit élargies par la présence des ions et par puissance pour ce qui est de l'excitation PC, soit simplement large bande pour ce qui est de l'excitation pulsée. Ceci explique que les états $|+\rangle$ et $|-\rangle$ sont tous deux accessibles à l'excitation hors résonance et qu'on puisse observer l'état $|+\rangle$ sur l'aile des champs forts des résonances de Förster.

Remarque concernant la présence d'un décalage à l'excitation

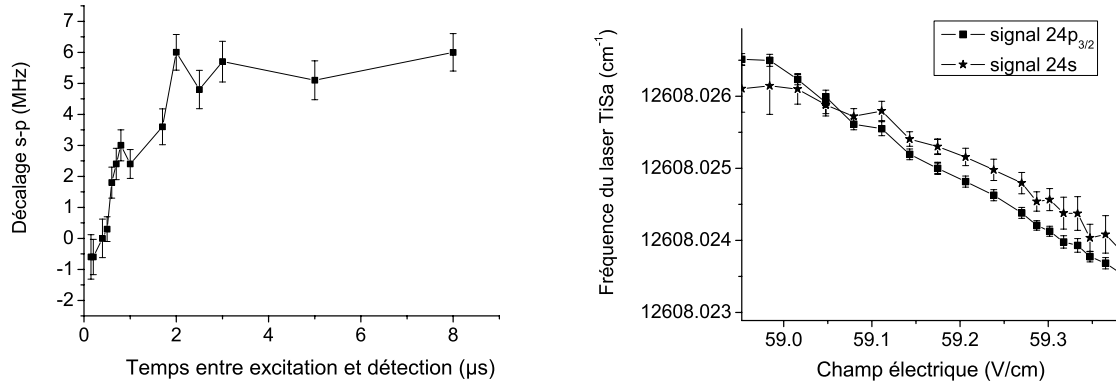
Dans ce paragraphe, nous essayons d'évaluer la dynamique des ions pour montrer qu'elle n'est pas responsable des observations précédentes dans le cas de l'excitation PC (cf Fig. 5.1). Précisons auparavant que ces ions ne sont pas impliqués dans l'observation du décalage spectral δ_{sp} par spectroscopie de creusement spectral observé dans le cas de l'excitation pulsée. En effet, le décalage spectral δ_{sp} est "quasiment" indépendant du délai entre l'excitation et la désexcitation par le laser Ti:Sa pour une excitation à résonance de Förster (seul l'état $|+\rangle$ étant détecté), alors que le nuage d'ions quitte rapidement la zone d'interaction avec les atomes¹⁹. Il est par ailleurs indépendant de la densité pour une excitation sur l'aile des champs élevés de la résonance de Förster, ce qui confirme bien qu'on observe l'état $|+\rangle$ (le décalage δ_{sp} est alors principalement déterminé par la différences d'énergie entre les niveaux ss' et pp). Par ailleurs, la présence des ions ne permettrait pas de comprendre la "disparition" de l'état $|-\rangle$ dans le processus de creusement spectral. L'excitation est en effet instantanée en excitation pulsée (avec un nombre d'ions moindre que dans les expériences avec excitation pulsé-continue) et l'état excité au départ est l'état pp pour une paire d'atomes, superposition cohérente des états $|+\rangle$ et $|-\rangle$. L'état $|-\rangle$ devrait être observé, notamment à résonance de Förster et à gauche de la résonance de Förster, là où son énergie dépend peu du champ électrique statique et donc peu d'un éventuel champ électrique parasite.

¹⁸La même conclusion est obtenue dans l'article [Robicheaux et al., 2004].

¹⁹Le décalage δ_{sp} est identique plus d'une microseconde après l'excitation pulsée. Cette étude a été réalisée avec l'état $25p_{3/2}$ à 44.03 V/cm, donc sur la résonance de Förster.

Les ions sont cependant présents à l'excitation dans le schéma d'excitation PC (cf Fig. 5.1), et il peut être intéressant d'observer leur effet au voisinage d'une résonance de Förster. C'est ce que nous nous proposons de faire dans ce paragraphe. La dynamique du transfert d'excitation a été étudiée au paragraphe 5.3.1 en comparant les amplitudes maximales des raies d'excitation correspondant aux signaux s et p lorsque la fréquence du laser Ti:Sa est balayée. Nous revenons dans ce paragraphe sur cette expérience consistant à réaliser une excitation vers l'état $24p_{3/2}$ suivant le schéma d'excitation PC (impulsion d'excitation de 300 ns avec le laser Ti:Sa). Un léger décalage spectral (δ_{sp}) est en fait présent entre les positions centrales des raies d'excitation s et p . Ce décalage varie au cours du temps en fonction du délai entre excitation et détection : quasi nul pour une excitation à temps courts à résonance de Förster ($F_0=59.11$ V/cm pour l'état $24p_{3/2}$), le décalage augmente rapidement pour atteindre 5 MHz après une microseconde sur la figure 5.13(a). Autrement dit les spectres d'excitation s se décalent vers le bleu des spectres d'excitation p .

Sur l'aile des champs faibles de la résonance de Förster (gauche), le décalage est négatif à temps courts (vers le rouge des spectres d'excitation p) mais progressivement les spectres se décalent vers le bleu. Sur l'aile droite de la résonance de Förster (champs forts), le décalage est positif à temps courts, il reste positif et semble même augmenter à temps plus longs. Les positions des fréquences de résonance des spectres d'excitation $24s$ et $24p_{3/2}$ sont reportées en fonction du champ électrique autour de la résonance de Förster de l'état $24p_{3/2}$ sur la figure 5.13(b). Le délai entre excitation et détection est de 1 μ s. On peut remarquer la dissymétrie des décalages δ_{sp} de part et d'autre de la résonance de Förster ($F_0 = 59.11$ V/cm). On notera aussi le fait que le décalage est très différent de celui obtenu par la technique de creusement spectral dans le cas de l'excitation pulsée (cf Fig. 5.11).



(a) Décalage spectral entre les positions centrales des raies d'excitation $24s$ et $24p_{3/2}$ après un délai variable entre l'excitation laser et la détection. Cette étude est réalisée à résonance de Förster ($F_0=59.11$ V/cm) avec le schéma d'excitation pulsé-continu (voir texte).

(b) Décalage spectral entre les positions centrales des raies d'excitation $24s$ et $24p_{3/2}$ après un délai d'une microseconde entre l'excitation laser et la détection pour différents champs électriques.

FIG. 5.13 – Analyse des spectres d'excitation pulsée-continue de l'état $24p_{3/2}$.

La présence du nuage d'ions créés par photoionisation avec la première impulsion du laser à colorant pulsé pourrait être à l'origine du décalage spectral observé ici, notamment en raison de leur dynamique pendant

l'excitation. De 10000 à 50000 ions sont créés lors de cette expériences²⁰. Le nuage d'ions se déplace dans la direction du champ électrique statique et crée un champ électrique parasite, qui rapidement s'oppose au champ électrique statique (voir Fig. 3.8 et les études du chapitre 3). A temps courts, i. e. lorsque le nuage d'ions ne s'est pas encore déplacé, le champ inhomogène créé par les ions permet une excitation vers le rouge de la transition $7s \rightarrow 24p_{3/2}$ (champ électrique parasite dans le même sens que le champ électrique statique au départ), ceci ne concernant que les atomes situés à droite dans le PMO sur la figure 3.8. Pour une excitation à gauche de la résonance de Förster (i. e. en présence d'un champ électrique statique F vérifiant $F < F_0$), ces atomes voient de fait un champ électrique décalé vers le champ électrique F_0 correspondant à la résonance de Förster. Un transfert d'excitation rapide vers les états s et s' peut avoir lieu à temps courts pour une excitation vers le rouge de la transition $7s \rightarrow 24p_{3/2}$. Ensuite, à mesure que le nuage d'ions s'éloigne, l'excitation dans l'état p devient prépondérante vers le bleu de la transition $7s \rightarrow 24p_{3/2}$. Le nombre d'atomes p excités étant plus important pour une excitation vers le bleu de la transition $7s \rightarrow 24p_{3/2}$, le taux de transfert d'excitation est finalement beaucoup plus important pour une excitation vers le bleu que vers le rouge. Ceci explique en partie pourquoi le transfert d'excitation vers les états s et s' se décale ensuite vers le bleu en "rejoignant" le maximum d'excitation p . Le même raisonnement peut être tenu pour une excitation à droite de la résonance de Förster (champ électrique statique F vérifiant $F < F_0$). Le transfert a lieu vers le bleu de la transition $7s \rightarrow 24p_{3/2}$, i.e lorsque le champ parasite est suffisant pour mettre le champ électrique total à résonance. On comprend donc les transferts d'excitation vers le rouge (cette excitation permet seulement de faibles taux de transfert car le nuage d'ions s'éloigne rapidement du PMO) à gauche de la résonance de Förster à temps courts et vers le bleu à droite de la résonance. Le spectre de l'état s rejoint ensuite l'état p à gauche de la résonance alors qu'il reste fortement décalé vers le bleu à droite de la résonance. Il reste à expliquer pourquoi à résonance de Förster le décalage δ_{sp} ne reste pas nul (cf Fig. 5.13(b)). La raie d'excitation p se décale vers le bleu au cours de l'excitation et la raie d'excitation s devrait sans doute tout au plus "suivre" la raie d'excitation p . Une possibilité est que le champ parasite créé par les ions, opposé au champ statique permet une excitation prépondérante vers l'état $|+\rangle$ en permettant une excitation vers le bleu des spectres de l'état p . Ceci reste une hypothèse et demanderait une plus grande investigation.

Ces observations pourraient sembler apporter un peu de confusion pour l'interprétation des résultats dans le cas de l'excitation pulsée-continue (cf Fig. 5.1). En fait, elles ne modifient pas les résultats obtenus par spectroscopie de creusement spectral car les ordres de grandeur des décalages spectraux sont ici beaucoup plus petits. Pour l'excitation pulsé-continu, le creusement spectral de l'état $24p_{3/2}$ est très fin spectralement²¹ (cf Fig. 5.7). Ceci plaide pour le fait que le creusement n'est efficace que lorsque le champ électrique est quasiment nul, à la fois à l'excitation et à la désexcitation. La question ne se pose pas pour l'excitation pulsée (cf Fig. 5.5), comme nous l'avons indiqué en introduction de ce paragraphe.

5.4 Conclusion

C'est par une méthode de spectroscopie originale par creusement spectral qu'il a pu être observé la possibilité de désexciter par laser les atomes dans les états ns et $(n+1)s$ produits à résonance de Förster (réaction $np_{3/2}np_{3/2} \rightarrow ns(n+1)s$), vers l'état $7s$ fortement lié. Les observations expérimentales ont permis d'interpréter la désexcitation des états ns et $(n+1)s$ comme étant due à une transition à deux photons depuis l'état de paire $|+\rangle$, combinaison linéaire des états pp et ss' . Ceci fournit dans une certaine mesure une preuve de la réversibilité de la réaction $pp \leftrightarrow ss'$. L'état de paire $|+\rangle$ uniquement observé correspond à un état répulsif

²⁰Ce nombre varie beaucoup suivant les expériences en raison de la faible durée de vie du colorant utilisé pour le laser pulsé

²¹Le creusement spectral de l'état $24s$ est plutôt présent du côté rouge de raie d'excitation $24p_{3/2}$, elle-même asymétrique vers le bleu en raison de la dynamique des ions pendant l'excitation.

n'induisant cependant qu'un faible mouvement répulsif entre les deux atomes d'une paire d'atomes pendant les temps caractéristiques de cette expérience, i.e. quelques microsecondes. La possibilité de désexcitation de l'état de paire $|+\rangle$ est cependant limitée à $\sim 1 \mu s$. Une explication provient des processus de migration à N corps étant à l'origine de la "dilution" des excitations ns et $(n+1)s$ dans l'environnement des autres atomes, et nous avons donc pu mesurer un temps de "vie" de l'état $|+\rangle$ dans l'environnement des autres atomes. La question se pose de la mesure du temps de cohérence du système d'une paire d'atomes car l'état $|-\rangle$ n'est pas observé. La non observation de l'état $|-\rangle$ peut être interprétée de manière subtile en considérant le suivi plus ou moins adiabatique du croisement évité de la résonance de Förster lors de l'ionisation par champ électrique. On peut préférer aussi l'hypothèse du l -mixing des états ns et $(n+1)s$ possible au cours d'une collision permettant le couplage de nombreux états moléculaires. En information quantique, l'utilisation de méthodes dans lesquelles les atomes de Rydberg sont excités pendant un temps très court, voire non excités comme dans le modèle de porte quantique utilisant le blocage dipolaire [Jaksch et al., 2000] seront probablement nécessaires. Cette expérience ouvre beaucoup d'hypothèses qu'il serait très intéressant de tester dans des expériences futures. Cependant, les résultats obtenus traduisent d'ores et déjà l'évanescence de la cohérence d'un système quantique en contact avec son environnement.

Chapitre 6

Frontière entre gaz de Rydberg et Plasmas ultra-froids

6.1 Introduction : un nouveau champ d'études

La photoionisation d'un nuage d'atomes froids telle qu'elle a été présentée au chapitre 3.1 permet de réaliser des plasmas quasi-neutres à très basses températures [Killian et al., 1999]. Le plasma se forme lorsque la charge d'espace créée par les ions est suffisante pour piéger les électrons, qui sinon s'échappent très rapidement de la zone du PMO après l'ionisation (cf chapitre 3.2.4). Pour une excitation au voisinage du seuil d'ionisation, la température des électrons est proche de 0 K et celle des ions, quelques centaines de microkelvin, est déterminée par la température des atomes avant photoionisation. Un des enjeux de tels plasmas est d'obtenir un régime fortement corrélé. Les corrélations en position (ions-ions, électrons-électrons) se développent au sein d'un plasma lorsque l'énergie cinétique des charges (ions ou électrons) devient plus faible que l'énergie potentielle d'interaction entre deux plus proches voisins. Elles sont ainsi caractérisées par le paramètre de Coulomb Γ_e (respectivement Γ_i), proportionnel au rapport entre l'énergie potentielle d'interaction et l'énergie d'agitation thermique, $\Gamma_e = e^2/a_e kT_e$ (respectivement $\Gamma_i = e^2/a_i kT_i$), $a_{i(e)}$ étant le rayon de Wigner-Seitz relié à la densité $n_{i(e)}$ via $\frac{4}{3}\pi a_{i(e)}^3 n_{i(e)} = 1$. Les ions dans les pièges de Paul ou de Penning permettent d'atteindre un régime de forte corrélation caractérisé par la formation d'un cristal de Wigner [Diedrich et al., 1987], mais ceci concerne uniquement des plasmas à une composante (OCP), donc non neutres.

La Fig. 6.1 montre les délimitations entre les différents plasmas existant dans la nature ou créés en laboratoire et les traitements théoriques adaptés à leur comportement. Les plasmas obtenus par décharge, ionisation laser (à température ambiante)... sont bien décrits classiquement sans prendre en compte les corrélations [Delcroix and Bers, 1994] ($\Gamma_{e,i} \ll 1$). Les plasmas dégénérés tels que les plasmas au centre des étoiles sont extrêmement denses et nécessitent une description quantique (fonctions d'onde délocalisées comme celles qu'on peut rencontrer dans les métaux). Ils sont encore mal connus. Les plasmas corrélés sont suffisamment dilués pour être décrits par les équations de l'hydrodynamique classique mais en tenant compte des corrélations. Bien que les plasmas ultra-froids soient de bons candidats à l'observation de fortes corrélations, les corrélations observées jusqu'à présent restent faibles ($\Gamma_i \sim 1$ dans la référence [Chen et al., 2004, Pohl et al., 2005])

Un refroidissement supplémentaire du plasma s'avère nécessaire car de nombreuses expériences utilisant au départ des atomes refroidis par laser ont mis en évidence des phénomènes

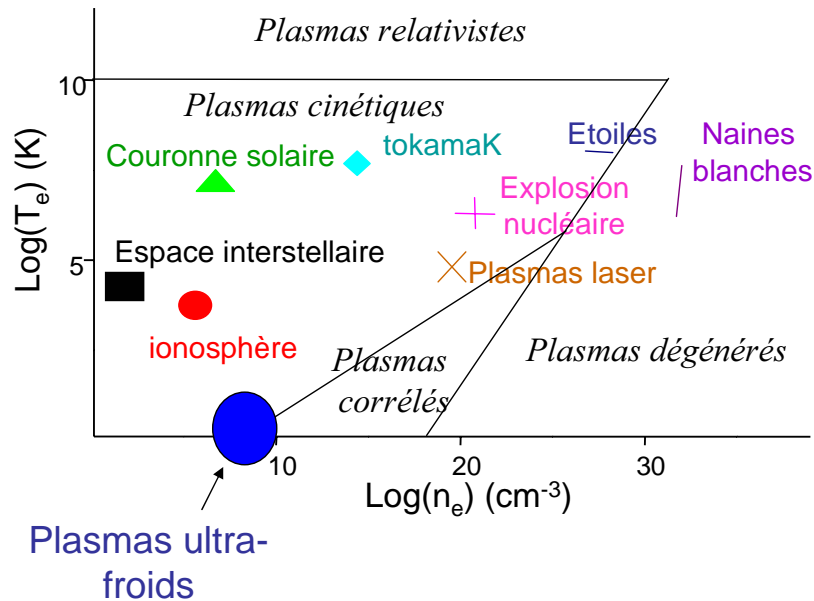


FIG. 6.1 – Classification de différents plasmas suivant la température des électrons et leur densité. Les plasmas usuels sont des plasmas dit "cinétiques" bien décrits par des équations de l'hydrodynamique classique sans prise en compte des corrélations. Au contraire, les plasmas ultra-froids sont à la limite du régime fortement couplé ou corrélé.

de chauffage des ions et des électrons qui empêchent d'atteindre le régime de fortes corrélations. L'expansion rapide des plasmas sous l'effet de la pression cinétique des électrons dénote une augmentation rapide de la température des électrons [Kulin et al., 2000]. Pour une température initialement proche de 0 K, la température atteint rapidement plus de 10 K [Roberts et al., 2004, Vanhaecke et al., 2005]. Les études théoriques ont soulevé deux phénomènes principaux. Après la photoionisation, les porteurs de charge perdent une énergie potentielle de l'ordre de $e^2/a_{e(i)}$ alors qu'ils tendent à se corréliser en position. Ceci est dû au fait que la distribution spatiale des ions et des électrons est stochastique juste après la photoionisation. Cette énergie est convertie en énergie cinétique et conduit à un chauffage intrinsèque rapide en une dizaine de nanosecondes pour les électrons et en quelques centaines de nanosecondes pour les ions [Kuzmin and O'Neil, 2002b, Robicheaux and Hanson, 2002]. Un chauffage à temps plus long (à l'échelle de la microseconde) provient des recombinaisons à trois corps :



Par ce mécanisme, lors de la recombinaison d'un des électrons avec l'ion en un atome de Rydberg, le deuxième électron acquiert l'excès d'énergie. Les recombinaisons à 3 corps augmentent principalement la température des électrons [Robicheaux and Hanson, 2002]. Un tel phénomène est relativement probable et a été observé expérimentalement par [Killian et al., 2001] ainsi que dans la référence [Li et al., 2004]. L'importance des collisions à trois corps avait été noté au cours d'une expérience infructueuse visant à observer un régime de corrélations par refroidissement cryogénique d'un plasma [Delpech and Gauthier, 1972].

L'échauffement des électrons à temps très court fait que rapidement les corrélations

électrons-électrons sont négligeables. Les corrélations ions-ions¹ sont cependant à prendre en compte pour décrire correctement l'évolution du système [Pohl et al., 2004a]. Différentes études théoriques concernant les plasmas corrélés discutent de la possibilité d'obtenir une transition de phase vers un cristal de Coulomb lorsque les corrélations ions-ions deviennent importantes. Pour un plasma neutre dans lequel les électrons sont en équilibre thermodynamique, la densité d'électrons dans le plasma est de la forme $n_e(\vec{r}) = n_{e0} e^{-\phi(\vec{r})/kT_e}$ où $\phi(\vec{r})$ est un potentiel électrostatique local écranté par la charge des électrons vérifiant localement autour d'un ion $\phi(r) = \frac{q_i}{4\pi\epsilon_0} e^{-r/\lambda_d}$ avec $\lambda_d = \sqrt{\frac{\epsilon_0 k_B T_e}{n_e q_e^2}}$ la longueur d'écran de Debye [Delcroix and Bers, 1994].

Dans ces conditions, la transition de phase fluide-solide vers un cristal de Coulomb s'opère pour $\Gamma_i \approx 174$ lorsque le paramètre $a_i/\lambda_d \rightarrow 0$ [Hamaguchi et al., 1997, Pohl et al., 2004c]. Le diagramme de phase dans le plan $(a_i/\lambda_d, \Gamma_i)$ extrait de [Hamaguchi et al., 1997] est reproduit sur la figure 6.2. Dans [Pohl et al., 2004c], il est montré que la prise en compte exacte des corrélations, de la dynamique des ions (plasma hors l'équilibre) et que le plasma est non neutre montre que cette transition pourrait s'opérer pour $\Gamma_i \sim 1000$ [Pohl et al., 2004c] dans les conditions expérimentales des plasmas ultra-froids.

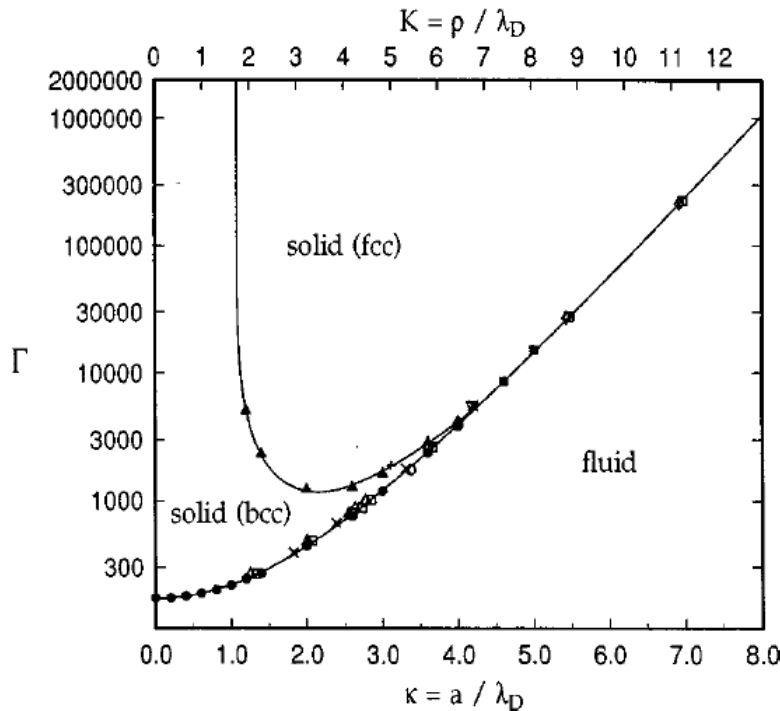


FIG. 6.2 – Diagramme de phase fluide-solide pour un plasma, extrait de [Hamaguchi et al., 1997]. En référence au texte : $a \equiv a_i$ et $\kappa \equiv \kappa_i$. [Hamaguchi et al., 1997] s'applique au cas de particules de poussières chargées négativement dont la charge est écrantée par un plasma. Le résultat se généralise à des ions dont la charge est écrantée par les électrons du plasma.

L'objet de ce chapitre n'est pas de décrire toute la physique très riche de ces plasmas hors équilibre. Cependant, pour pouvoir mesurer correctement la température des électrons, il

¹Les corrélations sont mesurées à partir de la fonction de corrélation $g_{ii}(\vec{r}, \vec{r}') = \frac{\int d\vec{v} d\vec{v}' f_{ii}(\vec{r}, \vec{r}', \vec{v}, \vec{v}') - n_i(\vec{r}) n_i(\vec{r}')}{n_i(\vec{r}) n_i(\vec{r}')}$ exprimée à partir de la fonction de distribution à deux corps $f_{ii}(\vec{r}, \vec{r}', \vec{v}, \vec{v}')$.

est nécessaire de la définir correctement, de tenir compte du fait que la distribution des électrons n'est pas exactement thermique. Pour cela, une étude "comparative" des équations décrivant les équations des plasmas ultra-froids et des amas globulaires a été réalisée [Comparat et al., 2005]. Nous renvoyons à cet article reproduit en annexe pour plus de détails et nous contentons ici d'une description succincte de la mesure de température des électrons dans la section 6.2. Le résultat principal de cet article est que la distribution en énergie des électrons dans le plasma est donnée par une distribution de Maxwell-Boltzmann tronquée (distribution de Michie-King). Afin d'atteindre un régime où les corrélations ions-ions sont plus importantes et observer une transition de phase vers un cristal de Coulomb, il faut refroidir davantage le plasma. Différentes voies pour refroidir un tel plasma ont fait l'objet de travaux expérimentaux ou théoriques. Mentionnons quelques propositions : la mise en réseau optique des atomes avant l'ionisation [Pohl et al., 2004b], le refroidissement laser des ions du plasma dans le cas d'alcalino-terreux, (Sr^+ , Ca^+ ou Be^+) [Pohl et al., 2004c] ou enfin l'ajout d'atomes de Rydberg dans le plasma pour favoriser des collisions ionisantes atomes de Rydberg-électrons (réaction (6.1) inversée) [Vanhaecke et al., 2005, Pohl et al., 2006]. Nous discutons plus avant cette dernière voie dans la section 6.2.

Une autre étude intéressante sur les plasmas ultra-froids concerne l'évolution spontanée d'un gaz d'atomes de Rydberg froids en un plasma ultra-froid [Robinson et al., 2000]. Un tel phénomène avait déjà été observé dans un jet atomique de césium mais pour des conditions de densités atomiques beaucoup plus grandes [Vitrant et al., 1982]. Une ionisation des atomes, lente au départ, crée une charge d'espace, suffisante pour ensuite piéger les électrons. Un phénomène d'ionisation en avalanche se produit ensuite par collisions entre les électrons piégés dans la charge d'espace et les atomes de Rydberg et explique l'ionisation de l'ensemble du nuage. Selon l'état de Rydberg excité, l'ionisation initiale peut avoir plusieurs origines sur lesquelles nous reviendrons. Alors que dans un jet thermique, les causes d'ionisation au départ sont principalement les collisions entre atomes de Rydberg (le jet d'atomes de césium est très dense, typiquement 10^{12} at/cm⁻³), dans le cas d'un gaz d'atomes froids, les causes sont entre autres le rayonnement du corps noir et les collisions avec le gaz résiduel. Le rôle de l'ionisation Penning induite par les mouvements dipolaires a récemment été mis en évidence [Li et al., 2005] et explique l'apparition du plasma plus rapidement pour certains états. Nous avons vu qu'à temps courts, les taux d'ionisation Penning sont plus importants à droite des résonances de Förster mais aussi pour l'état $n=43$ en champ nul en raison de la présence des forces dipolaires. Nous avons confirmé récemment leur rôle dans l'évolution spontanée du plasma pour les états $np_{3/2}$ du césium. Mentionnons finalement que les électrons formés par collisions ou rayonnement du corps noir ne possèdent pas assez d'énergie pour ioniser l'ensemble de l'échantillon d'atomes de Rydberg. Des collisions superélastiques doivent aussi être considérées pour le bilan énergétique du processus. Il s'agit de collisions du type $Cs^*(nl) + e^- \rightarrow Cs^*(n' < n, l') + e^-$ où l'électron gagne de l'énergie cinétique. De telles collisions ont été caractérisées notamment par [Li et al., 2004].

Nous rappelons dans ce chapitre les processus impliqués dans l'évolution spontanée du gaz de Rydberg, notamment le rôle des forces dipolaires et de l'ionisation Penning. Les données de la section 6.3.2.1 prises dans le cadre de la thèse de M. Viteau illustrent de manière "lumineuse" le rôle des forces dipolaires dans la formation du plasma. Ils feront l'objet d'une analyse plus complète dans des travaux et thèses ultérieurs.

6.2 Vers l'obtention d'un régime de fortes corrélations

6.2.1 Introduction

La physique des plasmas ultra-froids est très riche, non seulement parce qu'elle nécessite une étude des corrélations, mais aussi parce que ces plasmas ne sont pas à l'équilibre thermodynamique. Le plasma est en expansion du fait d'une part du défaut initial d'électrons dans le plasma et d'autre part de la diffusion par pression cinétique des électrons (les électrons acquiert rapidement une énergie cinétique importante; par contre la température des ions est faible, restant inférieure au Kelvin). A temps d'expansion courts (typiquement $1 \mu\text{s}$), la distribution spatiale des ions au départ gaussienne de rayon caractéristique σ reste gaussienne lors de l'expansion du plasma :

$$\sigma^2(t) \approx \sigma_0^2 + v_0^2 t^2 \text{ avec } v_0^2 = \frac{k_B T_e^\gamma}{m_i} \quad (6.2)$$

où T_e^γ est la température de photoionisation. A temps plus longs, la distribution des ions se modifie pour faire apparaître une onde de choc similaire à ce que nous avons décrit pour un nuage d'ions (cf. section 3.2.3).

L'équipe du laboratoire Aimé Cotton s'est intéressée à réaliser une mesure de la température des électrons du plasma [Comparat et al., 2005]. Déterminer la température des électrons demande de connaître la fonction de distribution des électrons au sein du plasma, et cette distribution n'est pas simplement la distribution de Maxwell-Boltzmann. Une analogie très utile a été développée avec la théorie bien établie des amas globulaires² en astrophysique. Les deux systèmes, l'un composé d'ions et d'électrons de charges q_i et q_e , l'autre supposé composé de deux sortes d'étoiles de masse M_1 et M_2 sont régis par des lois de Newton similaires. L'analogie tient au comportement identique des forces de Coulomb et de gravitation en $1/r^2$. Il est possible de définir une constante de "gravitation" pour les plasmas $G' = \frac{-q_e^2}{4\pi\epsilon_0 m_e^2}$.

Le rapprochement avec la théorie des amas globulaires est développé dans l'article [Comparat et al., 2005]. D'autres similitudes importantes peuvent être retrouvées, par exemple concernant le taux de recombinaison à trois corps identifié aux taux de formation d'étoiles binaires en astrophysique. La distribution des électrons $f(\vec{r}, \vec{v})$ est obtenue par l'équation du mouvement Brownien dérivée après plusieurs simplifications de l'équation de Focker-Planck (voir [Comparat et al., 2005]) :

$$\frac{df}{dt} \propto \frac{\Gamma}{2v} \frac{\partial}{\partial E} \left[\frac{f}{k_B T e^K} + \frac{\partial f}{\partial E} \right] \quad (6.3)$$

On utilise la notation $T e^K$ pour la température des électrons (K pour King), a priori un peu différente de la température cinétique. Nous y reviendrons plus loin. La distribution de quasi-équilibre est obtenue en supposant $\frac{df}{dt} \approx 0$. Elle est connue depuis longtemps en astrophysique sous le nom de distribution de Michie-King, introduite pour la première fois par Kramers. Elle vérifie :

$$f(E) \propto \begin{cases} \left(e^{-\frac{E}{k_B T e^K}} - e^{-\frac{E_t}{k_B T e^K}} \right) & \text{si } E < E_t \\ 0 & \text{si } E > E_t \end{cases} \quad (6.4)$$

avec $E = q_e \Phi + \frac{1}{2} m_e v^2$, $\Phi(\vec{r}, t)$ étant le potentiel d'interaction avec le plasma ne dépendant que de r pour un plasma à symétrie sphérique. Celui-ci vérifie l'équation de Poisson (avec

²Un amas globulaire est un amas sphérique d'étoiles pouvant contenir plusieurs millions d'étoiles.

$n_e(r) = \int_0^{+\infty} f(v)4\pi v^2 dv$:

$$\Delta\Phi = -\frac{q_e n_e + q_i n_i}{\epsilon_0} \quad (6.5)$$

La distribution de Michie-King est définie comme une distribution de Maxwell-Boltzmann tronquée. Un électron ne reste piégé que si son énergie est inférieure à l'énergie d'éjection E_t . Il en résulte une évaporation continue des électrons chauds au cours de l'expansion du plasma³. La distribution $f(r, v)$ peut se récrire $f(r, v) \propto e^{-\frac{E_t}{k_B T_e^K}} \left(e^{-\frac{mv^2}{2k_B T_e^K}} e^{-\frac{q_e \Phi(r) - E_t}{k_B T_e^K}} - 1 \right)$.

Le potentiel d'interaction d'un électron avec le plasma $q_e \Phi(r)$ est représenté sur la figure 6.3(a) pour un nuage d'ions de forme gaussienne. La profondeur de piégeage en unités de $k_B T_e^K$ est directement reliée au facteur $\eta(0, t) = \frac{E_t - q_e \Phi(0)}{k_B T_e^K}$ où $q_e \Phi(0)$ est l'énergie d'interaction d'un électron avec le plasma en $r = 0$. Les profils radiaux de la densité d'électrons et de la densité d'ions dans le cas d'un nuage d'ions gaussien comportant 500000 ions avec un défaut de 10 % d'électrons sont présentés sur la Fig. 6.3(b). Il est intéressant de remarquer l'excès d'électrons à la périphérie du plasma (analogue à la formation d'un halo d'étoiles en astrophysique).

L'hypothèse d'un quasi-équilibre pour les électrons est correcte car la thermalisation est très rapide au centre du plasma, (temps caractéristique inférieur à 50 ns). En comparaison, le mouvement des ions est très lent. Pour des énergies proches de l'énergie de troncature, les électrons passent plus de temps sur les ailes du plasma et collisionnent moins, la distribution f varie plus lentement en fonction du temps. Des résultats de simulations numériques complètes, Monte-Carlo [Robicheaux and Hanson, 2002] ou dynamique moléculaire [Pohl and Pattard, 2006] confirment la solidité de la solution de quasi-équilibre (6.4). A noter que la définition de cette température T_e^K , dite température de King est différente de la définition de la température d'équilibre ($\frac{3}{2}k_B T_e = \frac{1}{2}m_e \sigma_{ve}^2$) qui dépend de r dans le plasma et ne s'applique donc pas à une mesure expérimentale (les deux définitions semblent converger après environ 1 μ s d'expansion du plasma). La détermination de la température T_e^K est rendue possible en supposant que la distribution des ions reste gaussienne (cf. relation (6.2)), à partir de la relation (6.4) et en résolvant l'équation (6.5). L'un des points délicats est la détermination de la profondeur exacte du potentiel, $\eta(0, t)$, car celle-ci dépend évidemment de la dimension spatiale du plasma et des nombres d'ions et d'électrons. Nous discutons plus avant ce problème dans le paragraphe suivant.

6.2.2 Mesure expérimentale de la température-Possibilité de refroidir le plasma

Nous donnons ici une illustration expérimentale de la mesure de la température des électrons reprise succinctement des articles [Vanhaecke et al., 2005] et [Comparat et al., 2005]. Elle met en avant notamment la difficulté d'établir une valeur précise de la température. Nous rappelons ensuite une expérience (menée au laboratoire Aimé Cotton) ayant eu pour but le refroidissement d'un plasma [Vanhaecke et al., 2005] et ayant fait l'objet ensuite de travaux théoriques au sein du groupe "Finite Systems" à Dresde (au MPIPKS). Cette expérience consistait à ajouter un échantillon d'atomes de Rydberg au sein d'un plasma de manière à ce qu'il se comporte comme des glaçons en refroidissant les électrons au cours de leur ionisation par collision avec ceux-ci. Comme nous l'avons expliqué en introduction de ce chapitre, les collisions ionisantes entre atomes de Rydberg et électrons chauds auraient dû permettre le refroidissement du plasma, mais la conclusion quant à un refroidissement ou à un réchauffement

³L'évaporation d'un électron pourrait conduire à un refroidissement si le potentiel piégeant les électrons n'était pas lui-même modifié par cette évaporation. Il est difficile de conclure à ce sujet.

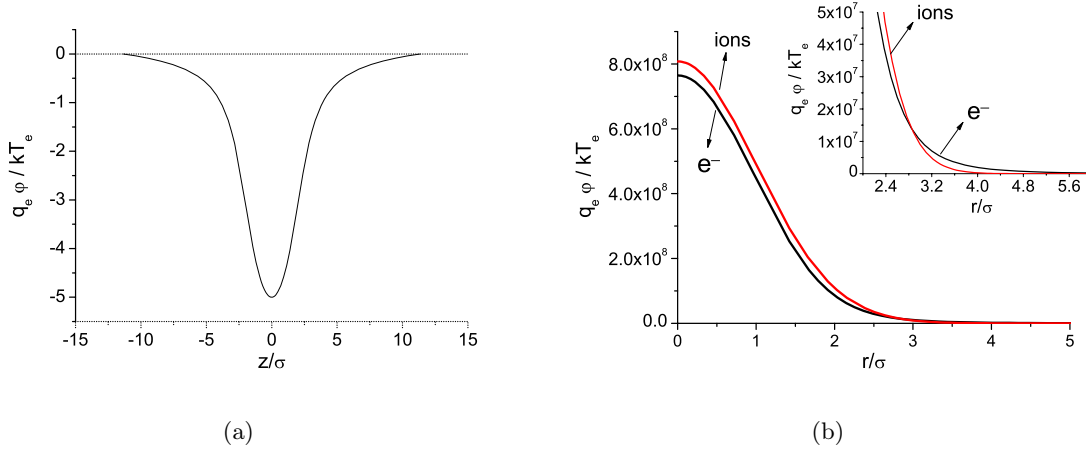


FIG. 6.3 – (a) Profil du potentiel d'interaction d'un électron avec le plasma $q_e \Phi(r)$ suivant un axe méridien en fonction de z/σ où $\sigma = 340 \mu\text{m}$ est le rayon caractéristique de la distribution d'ions supposée gaussienne. Le nombre d'ions est 5×10^5 avec un défaut d'électrons de l'ordre de 10%. (b) Dans les mêmes conditions, profils des densités d'ions et d'électrons $n_e(r)$ et $n_i(r)$ en fonction de r/σ . Dans l'encart, grossissement pour les grandes distances.

n'est pas évidente car les deux phénomènes entrent en compétition.

Mesure de température

La mesure de température repose sur l'application d'un potentiel d'extraction des électrons. En appliquant une tension V entre les grilles (séparées par une distance $d=1.575 \text{ cm}$ et disposées de chaque côté du PMO), l'énergie potentielle de l'électron devient $\Phi'(\vec{r}) = \Phi(r) + \frac{q_e V z}{d}$, (Oz) définissant la direction du champ électrique. La profondeur du plasma est ainsi abaissée et une partie des électrons est rapidement extraite du plasma et accélérée vers les détecteurs à galettes microcanaux. La figure 6.4 traite le cas d'un seul électron au sein d'un nuage d'ions et représente l'énergie potentielle $\Phi'(\vec{r})$ pour différents champs électriques. Pour un plasma, le potentiel créé par le plasma lui-même s'approfondit au cours de l'éjection (suffisamment rapide pour ne pas modifier la distribution des ions) jusqu'à atteindre une valeur maximale lorsque tous les électrons sont éjectés (correspondant à la courbe 3 de la figure 6.4). Comme nous le voyons sur la Fig. 6.5, le nombre d'électrons détectés augmente linéairement en fonction du champ V/d appliqué jusqu'à un seuil à partir duquel tous les électrons ont été extraits du plasma. Ce seuil est obtenu lorsque le champ externe compense le champ maximum créé par le nuage d'ions. Il est égal à:

$$E_{Th} \approx 2.38 \frac{\sqrt{2}}{(2\pi)^{3/2}} N_i \frac{q_i}{4\pi\epsilon_0\sigma^2} \quad (6.6)$$

Le seuil E_{Th} permet de connaître le nombre d'ions, moyennant la connaissance de $\sigma(t)$. Des mesures à différents temps et pour différentes températures de photoionisation ont permis de valider la relation (6.2) et d'évaluer $\sigma(0) \approx 200 \mu\text{m}$. Le nombre d'électrons total N_e est donné directement par le nombre d'électrons mesurés lorsque le champ d'extraction est supérieur à E_{Th} . La température T_e^K est alors déduite⁴ des calculs précédents concernant la distribution

⁴La fonction $g(\eta) = 1.9(\eta - 2)k_B T_e^K$ est simplement un ajustement linéaire des résultats du calcul de la température T_e^K obtenus en faisant varier les différentes données initiales que sont la profondeur du piège, η ,

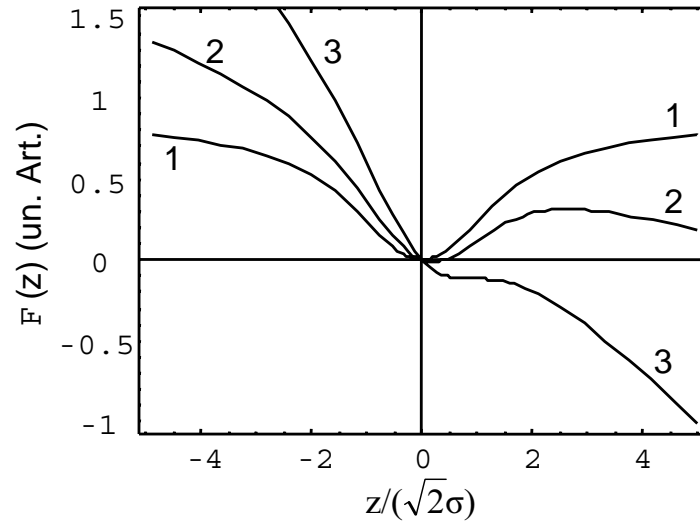


FIG. 6.4 – Potentiel d'interaction d'un électron avec un nuage d'ions en présence de différents champs externes dirigés suivant l'axe (Oz).

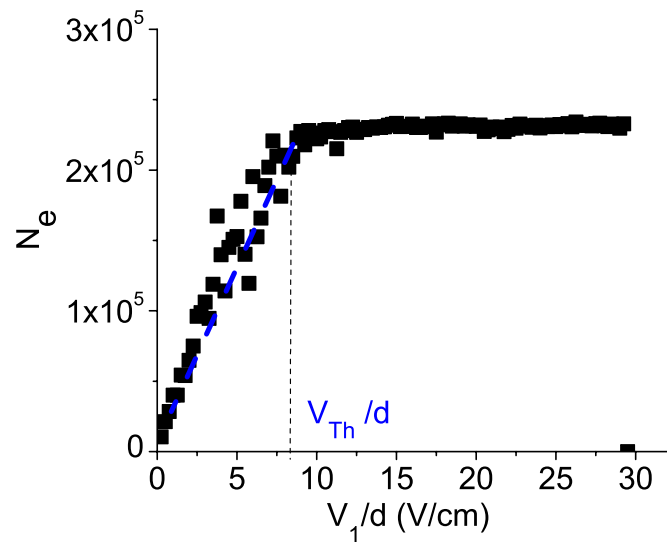


FIG. 6.5 – Nombre d'électrons extraits N_e en fonction du champ électrique appliqué, pour un plasma obtenu par photoionisation et contenant initialement quelques 10^5 ions et après une expansion d'environ $1 \mu s$.

de Michie-King, qui peuvent se condenser sous la forme d'une expression simple reliant T_e^K à $\eta = \eta(0, t)$, N_i et N_e et σ :

$$1.9(\eta - 2)k_B T_e^K \approx \sqrt{\frac{2}{\pi}} \frac{q_e^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{N_i - N_e}{\sigma} \quad (6.7)$$

Expérimentalement, la calibration exacte des nombres d'électrons par rapport aux nombres d'ions est délicate. De même, l'excitation se fait suivant un cigare (par excitation pulsée à deux photons depuis l'état $6s$ dans cette expérience), le plasma n'est donc pas sphérique. Toutes ces incertitudes rendent la mesure délicate. Mais surtout, la profondeur du potentiel η est susceptible de varier avec la taille du nuage (donc avec le temps) ainsi qu'avec le nombre d'ions. D'après un ajustement des résultats obtenus dans différentes études théoriques [Robicheaux and Hanson, 2002, Kuzmin and O'Neil, 2002a], nous trouvons que le paramètre η est compris dans l'intervalle $5 < \eta < 15$ au cours de l'expansion du plasma.

Une simulation récente [Pohl and Pattard, 2006] propose une formule d'ajustement du potentiel $\eta(r, t)$ lorsque la distribution des ions est gaussienne, qui permet d'exprimer la profondeur du potentiel η en fonction de N_i , σ et T_e^K :

$$\eta \approx 3.28 \times N_i^{0.211} \left(\frac{e^2}{\sigma k T_e^K} \right)^{0.21} \approx 3.28 \times \left(\frac{N_i e^2}{\sigma k T_e^K} \right)^{0.21} \quad (6.8)$$

La donnée de la profondeur du potentiel (6.8) utilisée dans l'expression (6.7) permet de retrouver T_e^K à partir de l'équation suivante :

$$1.9(3.28(N_i x)^{0.21} - 2) = \sqrt{\frac{2}{\pi}} N_d x \quad (6.9)$$

où $N_d = N_i - N_e$ et $x = \frac{e^2}{\sigma k_B T_e^K}$ avec $e^2 = \frac{q_e^2}{4\pi\epsilon_0}$.

Sur la Fig. 6.6, nous représentons la température T_e^K d'un plasma formé par photoionisation ainsi que la température de photoionisation T_e^γ en fonction de la longueur d'onde du laser pulsé, le seuil d'ionisation en excitation depuis l'état $6p$ étant obtenu pour $\lambda \approx 508$ nm. L'expérience a été effectuée pour 3 énergies d'impulsion du laser pulsé, $3 \mu\text{J}$, $0.6 \mu\text{J}$ et $0.2 \mu\text{J}$, permettant la formation d'un plasma d'un rayon caractéristique de $200 \mu\text{m}$. La mesure du nombre total d'ions est effectuée $2 \mu\text{s}$ après la formation du plasma. Pour la calibration du nombre d'électrons, il est supposé que $N_e \approx N_i$ pour une excitation au niveau du seuil d'ionisation ($T_e^\gamma = 0$ K) lorsque l'énergie d'impulsion est maximum : le phénomène d'évaporation est supposé faible lorsque leur température est très petite et le défaut initial d'électrons (pour qu'un premier électron soit piégé) est faible en comparaison des grands nombres d'ions et d'électrons obtenu avec cette énergie d'impulsion.

Alors que la température devrait être quasi-nulle juste au-niveau du seuil d'ionisation, elle est assez élevée, de l'ordre de 30 - 50 K pour une puissance du laser pulsé de $0.6 \mu\text{J}$ par exemple. C'est une conséquence de tous les mécanismes de chauffage que nous avons mentionné en introduction de ce chapitre (la température $T_e^K = 0$ K pour la plus forte densité juste au-dessus du seuil n'a pas de réalité physique et n'est qu'une conséquence de la méthode de calibration du nombre d'électrons). Lorsque par contre la température initiale des électrons est élevée pour une excitation loin au-dessus du seuil d'ionisation, la température est plus faible que la température de photoionisation, ce qui est attendu de part le phénomène d'évaporation des électrons. Expérimentalement, nous avons tenté d'installer un deuxième système de détection

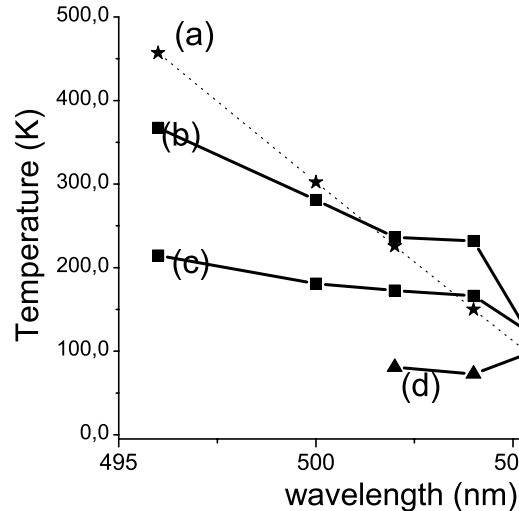


FIG. 6.6 – Température de King mesurée 2 μs après la formation d'un plasma par un laser pulsé, en fonction de la longueur d'onde du laser pulsé (la photoionisation en excitation depuis l'état $6p_{3/2}$ est possible pour $\lambda < 508$ nm), pour différentes puissances du laser pulsé : $\sim 3 \mu\text{J}$ (b), $\sim 0.6 \mu\text{J}$ (c) et $\sim 0.2 \mu\text{J}$ (d). Par comparaison, nous reportons également la température de photoionisation (a).

par galettes microcanaux pour détecter à la fois ions et électrons, mais ce deuxième système de détection a dû être placé trop loin du PMO (plus de 60 cm) et ne donne pas une mesure suffisamment fiable. La mesure de température reste concluante, même si un degré d'incertitude important demeure sur la détermination expérimentale des nombres d'ions et d'électrons.

Refroidissement du plasma : le glaçon de Rydberg

L'une des motivations principales de la mesure de température était le contrôle du refroidissement d'un plasma [Vanhaecke et al., 2005]. La méthode proposée dans [Vanhaecke et al., 2005] et que nous avons tenté d'améliorer sans résultat probant était d'utiliser l'observation selon laquelle un nuage d'atomes de Rydberg dans un plasma ultra-froid s'ionise en grande partie, par collisions avec les électrons du plasma, ce qui était supposé conduire à son refroidissement. La figure 6.7, extraite de [Vanhaecke et al., 2005] illustre ce phénomène d'ionisation d'un nuage d'atomes de Rydberg dans un plasma. Dans cette expérience, un plasma est formé par photoionisation et juste après, une deuxième impulsion laser excite un grand nombre d'atomes vers un état de Rydberg au sein du plasma. En fonction de la puissance du laser de photoionisation (donc du nombre d'ions dans le plasma) est tracée la fraction non ionisée d'atomes de Rydberg pour différents états. Cette fraction diminue rapidement avec n . Le nombre d'ions augmente significativement en parallèle avec la disparition du signal Rydberg. L'efficacité d'ionisation par collisions des atomes de Rydberg apparaît logiquement comme une fonction croissante de n .

Cependant, une étude comparée des résultats expérimentaux avec une simulation théorique [Pohl et al., 2006] a montré depuis qu'une partie importante des atomes sont en fait désexcités par collisions (résultant en un chauffage) vers des états de n inférieurs avec $n < 22$ et non détectés. Il existe en fait une barrière en fonction de n en deçà de laquelle les atomes ont plutôt tendance à être désexcités et au-delà de laquelle ils ont plutôt tendance à être ionisés. Cette barrière est donnée pour une énergie de liaison $E_l \sim 4k_B T_e$ (correspondant à $T_e = 50$ K

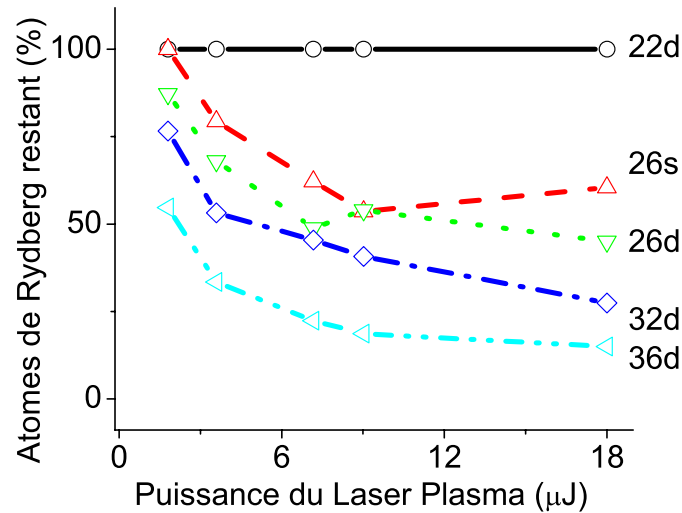


FIG. 6.7 – Fraction restante, $1 \mu\text{s}$ après l'excitation, du nombre d'atomes de Rydberg excités au sein d'un plasma obtenu par photoionisation (contenant au départ ~ 400000 ions). Cette figure est extraite de l'article [Vanhaecke et al., 2005].

pour $n=28$). Dans l'expérience, il n'est pas possible de conclure quant à un chauffage ou à un refroidissement différent suivant n , notamment du fait des indéterminations pour la mesure de température des électrons. Par ailleurs, le fait d'avoir rajouter des atomes de Rydberg s'étant ionisés augmente le taux de recombinaison à trois corps à temps longs ($\sim 1 \mu\text{s}$) et peut finalement conduire à chauffer plutôt le plasma. Il existe toutefois un régime intermédiaire, dans les quelques centaines de nanosecondes suivant l'impulsion d'excitation des atomes de Rydberg, où la température des électrons diminue lorsque $n > 28$ [Pohl et al., 2006]. Ce résultat laisse l'opportunité d'exciter des atomes de Rydberg de manière continue dans le plasma pour obtenir un refroidissement par ionisation prépondérant par rapport au chauffage par recombinaisons à trois corps. On pourrait alors parler de "glaçon de Rydberg" pour le plasma ultra-froid.

6.2.3 Conclusion

Nous avons étudié la possibilité de refroidir les électrons d'un plasma. Pour arriver à cette fin, il a été nécessaire de définir une température de quasi-équilibre donnée par la distribution de Michie-King. La mesure expérimentale s'est heurtée à la détermination exacte simultanée des nombres d'ions et d'électrons et ne donne finalement pas une valeur de la température à mieux qu'un facteur 2. Des améliorations expérimentales sont sans doute possibles.

L'expérience de refroidissement des électrons du plasma en rajoutant des atomes de Rydberg comme glaçons a permis de souligner la limitation d'un tel objectif par les recombinaisons à trois corps, dont il faut rappeler qu'elles varient en $T_e^{-9/2}$. De ce fait un régime où Γ_e est grand sera difficilement atteint. D'après la référence [Pohl et al., 2004c], le produit $\Gamma_e N_i^{2/3}$ doit être augmenté (ainsi que Γ_i) pour obtenir une cristallisation et le choix des auteurs de cet article est d'augmenter N_i pour éviter les problèmes de recombinaisons. Le refroidissement laser pour refroidir un plasma semble une voie très prometteuse pour atteindre la cristallisation [Pohl et al., 2004c]. Expérimentalement, le refroidissement laser des ions n'a pas encore

été réalisé. Mais une première étape a été franchie dans le cas du Strontium, reposant sur la possibilité d'utiliser l'électron de valence des ions Sr^+ (comme pour les autres alcalino-terreux) du plasma pour réaliser une imagerie par absorption permettant de déterminer les densités, la température (utilisation de l'effet Doppler) et la vitesse d'expansion du plasma [Simien et al., 2004, Chen et al., 2004]. Obtenir le refroidissement des ions (en utilisant entre autres la même transition optique nécessaire à l'imagerie) ne sera pas sans problème car les collisions à trois corps vont créer des états autoionisants (un électron de Rydberg autour d'un coeur excité) qui seront une source de chauffage important. D'autres voies ont été étudiées théoriquement telle que la mise en réseau des atomes neutres avant ionisation, mais le réseau devrait être quasi parfait, avec moins d'un défaut pour 100 sites [Pohl et al., 2004b]. Le blocage dipolaire de l'excitation pourrait aussi permettre d'ordonner au départ les atomes en évitant l'excitation de paires proches et pourrait donc permettre de corrélérer les ions, avant l'utilisation d'autres techniques pour refroidir plus avant le plasma. La cristallisation d'un plasma ultra-froid nécessite finalement de surmonter encore de nombreux obstacles.

6.3 Evolution spontanée d'un gaz d'atomes froids de césium en un plasma ultra-froid

6.3.1 Introduction

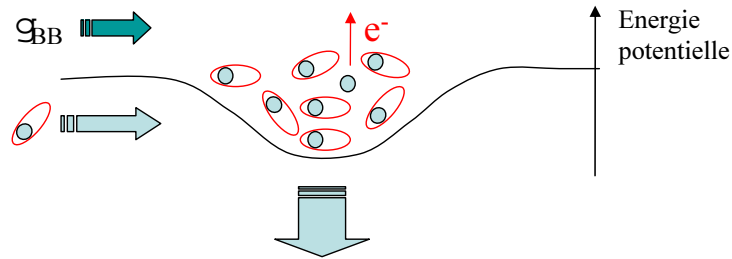
Pour un nombre suffisamment élevé d'atomes de Rydberg et pour des atomes de nombre quantique principal grand, un nuage d'atomes de Rydberg froid s'ionise spontanément. Les électrons peuvent être détectés pendant plusieurs dizaines de microsecondes avec un champ électrique de détection de seulement quelques V/cm, en comparaison des champs de plusieurs centaines de V/cm nécessaires pour détecter la présence d'atomes de Rydberg. Cet effet, caractéristique de la formation d'un plasma, a été étudié au Laboratoire Aimé Cotton et à l'université de Virginie de manière concertée et en appliquant des approches complémentaires, notamment dans la détection.

Scénario

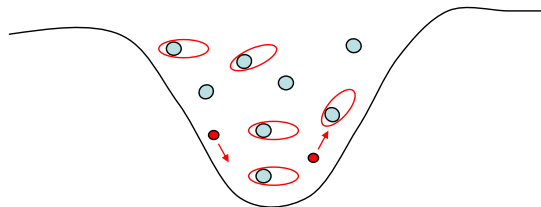
Le scénario proposé par [Robinson et al., 2000] pour expliquer l'apparition du plasma est reproduit Fig. 6.8. Après excitation vers un état de Rydberg, les atomes s'ionisent d'abord avec un taux proportionnel au nombre d'atomes excités. Ce processus d'ionisation est initié notamment par le rayonnement du corps noir induisant des transitions vers le continuum, par des collisions ionisantes avec des atomes de Rydberg chauds (produits après excitation d'atomes du gaz résiduel vers un état de Rydberg) et comme nous allons l'exposer par la suite par les collisions entre atomes froids. A partir du moment où les électrons peuvent être piégés par la charge d'espace créée par les ions, ils permettent l'ionisation de plusieurs atomes de Rydberg par collision car ils ont suffisamment d'énergie cinétique⁵. Le gaz de Rydberg subit alors un phénomène d'ionisation par avalanche. Expérimentalement, il est observé une quasi-disparition des atomes de Rydberg dans l'état de Rydberg initial. Différentes études [Killian et al., 2001, Robicheaux and Hanson, 2002] ont montré l'importance des recombinaisons à trois corps dans les plasmas : deux électrons collisionnent avec un ion et libèrent un électron très chaud (pouvant ioniser un nombre important d'autres atomes) plus un atome de Rydberg fortement lié. Les atomes de Rydberg fortement liés ne sont pas détectés si le

⁵L'énergie d'un photon du corps noir la plus probable est d'environ 500 cm^{-1} , soit par exemple 6 fois l'énergie de liaison $E_I = 82 \text{ cm}^{-1}$ d'un atome de Rydberg avec $n=40$.

Ionisation spontanée



Piégeage des électrons dans la charge d'espace



Expansion

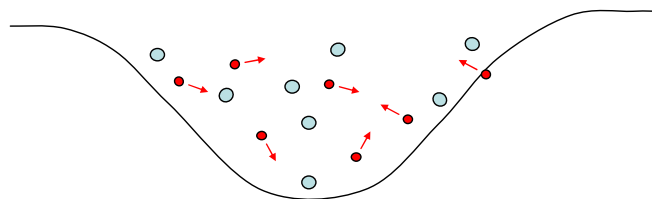


FIG. 6.8 – Schéma décrivant l'évolution spontanée d'un gaz d'atomes de Rydberg vers un plasma ultra-froid. Trois étapes d'évolution peuvent être distinguées. Dans un premier temps se forme une charge d'espace par ionisation de quelques atomes par rayonnement du corps noir, collisions avec les atomes chauds et collisions froides. Lorsque le nombre d'ions devient suffisant pour piéger quelques électrons, un phénomène d'ionisation par avalanche survient, conduisant à la formation d'un plasma quasi-neutre. Enfin, le plasma ainsi formé subit une expansion en raison de la diffusion et de la répulsion coulombienne initiale.

champ d'ionisation pour la détection d'atomes de Rydberg par champ électrique est trop faible, ce qui souvent est le cas. Le taux de recombinaison à trois corps varie comme $n_e^2 T_e^{-9/2}$ en fonction de la température des électrons T_e et de leur densité n_e . Ce taux est important à basse température, donc particulièrement dans les plasmas ultra-froids. Des études expérimentales ont mis en évidence une redistribution après l'ionisation spontanée du gaz d'atomes froids en raison de ces recombinaisons [Li et al., 2004, Walz-Flannigan et al., 2004]. Les gaz d'atomes de Rydberg ne s'ionisent finalement spontanément qu'avec des taux de l'ordre de 70% [Li et al., 2004, Walz-Flannigan et al., 2004]. Les électrons sont aussi responsables de collisions avec changement de moment angulaire l ou changement de nombre quantique principal n observées dans [Walz-Flannigan et al., 2004, Dutta et al., 2001] et amènent à peupler des états de Rydberg non forcément détectés⁶.

Rôle des collisions dans la formation de la charge d'espace

Nous revenons dans ce paragraphe sur la formation initiale de la charge d'espace étudiée dans la première partie de l'article [Li et al., 2004]. Notamment, les processus de formation de la charge d'espace par ionisation par le rayonnement du corps noir ou par les collisions ionisantes sont comparés aux résultats expérimentaux. Le moyen utilisé est d'extraire le nombre d'atomes N_{rTh} nécessaires (donc la densité initiale d'atomes de Rydberg) pour qu'un plasma se forme après un temps τ . La figure 6.9 présente typiquement l'évolution du nombre d'ions en fonction du nombre d'atomes de Rydberg excités après un délai τ entre excitation et détection, il se dégage clairement la présence d'un seuil à partir duquel le nombre d'ions évolue beaucoup plus rapidement (les fluctuations en fréquence et en puissance du laser pulsé sont ici utilisées pour faire varier le nombre d'atomes de Rydberg initialement excités).

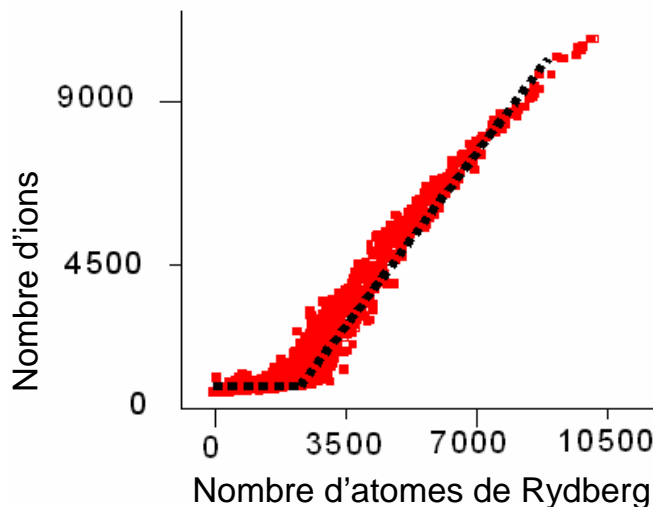


FIG. 6.9 – Nombre d'ions formés en fonction du nombre d'atomes de Rydberg excités dans l'état $26d$, $9 \mu s$ après l'excitation laser pulsée.

Dans le cas d'un taux d'ionisation ΓN_r proportionnel au nombre d'atome de Rydberg N_r ,

⁶Sur le diagramme Stark de la Fig. 1.3, il apparaît qu'au cours de la collision avec l'électron, l'état de Rydberg suit adiabatiquement l'état Stark jusqu'à atteindre les zones de croisement aux champs élevés, où l'atome est susceptible de changer de l et de n .

le nombre d'atomes de Rydberg au seuil est simplement $N_{rTh} = \frac{N_{Th}}{\Gamma\tau}$ où N_{Th} est le nombre d'ions au seuil, déterminé par la formule (3.10), p. 128 (où ΔE_{ph} est remplacée par l'énergie cinétique ΔE_e de l'électron après ionisation).

Nous ne reproduisons pas ici l'ensemble des expériences et des analyses présentées dans [Li et al., 2004]. Seule l'évolution en fonction de n des seuils est tracée Fig. 6.10, pour un délai $\tau = 10 \mu s$. Lorsqu'un grand nombre d'atomes chauds sont excités vers l'état de Rydberg (typiquement 1% du nombre d'atomes de Rydberg dans la région du PMO), le nombre d'atomes au seuil varie expérimentalement en $(n^*)^{-2.1}$, à comparer à la valeur théorique en $(n^*)^{1/4}$ s'il n'est considéré que l'ionisation du corps noir (cette dépendance avec n est valable pour $25 < n^* < 40$), l'ionisation par le corps noir affectant plus les états de Rydberg relativement liés. Clairement, même si le rôle du corps noir ne peut être écarté, la dépendance principale provient d'autres phénomènes. Le seuil théorique en considérant les collisions avec les atomes chauds varie effectivement en $(n^*)^{-3}$. Cette évolution est obtenue en considérant que l'énergie cinétique de l'électron après collision ionisante est en moyenne $\sim 0.5 \times \frac{1}{2n^2}$ u.a [Robicheaux, 2005], soit la moitié⁷ de l'énergie de liaison d'un des atomes de Rydberg, et que le taux d'ionisation est proportionnel au nombre d'atomes de Rydberg et à la section efficace d'ionisation $\sim 10 \times \pi(a_0 n^2)^2$, soit environ 10 fois la section efficace géométrique de la collision (soit finalement $n^4 N_{rTh}^2 \propto \frac{1}{n^2}$). Sur la figure 6.10 présente aussi l'évolution des seuils lorsque

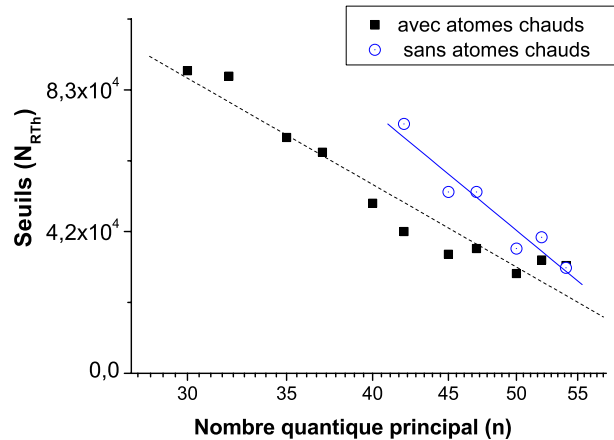


FIG. 6.10 – Seuils du nombre d'ions nécessaire pour permettre le piégeage des électrons, en fonction de n (échelle logarithmique en abscisse), avec ou sans atomes chauds (voir texte).

le nombre d'atomes chauds est moindre⁸, divisé par au moins un facteur 10. L'évolution du seuil avec n change peu, en $(n^*)^{-3.2}$.

Différents mécanismes étaient suggérés dans [Li et al., 2004] pour expliquer ces résultats. L'un concerne les collisions atomes chauds dans l'état $6p_{3/2}$ avec les atomes de Rydberg, selon le mécanisme $A^* + A \rightarrow A^+ + A + e^-$. La section efficace de cette collision varie en n^2 . Elle est deux ordres de grandeur inférieure pour de telles collisions⁹ par rapport aux collisions Rydberg-Rydberg, le taux n'est sans doute pas négligeable car la densité d'atomes dans l'état

⁷Cette évaluation est très approximative et ne tient pas compte de l'énergie cinétique initiale de l'atome chaud. Autrement dit, elle se base uniquement sur des calculs d'ionisation Penning.

⁸L'excitation vers l'état Rydberg étant réalisée de manière pulsée depuis l'état $6p$, le volume d'excitation d'atomes du gaz résiduel vers l'état $6p_{3/2}$ est réduit fortement en utilisant un laser pompeur fin spatialement et collimaté sur le PMO plutôt que les 6 faisceaux des lasers du PMO.

⁹Une vision moléculaire du problème est bien adaptée. Ces collisions sont permises car l'énergie totale

$6p$ est elle aussi 2 ordres de grandeur supérieures (au niveau du seuil de formation du plasma). L'autre mécanisme concerne l'importance des collisions froides Rydberg-Rydberg que nous développons dans la section suivante, dont la section efficace de collision varie clairement comme n^4 , ce qui donne un seuil en n^{-3} pouvant expliquer l'évolution en fonction de n dans l'expérience réalisée sans atomes chauds.

6.3.2 Collisions froides

Le rôle des forces dipolaires entre atomes froids dans la formation du plasma a été mis en évidence récemment [Li et al., 2005]. Notamment, l'excitation de deux atomes dans un potentiel moléculaire attractif en $-C_6/R^6$ conduit à une collision rapide sous l'effet des forces dipolaires, puis à une autoionisation du système moléculaire lorsque les deux atomes atteignent la région à courtes distances où tous les potentiels moléculaires sont couplés, notamment aux potentiels moléculaires attractifs reliés à l'asymptote $Cs^+ + Cs(n'l) + e^-$. Pour le rubidium, la formation du plasma est beaucoup plus lente lorsque les atomes de Rydberg sont excités dans un état $|ns\rangle$ au voisinage de $n=48$ plutôt que dans un état $|nd\rangle$, ceci simplement dû au fait que les états $|nd, nd\rangle$ et $|(n+2)p, (n-2)f\rangle$ sont d'énergies proches et couplés par une interaction dipôle-dipôle forte. Certains états moléculaires à la limite asymptotique $|nd, nd\rangle$ sont ainsi fortement attractifs.

Nous avons déjà rencontré le processus d'ionisation Penning pour le césium à droite des résonances de Förster (cf paragraphe 4.4.5) et également en champ nul pour l'état $43p_{3/2}$. Le décalage d'énergie $\delta_{ppss'}$ entre les niveaux des états $|ns, (n+1)s\rangle$ et $|np_{3/2}, np_{3/2}\rangle$ reste positif et faible pour $n > 42$ (en champ électrique nul), typiquement inférieur à 250 MHz mais négatif pour $n < 42$. L'interaction entre deux atomes est donc fortement attractive pour $n > 42$ mais répulsive pour $n < 42$. Expérimentalement, des résultats récents ont montré des comportements très différents d'ionisation suivant le signe de $\delta_{ppss'}$. L'analyse des résultats est toujours en cours, nous les exposons simplement car ils sont une illustration significative de l'effet des forces dipolaires. Nous analysons plus en détails l'évolution temporelle des nombres d'ions conduisant à la formation du plasma dans le cas de l'excitation haute résolution utilisée pour la démonstration du blocage dipolaire. L'étude détaillée de cette évolution temporelle, notamment à temps courts, est importante pour l'étude du blocage dipolaire en champ électrique, car il est connu qu'une distribution d'ions peut masquer ou mimer l'effet du blocage dipolaire. Nous soulèverons notamment les problèmes de collisions froides entre atomes de Rydberg et atomes dans les états $6p$ ou $7s$.

6.3.2.1 Importance des forces dipolaires

Les données de la Fig. 6.11 sont une manifestation très claire des forces dipolaires attractives ou répulsives. En effet, pour $n > 42$, le nombre d'ions varie rapidement, d'abord linéairement puis quadratiquement en fonction du nombre d'atomes de Rydberg initialement excités (le délai entre excitation et détection est de 10 μs). Il est à noter que la variation du nombre d'atomes est obtenue dans cette expérience en faisant varier la puissance du laser Ti:Sa dans le schéma d'excitation continu par l'intermédiaire des états $6p$ et $7s$, les conditions

du système $A^* + A$, cinétique de translation des deux atomes plus leur énergie potentielle, est supérieure à l'énergie potentielle du système moléculaire $A^+ + A + e^-$ à courtes distances internucléaires, là où les potentiels moléculaires sont couplés et permettent la transition (une température de 300 K correspond à une énergie cinétique d'environ 300 cm^{-1} , supérieure à l'énergie de liaison d'un atome de Rydberg). De manière générale, il suffit que l'énergie cinétique des deux atomes soit suffisante pour qu'ils puissent s'approcher suffisamment [Hickman et al., 1983].

expérimentales étant proches de celles utilisées pour la démonstration du blocage dipolaire. La variation linéaire est principalement due à des processus donnant des taux d'ionisation proportionnels aux nombres d'atomes de Rydberg, tels que l'ionisation par le rayonnement du corps noir, les collisions avec le gaz résiduel, ou encore les collisions froides avec les atomes dans les états $6p$ et $7s$. La variation quadratique dénote la présence de collisions binaires froides entre atomes de Rydberg.

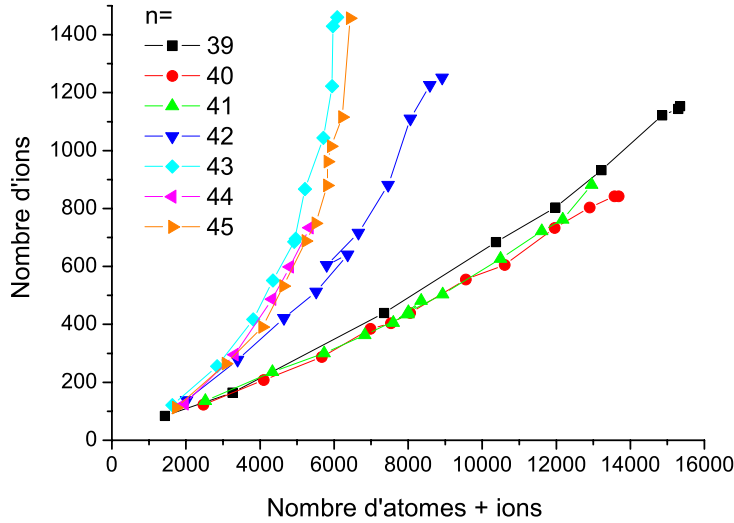


FIG. 6.11 – Nombre d'ions en fonction du nombre d'atomes+ions détectés, pour différents n , pour un délai égal à $10 \mu s$ entre excitation et détection.

Des équations de taux simples permettant de décrire l'allure générale des courbes sont les suivantes :

$$\begin{aligned}
 \frac{dN_r}{dt} &= -(\Gamma + \Gamma_i)N_r - \int_{\mathcal{V}} (2\beta_{ions})n_r^2(\vec{r})d\vec{r} \\
 \frac{dN_{ions}}{dt} &= \Gamma_i N_r + \int_{\mathcal{V}} \beta_{ions}n_r^2(\vec{r})d\vec{r}
 \end{aligned} \tag{6.10}$$

n_r est la densité d'atomes dans l'état Rydberg, N_r et N_{ions} sont les nombres d'atomes de Rydberg et d'ions respectivement. Γ est la durée de vie de l'état Rydberg, typiquement $47 \mu s$ pour l'état $41p$. Le taux d'ionisation $\Gamma_i N_r$ est à distinguer du terme d'ionisation par collisions binaires $-\int_{\mathcal{V}}(2\beta_{ions})n_r^2(\vec{r})$ intégré sur le volume du PMO et caractérisé par le coefficient de collisions binaires β_{ions} (exprimé en $cm^3 \cdot s^{-1}$ usuellement). Ce dernier s'écrit souvent $-2\beta_{ions} \frac{N_r^2}{V_r(t)}$ en fonction du volume $V_r(t)$ défini par $V_r(t) = (\int_{\mathcal{V}} f^2(\vec{r}, t)d\vec{r})^{-1}$ où $f(\vec{r}, t)$ est la fonction de distribution des atomes de Rydberg après excitation (modifiée au cours du temps par la présence des collisions binaires froides).

Utiliser un tel modèle pour caractériser les collisions entre atomes de Rydberg est une approximation importante ne tenant pas compte de la dynamique très lente de la collision, ni le fait que les interactions peuvent impliquer non pas deux mais plusieurs atomes. Néanmoins, ces équations de taux sont utilisées comme un premier modèle dans la section 6.3.2.2 pour caractériser l'évolution temporelle du nombre d'ions.

Pour $n < 42$, les forces dipolaires sont en principe répulsives et limitent les possibilités de collisions binaires, ce qui explique les taux d'ionisation principalement linéaires. Il demeure cependant un léger effet quadratique non encore complètement expliqué. Une des explications possibles pourrait provenir des symétries moléculaires. En effet, des 6 couples de potentiels moléculaires reliés à l'asymptote $np - np$, seul un des couples $^1\Sigma_g^+ - ^3\Sigma_u^+(R)$ est fortement répulsif si $n < 42$. S'il n'est considéré que l'interaction dipôle-dipôle entre les états pp et ss' , les autres potentiels moléculaires seraient non déplacés par l'interaction. L'interaction dipôle-dipôle avec les nombreux autres états possibles détermine dans ce cas le signe de l'interaction, attractive par exemple pour l'autre paire de potentiels $^1\Sigma_g^+ - ^3\Sigma_u^+(A)$. Le calcul [Singer et al., 2005] ne tient pas compte de la structure fine mais le même résultat est obtenu en utilisant le calcul de l'annexe A (avec ou sans la structure fine). Il n'est pas certain que ces états soient suffisamment attractifs pour amener à une collision, il demeure que l'excitation de paires d'atomes très proches dans l'un de ces états peu déplacés, pouvant alors collisionner rapidement, n'est pas à exclure. Des effets à plusieurs corps ainsi que l'effet du peuplement par le corps noir d'états de Rydberg voisins et permettant l'apparition de couplages dipôle-dipôle forts seront probablement aussi à considérer dans une analyse future des données.

L'état $n = 42$ est un état intermédiaire pour lequel le blocage dipolaire joue un rôle important, notamment en limitant l'excitation de paires proches. En plus des différents mécanismes d'ionisation, collisions froides, photoionisation par le rayonnement du corps noir et collisions avec les atomes chauds, l'interprétation devra veiller à considérer les effets de saturation laser par puissance ainsi que la possibilité du blocage dipolaire (le blocage dipolaire est présent principalement pour les états $41p_{3/2}$, $42p_{3/2}$ et $43p_{3/2}$). Cette manifestation claire des forces dipolaires peut laisser espérer un bon contrôle expérimental des collisions entre atomes de Rydberg, et la possibilité de se placer expérimentalement dans des conditions où les taux d'ionisation sont plus faibles.

6.3.2.2 Evolution temporelle du nombre d'ions

L'objectif de ce paragraphe est d'aborder plus spécifiquement l'évolution temporelle du nombre d'ions en présence des collisions froides. L'interprétation exacte des résultats fera l'objet de travaux ultérieurs mais il convient de comprendre les conditions de la formation des ions pour établir les meilleures conditions d'observation du blocage dipolaire par exemple, notamment juste après l'excitation. Les nombres d'ions sont d'abord étudiés à temps courts en fonction du nombre d'atomes de Rydberg. Les évolutions temporelles des nombres d'ions à temps plus longs sont ensuite étudiées et interprétées de manière simple avec des équations de taux, jusqu'au seuil critique du nombre d'ions permettant l'ionisation spontanée du gaz de Rydberg en un plasma.

Nombre d'ions à temps courts

Nous étudions dans cette expérience le nombre d'ions formés en fonction du nombre d'atomes de Rydberg excités dans l'état $85p_{3/2}$, juste après l'excitation (450 ns de délai). L'excitation est continue, le laser Ti:Sa étant allumé pendant 300 ns, focalisé sur $\sim 200 - 300 \mu\text{m}$ (les conditions expérimentales sont très proches de la première expérience du blocage dipolaire en champ électrique 4.3.1). Les résultats sont montrés sur la figure 6.12.

Il apparaît que le nombre d'ions varie quasi linéairement avec le nombre d'atomes de Rydberg excités lorsque nous faisons varier la puissance du laser Ti:Sa (variation de 0 à 125 mW). Autrement dit le nombre d'ions est proportionnel au nombre d'atomes de Rydberg lui-même proportionnel à la puissance laser : $N_{ions} \propto \Gamma_i P_{TiSa}$. Par contre, la dépendance

est plutôt quadratique lorsque nous faisons varier le nombre d'atomes initialement présent dans l'état $6p$ en coupant le laser repompeur pour que seule une fraction des atomes reste dans la transition cyclante de piégeage $6s, F = 4 \rightarrow 6p_{3/2}, F' = 5$ (le nombre d'atomes dans l'état $7s$ et le nombre d'atomes de Rydberg varient linéairement avec le nombre d'atomes dans l'état $6p_{3/2}$). La puissance du laser Ti:Sa est dans cette expérience ~ 85 mW. L'interprétation (confirmée récemment) est simplement qu'une partie des ions proviennent à temps courts de collisions froides entre atomes dans les états $6p$ ou $7s$ avec des atomes froids dans l'état Rydberg. En effet, dans ce cas $N_{ions} \propto \beta_1 \frac{N_{6p} N_r}{V_1} + \beta_2 \frac{N_{7s} N_r}{V_2}$, avec N_{6p} et N_{7s} les nombres d'atomes dans les états $6p$ et $7s$, β_1 et β_2 sont les taux de collisions binaires avec des atomes dans l'état Rydberg, V_1 et V_2 les volumes d'"interaction" exprimés à partir des fonctions de distribution des nombres atomes dans les états $6p$ et $7s$ respectivement. En faisant varier la puissance du laser Ti:Sa, le nombre d'ions est directement proportionnel au nombre d'atomes de Rydberg, $N_{ions} \propto N_r$. Par contre, en faisant varier le nombre d'atomes dans l'état $6p$, le nombre d'ions varie comme $N_{ions} \propto N_r^2$ car dans ce cas $N_{6p} \propto N_r$ et $N_{7s} \propto N_r$ en première approximation.

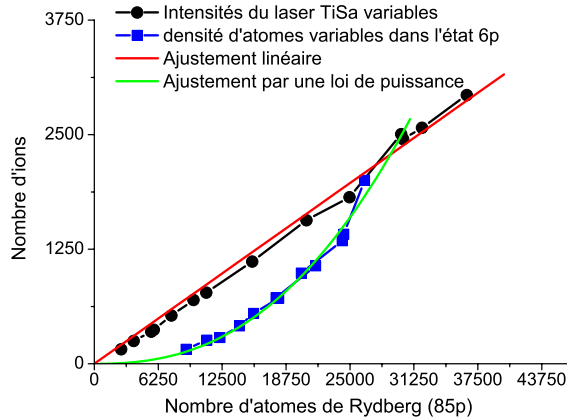


FIG. 6.12 – Nombre d'ions formés 700 ns après l'excitation de l'état $85p_{3/2}$ en fonction du nombre d'atomes de Rydberg excités dans cet état. La variation est linéaire (ajustement linéaire) lorsque nous faisons varier l'intensité du laser Ti:Sa mais elle est presque quadratique lorsque nous changeons la densité initiale d'atomes dans les états $6p$ et $7s$ (ajustement suivant une loi de puissance en $N_r^{2.4}$ exactement).

Cet effet de collisions froides entre atomes de Rydberg et atomes peu excités est un processus d'ionisation Penning. Un des atomes effectue une transition vers un état plus fortement lié alors que l'autre est excité vers le continuum. Soulignons que ces collisions sont prépondérantes lorsque n est élevé (section efficace variant en n^2) mais qu'elles conduisent à des taux d'ionisation comparables à ceux du corps noir pour $n \sim 40$. Il n'est pas a priori possible d'écarter complètement l'effet des collisions entre atomes chauds dans l'état $6p$ et atomes de Rydberg froids. Cependant, la coupure du laser repompeur affecte probablement moins¹⁰ la proportion d'atomes chauds dans l'état hyperfin $6s, F = 4$ et il serait peu probable d'obtenir un effet aussi net sur la figure 6.12. Il semble que l'effet de ces collisions puisse être quasiment annulé si l'excitation de l'état $6p$ est coupée juste après l'excitation vers l'état Rydberg. Techniquement,

¹⁰A température ambiante, les atomes sont répartis dans les niveaux hyperfins $6s, F = 3$ et $6s, F = 4$ au prorata de l'ordre de dégénérescence de ces deux niveaux. La présence des lasers pièges et la coupure du laser repompeur modifie sans doute cette affirmation. Cependant, le laser repompeur n'affecte qu'une petite partie des atomes du gaz résiduel.

il n'était pas possible d'effectuer cette opération suffisamment rapidement avec les lasers du PMO, lors de l'étude du blocage dipolaire du chapitre 4. L'utilisation d'une nouvelle diode pour effectuer le pompage vers l'état $6p$ permettra cette opération. Il a par ailleurs été montré expérimentalement que ces taux de collisions froides peuvent quasiment s'annuler en effectuant une transition multiphotonique à 3 photons permettant de ne pas peupler les états $6p$ et $7s$. Une excitation sans état intermédiaire devrait permettre de complètement écarter les problèmes d'ionisation par collisions froides au cours de l'excitation.

Evolution temporelle

Pour clore l'étude des différentes causes de l'ionisation spontanée du gaz d'atomes de Rydberg, nous analysons dans cette section l'évolution temporelle complète des signaux d'atomes de Rydberg et d'ions libres. Il est notamment observé une diminution rapide du nombre d'atomes de Rydberg que nous tentons d'interpréter à partir des pertes par ionisation ou par émission spontanée, décrites par les équations de taux (6.10).

L'étude de l'état $100p_{3/2}$ est présentée sur la Fig. 6.13. Alors que la durée de vie de l'état $100p_{3/2}$ est normalement de près de $400 \mu s$ (en considérant la désexcitation radiative plus l'effet du corps noir), elle semble n'être que d'une quinzaine de μs , alors que simultanément le nombre d'ions augmente très rapidement. Cette non-linéarité est caractéristique de collisions froides ionisantes, probablement entre atomes de Rydberg. Le nombre d'atomes de Rydberg ne chute pas à 0, laissant suggérer soit que des paires d'atomes sont excités dans des états relativement stable, soit que les atomes ont effectué des transitions vers des états voisins qui ne sont pas distingués des atomes encore présents dans l'état $100p_{3/2}$ lors de la détection (il est probable que tous les atomes tels que $n > 90$ soient détectés dans cette expérience). Enfin, nous voyons que le nombre d'ions détectés augmente rapidement et atteint plus d'1/3 de la perte de signal d'atomes dans l'état $100p_{3/2}$, suggérant qu'une grande partie des collisions libèrent un ion.

Les équations de taux (6.10) peinent à bien décrire l'évolution temporelle du nombre d'ions et du nombre atomes de Rydberg. Sur la figure 6.13(a), il semble que la chute du nombre d'atomes de Rydberg soient beaucoup plus rapide que ce qu'il est possible d'obtenir par simples collisions binaires et nous suggère des processus à N corps. Fig. 6.13(b), nous supposons que 18% des atomes après collision ne sont pas distingués des atomes dans l'état $100p_{3/2}$ lors de la détection et que 12,5% des collisions ne conduisent pas forcément à une ionisation. L'ajustement est un peu meilleur mais n'explique pas la chute très rapide puis brusquement amortie du signal Rydberg. Un modèle de la dynamique collisionnelle est nécessaire pour vraiment comprendre ces données. De ces mesures et nos premières évaluations, nous déduisons cependant, en première approximation, un taux de collisions binaires froides β_{ions} d'environ $10^{-9} - 10^{-10} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ pour $n = 100$.

Les expériences récentes ont conclu à un comportement temporel très différent pour $n < 42$ et pour $n > 42$ dans l'excitation des états $np_{3/2}$. La chute rapide du signal Rydberg est observée pour $n > 42$ mais pour $n < 42$, l'évolution temporelle du signal est essentiellement limitée par la durée de vie à laquelle se rajoutent d'autres effets linéaires d'ionisation, telles que les collisions avec les atomes dans les états $6p$ et $7s$ par exemple (les équations de taux reproduisent bien l'évolution temporelle du signal). Pour $n = 43$, de même que pour $n = 100$, l'évolution temporelle du signal ne s'explique pas seulement par un modèle de collisions binaires. D'autres phénomènes tels que la possibilité de prédissociation dans des états moléculaires moins énergétiques (non détectés) pourraient conduire aux comportements temporels observés. L'effet de la superradiance serait aussi à considérer. Des travaux en cours permettront de conclure prochainement.

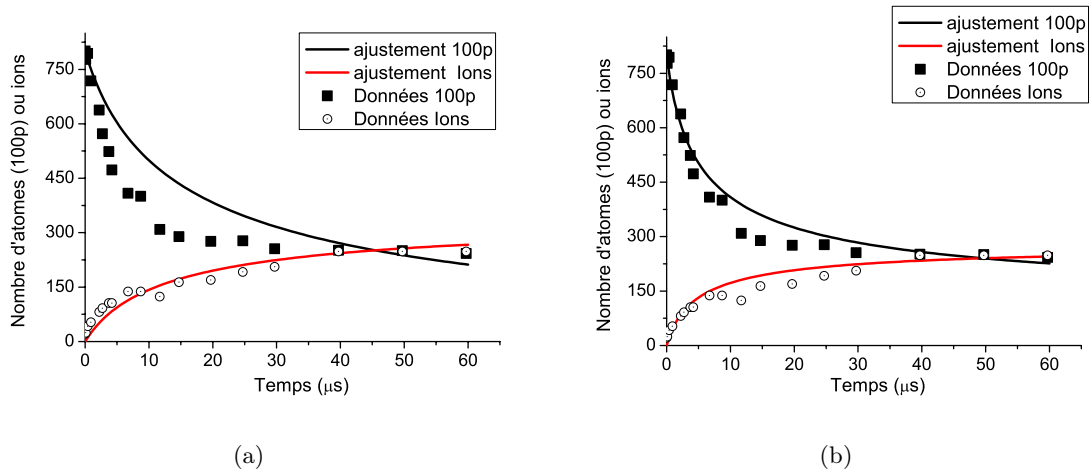


FIG. 6.13 – (a) Evolution temporelle du nombre d’atomes de Rydberg après excitation dans l’état $100p_{3/2}$ et nombres d’ions simultanément détectés. Les courbes calculées utilisent les équations de taux (6.10) (l’ajustement est obtenu pour l’évolution temporelle des ions). (b) Même courbes qu’en (a) mais un ajustement différent, supposant que toutes les collisions ne conduisent pas forcément à un phénomène d’ionisation (voir texte).

6.3.2.3 Conclusion : formation du plasma

Un certain nombre de phénomènes de collisions ont été identifiés comme étant à l’origine de l’ionisation spontanée d’un gaz de Rydberg froid. La détermination des contributions exactes des différentes sources d’ions, collisions thermiques, rayonnement du corps noir, collisions froides entre atomes de Rydberg ou avec des atomes dans des états intermédiaires sera l’objet d’études ultérieures, mais nous pouvons affirmer que les collisions froides jouent un rôle prépondérant. L’ionisation en avalanche d’un gaz de Rydberg devient possible lorsque le seuil de quelques milliers d’ions est atteint. Ceci est illustré sur les spectres d’excitation de l’état $50p_{3/2}$ sur la Fig. 6.14. Le plasma apparaît au centre de la raie, là où le nombre d’ions est maximum, à partir du moment où le nombre d’ions atteint le seuil de 2000 ions, après 7-10 μs . La forme de raie d’excitation caractéristique obtenue est due aux excitations à 2 et 3 photons (le décalage des lasers du PMO est ici de -15 MHz). La raie correspondant aux ions peut paraître un peu déplacée vers le rouge mais la présence des excitations multiphotoniques ne permet pas de conclure (nous avons déjà précisé qu’une excitation multiphotonique à 3 photons permet d’éviter les 2 états intermédiaires et limite donc au départ l’ionisation du gaz de Rydberg). Cette asymétrie vers le rouge pourrait correspondre à une prépondérance de l’ionisation de paires d’atomes en interaction attractive, ce qui reste à confirmer.

6.4 Conclusion

Les plasmas ultra-froids ont soulevé un grand nombre de problèmes physiques riches. Une des applications dans l’avenir serait de réaliser une source d’électrons extrêmement brillante et directive [Claessens et al., 2005] à partir d’un plasma ultra-froid, bien plus que ce qui est réalisé par les meilleurs canons à électrons.

A plus court terme, l’un des enjeux actuels est d’atteindre une transition de phase fluide-

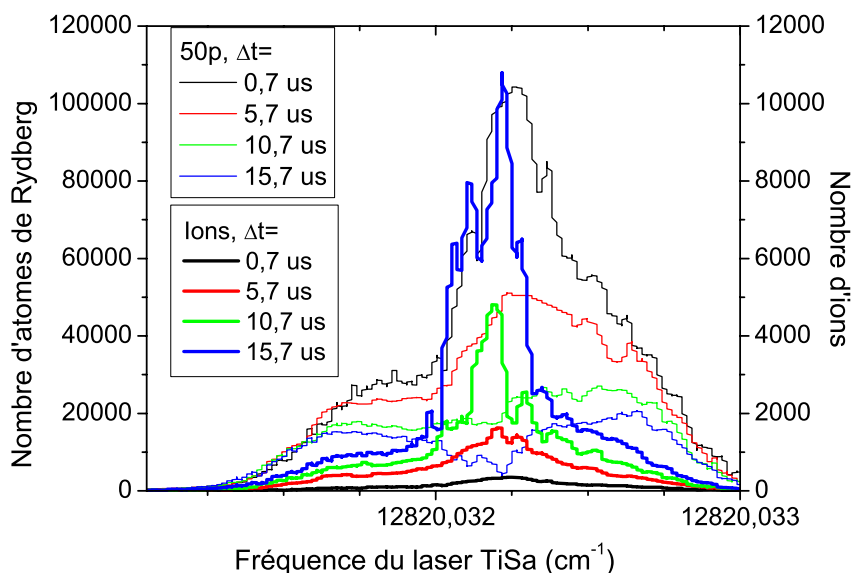


FIG. 6.14 – Nombres d'atomes de Rydberg dans l'état 50 p et nombre d'ions en fonction de la fréquence d'excitation du laser Ti:Sa, pour différents délais après l'excitation. Après $10 \mu\text{s}$, il se forme un plasma.

solide vers un cristal de Coulomb. Une méthode prometteuse pour l'atteindre est le refroidissement laser des ions du plasma, possible dans le cas des alcalino-terreux. Nous avons exposé dans ce chapitre une méthode de mesure de température des électrons du plasma, et la possibilité de le refroidir en rajoutant des atomes de Rydberg s'ionisant dans le plasma, tels des "glaçons", pour développer les corrélations, notamment électrons-électrons. Cette technique de refroidissement s'est avérée délicate pour deux raisons : la mesure de température reste imprécise, mais également les recombinaisons à trois corps sont très importantes lorsque la température des électrons devient petite. Il reste que des outils importants et des analogies très intéressantes avec l'astrophysique ont pu être développés.

La frontière entre plasmas ultra-froids et gaz de Rydberg froids est mince au regard des taux très importants de recombinaison à trois corps pour les uns et d'ionisation pour les autres. L'ignition de l'ionisation spontanée d'un gaz de Rydberg a retenu également notre attention dans ce chapitre. Il est apparu clair que les collisions froides, notamment celles induites par les forces dipolaires, sont au coeur de la formation d'une charge d'espace suffisante pour piéger ensuite les électrons et former un plasma. Pour l'utilisation du blocage dipolaire, une excitation nécessairement cohérente sans états intermédiaire permettra de limiter les taux d'ionisation Penning. Les différentes études présentées dans ce chapitre feront probablement l'objet de développements futurs plus conséquents au sein du groupe, expérimentaux et théoriques, par exemple concernant le rôle des forces dipolaires.

Conclusion générale

L'ensemble des résultats obtenus dans cette thèse montre à quel point la physique des atomes de Rydberg froids est liée aux interactions interatomiques à longue distance de type dipôle-dipôle. La maîtrise de l'interaction dipôle-dipôle entre atomes de Rydberg est un grand enjeu pour contrôler l'excitation vers des états de Rydberg via le blocage dipolaire de l'excitation. Elle permet également de mieux comprendre l'évolution temporelle de gaz d'atomes de Rydberg, dont deux exemples décrits dans cette thèse sont l'évolution "spontanée" en un plasma ultra-froid et les propriétés tout à fait originales du transfert résonant d'énergie interne à résonance de Förster.

Le résultat le plus important obtenu au cours de ce travail de thèse est la mise en évidence du blocage dipolaire de l'excitation vers des états de Rydberg. Plusieurs équipes s'étaient investies sur ce problème, particulièrement pour sa démonstration expérimentale car le blocage dipolaire doit permettre la manipulation de qubits à partir d'atomes neutres froids et la réalisation de portes quantiques très rapides [Protsenko et al., 2002, Jaksch et al., 2000]. Le blocage dipolaire pour un ensemble d'atomes a été démontré dans une première configuration en présence d'un champ électrique statique permettant à chaque atome de posséder un très fort moment dipolaire permanent $\propto \frac{3}{2}(n^*)^2 qa_0$ lorsqu'il est excité dans l'état Rydberg. Plus précisément, nous avons utilisé la configuration de couplage Stark entre les états np et $(n-1)d$ du césium, l'interaction dipôle-dipôle entre atomes excités dans l'état np se mettant alors sous la forme simple $W \propto \frac{\mu^2(1-3\cos^2\Theta)}{R^3}$, μ étant le moment dipolaire permanent de chacun des atomes, aligné suivant l'axe du champ électrique faisant un angle Θ avec l'axe internucléaire. Un schéma d'excitation à trois couleurs utilisant des lasers continus a été développé pour obtenir une excitation de grande résolution spectrale (3 MHz en régime d'excitation continu). Nous avons montré que l'excitation d'un ensemble d'atomes de Rydberg est alors limitée du fait des interactions dipôle-dipôle de chaque atome avec son plus proche voisin. La limitation de l'excitation apparaît ainsi lorsque la densité d'atomes excités devient telle que le couplage entre 2 atomes séparés par l'espacement internucléaire moyen R_m , $W_m \sim \frac{\mu^2}{R_m^3}$ devient de l'ordre de grandeur de la résolution spectrale de l'excitation $\Delta\nu$. En comparant les taux d'excitation obtenus en champ électrique nul, donc sans interaction dipôle-dipôle, et en champ électrique, il a été possible d'évaluer à 60% l'efficacité du blocage dipolaire de l'excitation des états $np_{3/2}$ en champ électrique. Une difficulté de la mise en évidence du blocage dipolaire lorsque les atomes sont excités dans les états $np_{3/2}$ a été la présence de l'interaction de Van der Waals en champ électrique nul, due à la proximité des niveaux $np_{3/2}np_{3/2}$ et $ns(n+1)s$. Correspondant à une interaction dipôle-dipôle du deuxième ordre, cette interaction est cependant responsable d'une limitation de l'excitation en champ électrique nul, certes plus faible, mais sa prise en compte a permis d'expliquer la limitation à 60% de l'efficacité du blocage dipolaire en champ électrique. Le blocage dipolaire a été mis en évidence récemment pour les états $np_{1/2}$, pour lesquels, comme attendu, l'effet de l'interaction Van der Waals en champ nul n'a pas été observé. Des études en cours devraient permettre d'obtenir un blocage encore plus efficace.

Un modèle de champ local moyen (couplage dipôle-dipôle principal avec le plus proche voisin atome excité) a permis d'expliquer simplement la plupart des résultats obtenus. Ces résultats concernent de grands ensembles d'atomes, mais ils permettent d'affirmer que, comme attendu, l'interaction dipôle-dipôle en champ électrique devrait a priori permettre d'observer un blocage quasi-total de l'excitation d'atomes vers l'état $70p$. Pour cela, il suffira de limiter le volume d'excitation à une boule de rayon $\sim 5 \mu\text{m}$ de rayon. Il sera ainsi possible de réaliser un état collectif ne comportant qu'un seul état excité. Le blocage dipolaire dans un tel volume est très intéressant car il devrait permettre de contrôler la desexcitation dans un état de stockage donné et ainsi de préparer un état collectif comportant un nombre déterminé d'atomes dans cet état de stockage. La connaissance du nombre exact d'atomes dans un état donné permettra de réaliser des études interférométriques particulièrement précises.

Dans cette thèse, le blocage dipolaire a été démontré dans une deuxième configuration, dans laquelle des atomes excités vers un état $np_{3/2}$ présentent une forte interaction dipôle-dipôle au voisinage de résonances de Förster correspondant à la réaction $np_{2/3} + np_{2/3} \rightarrow ns + (n+1)s$, et obtenues pour un champ électrique précis. Typiquement, pour une paire d'atomes, la présence d'un croisement évité par l'interaction dipôle-dipôle à résonance de Förster entre les états $np_{2/3}np_{2/3}$ et $ns(n+1)s$ pour un champ électrique donné permet un contrôle relativement précis de l'interaction entre deux atomes. Expérimentalement, un blocage de l'excitation de l'ordre de 30% a été observé après excitation d'un ensemble d'atomes à résonance de Förster. Outre le fait que les résonances de Förster concerne des n bas ($n < 42$), une des raisons pour laquelle un blocage plus efficace n'a pu être observé est la saturation par puissance laser. Celle-ci diminue la résolution spectrale de l'excitation et élargit les raies par puissance. Elle a pour conséquence une diminution de la distance minimale d'excitation d'un atome proche d'un atome déjà excité. Un des résultats intéressants de la résonance de Förster est qu'elle permet d'étudier la largeur de la résonance en fonction du champ électrique. Nous avons montré que les grandes largeurs obtenues s'expliquent en partie en prenant en compte seulement la distribution des paires d'atomes les plus proches pour lesquelles le blocage de l'excitation peut être effectif et total hors de la résonance sur une grande plage de champ électrique. Il faut sans doute considérer d'autres effets tels que les effets à N corps de migration des excitations ns et $(n+1)s$ dans l'environnement des autres atomes ou les forces dipolaires interatomiques pour comprendre complètement le blocage dipolaire au voisinage des résonances de Förster et notamment les élargissements en champ électrique.

Les étapes pour parvenir à la réalisation de portes quantiques rapides sont désormais tracées. L'excitation devra utiliser une source cohérente, non limitée comme c'était le cas dans nos expériences par la durée de vie d'un état intermédiaire de l'excitation. Une possibilité déjà testée est de réaliser une excitation multiphotonique à 3 couleurs avec la méthode d'excitation actuelle. L'expérience pourra s'orienter également vers une excitation cohérente à un photon depuis l'état $6s$. Dans la référence [Jaksch et al., 2000], la séquence d'impulsions du modèle de porte de phase conditionnelle utilisant le blocage dipolaire nécessite un temps de l'ordre de la période de Rabi de l'excitation laser $\frac{2\pi}{\Omega}$ où Ω est la fréquence de Rabi supposée beaucoup plus petite que le couplage dipôle-dipôle entre deux atomes v_{dd} . Deux atomes situés à quelques $5 \mu\text{m}$ l'un de l'autre verront une interaction de plus de 45 MHz s'ils sont excités pour un champ électrique de 250 mV/cm dans l'état $70p_{3/2}$. Il n'est pas difficile de voir que les conditions sont déjà présentes pour réaliser en moins d'une microseconde la séquence d'impulsions nécessaires. Cette expérience sera bientôt réalisée dans le groupe d'Optique quantique de l'Institut d'Optique à partir de deux atomes neutres confinés au sein de deux pièges microscopiques.

Au-delà de l'information quantique, les gaz d'atomes de Rydberg sont des systèmes quantiques complexes, encore mal compris mais extrêmement intéressants car ils permettent de

rassembler différentes physiques, que ce soit la physique atomique et moléculaire, la physique de l'état solide ou encore la physique des plasmas. Notamment, les gaz d'atomes de Rydberg froids présentent par bien des aspects des propriétés similaires à celles des solides amorphes, car les mouvements des atomes sont négligeables en première approximation durant les temps d'expérience. Ces gaz de Rydberg sont donc gelés. La diffusion des excitations ns et $(n+1)s$ dans le procédé Förster de transfert résonant d'énergie électronique $pp \rightarrow ss'$ est quasiment identique à la diffusion des excitations électroniques par interaction dipôle-dipôle magnétique entre les dopants d'un cristal ou d'un solide amorphe. De profondes analogies dans le traitement de ces problèmes pourraient être retrouvées. Des thèmes chers à la physique du solide tel que la localisation d'Anderson pourraient sans doute être observées. Au contraire, des excitations délocalisées existent probablement en présence d'interaction dipôle-dipôle. Des phénomènes complexes ont pu être étudiés dans cette thèse, portant par exemple sur la conservation de la cohérence au sein de tels systèmes. Une étude du transfert résonant d'énergie à résonance de Förster (réaction $pp \rightarrow ss'$) dans un ensemble d'atomes de Rydberg a permis de montrer la possibilité de désexciter les atomes dans les états ns et $(n+1)s$ de façon stimulée par laser vers l'état fortement lié $7s$. Il est apparu par ailleurs un décalage spectral caractéristique entre les positions centrales des raies ns et $np_{3/2}$. Celui-ci nous a amenés à conclure que la désexcitation des atomes dans les états ns et $(n+1)s$ est possible par désexcitation directe des paires d'atomes dans l'état de paire $|+\rangle$, état répulsif combinaison linéaire des états pp et ss' . Pour tenter d'expliquer la non observation de l'état $|-\rangle$, nous avons discuté le problème du suivi adiabatique lors de l'ionisation par champ électrique pour la détection des atomes de Rydberg ou encore le rôle des forces dipolaires attractives entre atomes. La possibilité d'"observer" l'état $|+\rangle$ diminue cependant rapidement en un temps inférieur à la microseconde, ce qui est interprété comme étant la conséquence des interactions à N corps incluant les réactions de migration dans l'environnement des produits ns et $(n+1)s$ de la réaction de transfert $pp \rightarrow ss'$. Ces résultats sont subtils et pas encore complètement compris. Beaucoup de travail reste à réaliser sur ce thème.

L'excitation d'un ensemble d'atomes vers des états de Rydberg nous a amenés à étudier plus précisément l'évolution temporelle d'un gaz d'atomes de Rydberg sous l'effet des interactions entre atomes, notamment dipôle-dipôle. En effet, un gaz d'atomes de Rydberg ne peut pas être rigoureusement considéré comme figé en présence d'interactions dipôle-dipôle pour des temps supérieurs à quelque centaines de nanosecondes. Des études ont notamment permis de montrer l'importance des forces dipolaires attractives dans les processus d'ionisation "spontanée" de gaz d'atomes de Rydberg froids. Ces forces permettent de rapprocher suffisamment les atomes de Rydberg pour que des phénomènes d'ionisation Penning aient lieu. Pour une excitation vers des potentiels moléculaires attractifs à très longue distance, ces forces dipolaires sont très clairement impliquées dans une formation rapide de la charge d'espace qui se forme avant que l'ionisation par avalanche d'un gaz d'atomes de Rydberg froids conduise à la formation d'un plasma ultra-froid. Le rôle exact des forces dipolaires, l'importance du rayonnement du corps noir et l'implication de processus à N corps font encore l'objet d'études pour mieux comprendre les mécanismes de la formation de cette charge d'espace.

Tous ces résultats montrent que l'interaction dipôle-dipôle constitue un véritable langage entre atomes froids lorsqu'ils sont excités dans des états de Rydberg. La compréhension et la maîtrise de l'interaction dipôle-dipôle entre atomes de Rydberg permettra de les manipuler un à un ou au contraire permet d'envisager la possibilité de créer des systèmes "structurés".

Annexe A

Interaction dipôle-dipôle

A.1 Introduction

Cette annexe reprend l'analyse tensorielle de l'interaction dipôle-dipôle développée par Daniel Comparat dans sa thèse [Comparat, 1999]. Cette analyse utilise comme axe de référence l'axe du laboratoire, i.e. l'axe du champ électrique externe. Elle nous sera utile pour décrire l'interaction dipôle-dipôle en champ électrique et à résonance de Förster.

A.2 Analyse tensorielle de l'interaction dipôle-dipôle

L'interaction dipôle-dipôle entre deux atomes A et B s'exprime assez simplement dans le référentiel moléculaire prenant comme axe de quantification l'axe internucléaire. Mais le champ électrique est défini suivant un autre axe, c'est pourquoi l'axe choisi dans notre description est l'axe du laboratoire défini par l'axe du champ électrique.

Considérons deux atomes neutres (A) et (B), joints par le rayon vecteur $\vec{R} = R\vec{n}$, défini par les angles polaires Θ et ϕ (en coordonnées sphériques, cf Fig. A.1). \vec{r}_A (resp. \vec{r}_B) désigne le vecteur reliant le coeur atomique de de l'atome A (resp. B) à son électron périphérique.

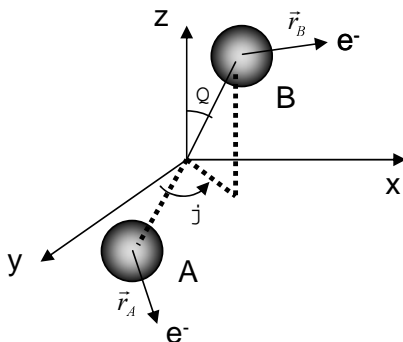


FIG. A.1 – Définition des angles polaires Θ et ϕ . Le champ électrique est orienté suivant l'axe (Oz).

L'hamiltonien dipôle-dipôle est donné par l'expression suivante (en u. a.) établie au chapitre 1 :

$$V_{dd} = \frac{1}{R^3} (\vec{r}_A \cdot \vec{r}_B - 3(\vec{r}_A \cdot \vec{n})(\vec{r}_B \cdot \vec{n})) \quad (\text{A.1})$$

Cette expression peut se formuler à partir des composantes r_0^A, r_+^A, r_-^A et r_0^B, r_+^B, r_-^B des opérateurs vectoriels \hat{r}_A et \hat{r}_B (les composantes s'écrivent en fonction des harmoniques sphériques, cf chap 1, p. 26) :

$$\begin{aligned} V_{dd}(\Theta, \phi) = & -\frac{1}{R^3} (c[0]Y_2^0(\Theta, \phi)(r_0^A r_0^B) + \frac{c[0]}{2}Y_2^0(\Theta, \phi)(r_+^A r_-^B + r_-^A r_+^B) \\ & + c[1]Y_2^{-1}(\Theta, \phi)(r_0^A r_+^B + r_+^A r_0^B) \\ & + c[-1]Y_2^1(\Theta, \phi)(r_0^A r_-^B + r_-^A r_0^B) \\ & + c[-2]Y_2^2(\Theta, \phi)(r_+^A r_+^B) \\ & + c[2]Y_2^{-2}(\Theta, \phi)(r_-^A r_-^B)) \end{aligned} \quad (\text{A.2})$$

où les coefficients $c[0]$, $c[1]$, $c[-1]$, $c[-2]$ et $c[2]$ sont définis par :

$$\begin{aligned} c[0] &= 4\sqrt{\frac{\pi}{5}} \\ c[1] &= c[-1] = -2\sqrt{\frac{3\pi}{5}} \\ c[2] &= c[-2] = 2\sqrt{\frac{6\pi}{5}} \end{aligned}$$

$Y_2^0(\Theta, \phi)$, $Y_2^{\pm 1}(\Theta, \phi)$ et $Y_2^{\pm 2}(\Theta, \phi)$ désignent les harmoniques sphériques :

$$\begin{aligned} Y_2^0(\Theta, \phi) &= \sqrt{\frac{5}{16\pi}} (3 \cos^2 \Theta - 1) \\ Y_2^{\pm 1}(\Theta, \phi) &= \mp 2\sqrt{\frac{15}{8\pi}} \sin \Theta \cos \Theta e^{\pm i\phi} \\ Y_2^{\pm 2}(\Theta, \phi) &= \sqrt{\frac{15}{32\pi}} \sin^2 \Theta e^{\pm 2i\phi} \end{aligned}$$

On remarquera que le premier terme du développement (A.2) correspond formellement au terme de l'interaction dipôle-dipôle classique $\frac{\mu^A \mu^B (1-3 \cos^2 \Theta)}{4\pi\epsilon_0 R^3}$.

Pour évaluer les éléments de matrice de l'opérateur dipôle-dipôle à partir de l'expression (A.2), il est possible d'appliquer le théorème de Wigner-Eckart. Le calcul donne pour le couplage dipôle-dipôle entre deux états $|n_1, l_1, j_1, M_{j_1}; n_2, l_2, j_2, M_{j_2}\rangle$ et $|n_3, l_3, j_3, M_{j_3}; n_4, l_4, j_4, M_{j_4}\rangle$ le résultat suivant (nous omettons les notations (A) et (B), les notations (1) et (3) désignent l'électron de valence de l'atome (A) alors que les notations (2) et (4) concernent l'électron de valence de l'atome (B)) :

$$\begin{aligned} & \langle n_1, l_1, j_1, M_{j_1}; n_2, l_2, j_2, M_{j_2} | V_{dd} | n_3, l_3, j_3, M_{j_3}; n_4, l_4, j_4, M_{j_4} \rangle \\ &= \frac{-1}{R^3} (n_1, l_1, j_1 || r || n_3, l_3, j_3) (n_2, l_2, j_2 || r || n_4, l_4, j_4) \\ & \times \sum_{q=-2}^2 \sum_{k=-1}^1 T^{q,k}(\Theta, \phi) (-1)^{j_1 - M_{j_1}} (-1)^{j_2 - M_{j_2}} \begin{pmatrix} j_1 & 1 & j_3 \\ -M_{j_1} & k & -M_{j_3} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} j_2 & 1 & j_4 \\ -M_{j_2} & k - q & -M_{j_4} \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (\text{A.3})$$

où $T^{q,k}(\Theta, \phi)$ est défini par :

$$T^{q,k}(\Theta, \phi) = \begin{cases} c[q]Y_2^q(\Theta, \phi) & \text{si } q \neq 0 \\ c[0]Y_2^0(\Theta, \phi)(\delta_{k,0} + \frac{\delta_{k,1}}{2} + \frac{\delta_{k,-1}}{2}) & \text{si } q = 0 \end{cases}$$

Les éléments de matrice dipolaire réduits du type $(n_1, l_1, j_1 || r || n_3, l_3, j_3)$ sont calculés dans l'approximation de Coulomb (cf. section 1.2.3). Ce calcul a été implémenté sous Mathematica par D. Comparat [Comparat, 1999].

A.3 Interaction dipôle-dipôle en champ électrique

Dans cette section, le principal résultat du chapitre introductif sur l'interaction dipôle-dipôle en champ électrique (1.3.2) est démontré, à savoir que l'interaction dipôle-dipôle est diagonale dans le sous-espace comprenant les 4 états $|p_+p_+\rangle$, $|p_-p_-\rangle$, $|p_+p_-\rangle$ et $|p_-p_+\rangle$ (l'état $|p_\pm\rangle$ a été défini au chap. (1.3.2) comme étant l'état en champ électrique $|np_j(F), m_j = \pm m\rangle$ avec $m = 1/2$).

Ecrivons en effet la décomposition de l'état $|np_j(F), m_j\rangle$ sur les états de base $|n'l'_j, m_j\rangle$, en ne conservant que les termes les plus importants :

$$\begin{aligned} |np_j(F), m_j\rangle \approx & a_{p_{3/2}}|np_{3/2}, m_j\rangle + a_{p_{1/2}}|np_{1/2}, m_j\rangle + a_{d_{5/2}}|(n-1)d_{5/2}, m_j\rangle \\ & + a_{d_{3/2}}|(n-1)d_{3/2}, m_j\rangle + a_{ns}|ns_{1/2}, m_j\rangle + a_{(n+1)s}|(n+1)s_{1/2}, m_j\rangle \end{aligned} \quad (\text{A.4})$$

Cette décomposition a été explicitée au chap. 1.3.2.1 pour les états $|np_{3/2}(F), m_j = \pm 1/2\rangle$. Chacun des coefficients $a_{p_{3/2}}$, $a_{p_{1/2}}$, $a_{d_{5/2}}$, $a_{d_{3/2}}$, a_{ns} et $a_{(n+1)s}$ dépend du paramètre de couplage en champ électrique θ (il existe aussi une très légère variation en fonction de n dont nous ne tenons pas compte dans ce calcul). Tous ces coefficients sont réels car l'opérateur Stark est réel symétrique dans la base de départ. Des expressions analogues sont obtenues pour les états $|np_{1/2}(F), m_j = \pm 1/2\rangle$ ou $|np_{3/2}(F), m_j = \pm 3/2\rangle$ (pour ce dernier, les coefficients a_{ns} et $a_{(n+1)s}$ sont nuls).

Chacun des éléments de matrice du couplage dipôle-dipôle dans la base des 4 états de départ est de la forme :

$$\langle np_j(F), m_{j1}; np_j(F), m_{j2} | V_{dd} | np_j(F), m_{j3}; np_j(F), m_{j4} \rangle$$

Le calcul de ces éléments de matrice fait intervenir une somme de termes donnés par l'expression (A.3). Finalement, l'opérateur dipôle-dipôle s'écrit en première approximation, dans cette base:

$$\begin{aligned} V_{dd} = & -\frac{g(\theta)}{R^3} \begin{bmatrix} \frac{1}{2}(1+3\cos(2\Theta)) & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \frac{1}{2}(1+3\cos(2\Theta)) & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \frac{1}{2}(1+3\cos(2\Theta)) & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \frac{1}{2}(1+3\cos(2\Theta)) \end{bmatrix} \\ & + h(\theta)A(\Theta, \phi) + h'(\theta)A'(\Theta, \phi) \\ & + l(\theta)B(\Theta, \phi) \\ & + m(\theta)C(\Theta, \phi) + m'(\theta)C'(\Theta, \phi) \\ & + \dots \end{aligned} \quad (\text{A.5})$$

avec :

$$\begin{aligned}
g(\theta) = & 4a_{p_j}^2 \left(a_{d_{3/2}}^2 \mu_{p_j d_{3/2}}^2 + a_{d_{5/2}}^2 \mu_{p_j d_{5/2}}^2 + a_{ns}^2 \mu_{p_j ns}^2 + a_{(n+1)s}^2 \mu_{p_j (n+1)s}^2 \right) \\
& + 4a_{p_{j'}}^2 \left(a_{d_{3/2}}^2 \mu_{p_{j'} d_{3/2}}^2 + a_{ns}^2 \mu_{p_{j'} ns}^2 + a_{(n+1)s}^2 \mu_{p_{j'} (n+1)s}^2 \right) \\
& + 8a_{p_{j'}}^2 \left(a_{ns} a_{(n+1)s} \mu_{p_{j'} (n+1)s} \mu_{p_{j'} ns} \right) \\
& + 8/(2\sqrt{3}) a_{p_j}^2 \left(a_{ns} a_{(n+1)s} \mu_{p_j (n+1)s} \mu_{p_j ns} + a_{d_{5/2}} \mu_{p_j d_{5/2}} \left(a_{(n+1)s} \mu_{p_j (n+1)s} + a_{ns} \mu_{p_j ns} \right) \right) \\
& + 8/(2\sqrt{3}) a_{p_j} a_{p_{j'}} a_{d_{3/2}} a_{d_{5/2}} \mu_{p_{j'} d_{3/2}} \mu_{p_j d_{5/2}}
\end{aligned}$$

où $\mu_{p_k l_{k'}}$ désigne l'élément de matrice dipolaire de la transition $|np_k, m_k\rangle \rightarrow |n'l_{k'}, m_k\rangle$, et où nous avons simplifié les notations en posant $j = 3/2$ et $j' = 1/2$.

$g(\theta)$ est le principal coefficient, l'opérateur dipôle-dipôle est donc principalement diagonal dans la base d'états propres du système non perturbé. Cependant, les matrices $A(\Theta, \phi)$, $A'(\Theta, \phi)$, $B(\Theta, \phi)$, $C(\Theta, \phi)$, $C'(\Theta, \phi)$, ... ne sont pas diagonales. L'importance des termes non diagonaux de l'opérateur dipôle-dipôle est donnée par l'ensemble des coefficients suivants :

$$\begin{aligned}
h(\theta) &= 8a_{p_{j'}}^2 (a_{d_{3/2}} \mu_{p_{j'} d_{3/2}} (a_{(n+1)s} \mu_{p_{j'} (n+1)s} + a_{ns} \mu_{p_{j'} ns})) \\
h'(\theta) &= 8a_{p_j}^2 (a_{d_{3/2}} \mu_{p_j d_{3/2}} (a_{(n+1)s} \mu_{p_j (n+1)s} + a_{ns} \mu_{p_j ns})) \\
l(\theta) &= 8a_{p_j}^2 a_{d_{3/2}} a_{d_{5/2}} \mu_{p_j d_{3/2}} \mu_{p_j d_{5/2}} \\
m(\theta) &= 8a_{p_j} a_{p_{j'}} a_{d_{5/2}} \mu_{p_j d_{5/2}} (a_{ns} \mu_{p_j ns} + a_{(n+1)s} \mu_{p_{j'} (n+1)s}) \\
m'(\theta) &= 8a_{p_j} a_{p_{j'}} a_{d_{3/2}} \mu_{p_{j'} d_{3/2}} (a_{ns} \mu_{p_j ns} + a_{(n+1)s} \mu_{p_j (n+1)s})
\end{aligned}$$

Un certain nombre d'autres éléments de matrice ne sont pas explicités car ils sont négligeables. En ne conservant que l'interaction la plus forte avec l'état d (interaction entre les états $np_{1/2}$ et $(n-1)d_{3/2}$ ou entre les états $np_{3/2}$ et $(n-1)d_{5/2}$), nous retrouvons l'expression utilisée au chap. 4.3 :

$$V_{dd} = -f(\theta) \frac{\mu_{pd}^2}{R^3} \begin{bmatrix} \frac{1}{2}(1 + 3 \cos(2\Theta)) & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \frac{1}{2}(1 + 3 \cos(2\Theta)) & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \frac{1}{2}(1 + 3 \cos(2\Theta)) & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \frac{1}{2}(1 + 3 \cos(2\Theta)) \end{bmatrix} \quad (\text{A.6})$$

où $f(\theta) = 4Ap(\theta)Ad(\theta)$ avec $Ap(\theta) = a_{p_{3/2}}^2$ et $Ad(\theta) = a_{d_{5/2}}^2$ pour les états $np_{3/2}$ et $Ap(\theta) = a_{p_{1/2}}^2$ et $Ad(\theta) = a_{d_{3/2}}^2$ pour les états $np_{1/2}$. μ_{pd} est l'élément de matrice dipolaire de transition $p \leftrightarrow d$ pour la transition considérée.

Avec cette approximation (nous y revenons dans la suite du paragraphe), chaque état est couplé uniquement avec lui-même et la base d'états propres du système est inchangée. L'interaction dipôle-dipôle occasionne seulement un déplacement des niveaux d'énergie, correspondant exactement au terme d'interaction dipôle-dipôle classique.

Une même expression est finalement obtenue pour l'interaction entre atomes dans les états $|np_{3/2}(F), m_j = \pm 1/2\rangle$ ou $|np_{1/2}(F), m_j = \pm 1/2\rangle$. Par contre, la matrice d'interaction n'est plus diagonale pour les états $|np_{3/2}(F), m_j = \pm 3/2\rangle$ et a fortiori si des interactions entre atomes dans des états m_j différents sont possibles. En champ électrique faible, les états $|np_{3/2}(F), m_j = \pm 1/2\rangle$ et $|np_{3/2}(F), m_j = \pm 3/2\rangle$ sont quasi-dégénérés, le calcul complet serait requis, mais nous ne l'avons pas développé. Il est d'autant plus requis lorsque des états de n élevés sont considérés car une séparation suffisante (12 MHz au moins pour notre expérience)

entre les niveaux $|np_{3/2}(F), m_j = \pm 1/2\rangle$ et $|np_{3/2}(F), m_j = \pm 3/2\rangle$, pour faire l'approximation précédente, est obtenue en champ électrique pour une valeur de $\tan \theta$ de plus en plus grande à mesure que n augmente. La séparation entre les raies d'excitation des états $70p_{3/2}, |m_j| = 1/2$ et $70p_{3/2}, |m_j| = 3/2$ n'est obtenue par exemple que pour un champ d'environ 0,1 V/cm (voir en comparaison le résultat de l'expérience sur la figure 2.10), soit $\tan \theta = 0.15$. Pour l'état $36p_{3/2}$, la séparation est obtenue pour $\tan \theta < 1V/cm$ (voir également la figure 2.23).

On peut, pour aller plus loin, essayer d'évaluer dans quelle mesure il peut être nécessaire de tenir compte des différentes corrections et notamment des coefficients non diagonaux de l'opérateur dipôle-dipôle. En fait, il se trouve que pour l'état Stark $np_{3/2}(F)$, les coefficients de la décomposition (A.4) sont, par ordre d'importance, les coefficients $a_{p_{3/2}}, a_{d_{5/2}}, a_{p_{1/2}}, a_{ns}$ et $a_{(n+1)s}$ et enfin $a_{d_{3/2}}$. Le coefficient $a_{d_{3/2}}$ augmente légèrement en fonction du champ électrique puis diminue rapidement en raison du déplacement Stark dû au couplage de l'état $np_{3/2}$ avec l'état $(n-1)d_{5/2}$. L'amplitude du coefficient $a_{d_{3/2}}$ reste donc très faible. Par ailleurs, on notera que a_{ns} et $a_{(n+1)s}$ sont de signe opposés et se compensent partiellement. Finalement, la correction non diagonale provient probablement des coefficients $l(\theta)$ et $m(\theta)$. $l(\theta)$ reste cependant très faible car il fait intervenir le coefficient $a_{d_{3/2}}$ et le moment dipolaire $\mu_{p_{3/2}d_{3/2}}$ lui aussi assez petit par rapport au moment dipolaire $\mu_{p_{3/2}d_{5/2}}$. $m(\theta)$ est aussi près d'un facteur 10 inférieur à la somme des corrections diagonales ($m(\theta)$ est à comparer au terme de correction diagonale $8/(2\sqrt{3})a_{p_j}^2 a_{d_{5/2}} \mu_{p_j d_{5/2}} (a_{(n+1)s} \mu_{p_j(n+1)s} + a_{ns} \mu_{p_j(ns)})$ dans l'expression de $g(\theta)$). Ces corrections diagonales peuvent être rajoutées dans l'expression (A.6) pour plus de précision mais elles restent elles-même au total au moins 10 fois inférieures au terme principal (A.6).

Pour ce qui est de l'état Stark $np_{1/2}(F)$, le coefficient $a_{d_{3/2}}$ n'est plus du tout négligeable (bien au contraire). Il apparaît donc un certain nombre de corrections non diagonales, certes beaucoup plus petites que le terme principal, mais probablement du même ordre de grandeur que les différentes corrections diagonales.

Nous avons finalement justifié que l'interaction dipôle-dipôle en champ électrique se résume en bonne approximation (pour un champ suffisamment élevé pour les états $np_{3/2}$ et quel que soit le champ électrique tant que ne sont pas considérées d'éventuelles corrections pour les états $np_{1/2}$) à un simple décalage d'énergie. Ceci valide le modèle développé pour décrire le blocage dipolaire en champ électrique.

A.4 Interaction dipôle-dipôle à résonance de Förster

Cette section retrouve les résultats exposés au chap. 4.4, notamment les différents états propres caractérisant la résonance de Förster $|np_{3/2}, |m_j| = 1/2; np_{3/2}, |m_j| = 1/2\rangle \leftrightarrow |ns_{1/2}, |m_j| = 1/2; (n+1)sp_{3/2}, |m_j| = 1/2\rangle$ (cf Fig. (4.30) et (4.31) p. 193). Dans cette description, comme il a été précisé au chap. 4.4, l'espace est limité au sous-espace formé par les états $|p_+p_+\rangle, |p_-p_-\rangle, |p_+p_-\rangle$ et $|p_-p_+\rangle$ ainsi que les états symétriques $|s_+s'_+\rangle, |s_-s'_-\rangle, |s_+s'_-\rangle$ et $|s'_-s_+\rangle$ (dans un système de deux atomes, seuls les états symétriques $|ss'\rangle \equiv \frac{1}{\sqrt{2}}(|ns(n+1)s\rangle + |(n+1)sns\rangle)$ sont couplés par interaction dipôle-dipôle aux états pp , les états antisymétriques ne sont pas couplés). Le couplage en champ est supposé négligeable pour les champs électriques utilisés (le couplage en champ est tel que $\tan^2 \theta < 0.2$ pour $n > 30$ au niveau des résonances de Förster. En considérant que $\mu_{ps} \approx 0.7\mu_{pd}$, le couplage en champ reste au moins 3 fois inférieur au couplage obtenu à résonance de Förster). Par ailleurs, les états $|np_{3/2}, m_j = \pm 3/2\rangle$ ne sont pas considérés dans le calcul: cette hypothèse n'est valide que pour $n < 39$.

La matrice des couplages dipôle-dipôle V_{dd} est donc calculée dans cette base 8×8 , chacun des éléments de matrice étant évalué avec l'expression A.3.

Cette matrice est la suivante :

$$V_{dd} = \sqrt{2} \frac{\mu_{ps}^2}{R^3} \begin{bmatrix} \Delta_r & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \Delta_r & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \Delta_r & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \Delta_r & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \frac{1}{2}(1+3\cos[2\Theta]) & -\frac{3}{2}e^{-i\phi}\cos[\Theta]\sin[\Theta] & \frac{3}{2}e^{-i\phi}\cos[\Theta]\sin[\Theta] & -\frac{3}{4}e^{-2i\phi}\sin[\Theta]^2 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \frac{3}{2}e^{i\phi}\cos[\Theta]\sin[\Theta] & \frac{1}{2}(1+3\cos[2\Theta]) & \frac{1}{8}(-1-3\cos[2\Theta]) & \frac{3}{2}e^{-i\phi}\cos[\Theta]\sin[\Theta] & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ -\frac{3}{2}e^{i\phi}\cos[\Theta]\sin[\Theta] & \frac{1}{8}(-1-3\cos[2\Theta]) & \frac{1}{2}(1+3\cos[2\Theta]) & -\frac{3}{2}e^{-i\phi}\cos[\Theta]\sin[\Theta] & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ -\frac{3}{4}e^{2i\phi}\sin[\Theta]^2 & -\frac{3}{2}e^{i\phi}\cos[\Theta]\sin[\Theta] & \frac{3}{2}e^{i\phi}\cos[\Theta]\sin[\Theta] & \frac{1}{2}(1+3\cos[2\Theta]) & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \\ + \sqrt{2} \frac{\mu_{ps}^2}{R^3} \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{1}{2}(1+3\cos[2\Theta]) & \frac{3}{2}e^{-i\phi}\cos[\Theta]\sin[\Theta] & -\frac{3}{2}e^{-i\phi}\cos[\Theta]\sin[\Theta] & -\frac{3}{4}e^{-2i\phi}\sin[\Theta]^2 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -\frac{3}{2}e^{i\phi}\cos[\Theta]\sin[\Theta] & \frac{1}{2}(1+3\cos[2\Theta]) & \frac{1}{8}(-1-3\cos[2\Theta]) & -\frac{3}{2}e^{-i\phi}\cos[\Theta]\sin[\Theta] & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{3}{2}e^{i\phi}\cos[\Theta]\sin[\Theta] & \frac{1}{8}(-1-3\cos[2\Theta]) & \frac{1}{2}(1+3\cos[2\Theta]) & \frac{3}{2}e^{-i\phi}\cos[\Theta]\sin[\Theta] & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -\frac{3}{4}e^{2i\phi}\sin[\Theta]^2 & \frac{3}{2}e^{i\phi}\cos[\Theta]\sin[\Theta] & -\frac{3}{2}e^{i\phi}\cos[\Theta]\sin[\Theta] & \frac{1}{2}(1+3\cos[2\Theta]) & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$$

Le coefficient $\sqrt{2}$ provient ce que nous ne considérons que les états $|ss'\rangle$ symétriques. μ_{ps} est le moment dipolaire de la transition $|ns_{1/2}, |m_j| = 1/2\rangle \rightarrow |np_{3/2}, |m_j| = 1/2\rangle$, considéré comme égal au moment dipolaire de la transition $|(n+1)s_{1/2}, |m_j| = 1/2\rangle \rightarrow |np_{3/2}, |m_j| = 1/2\rangle$. Δ_r est le décalage entre les niveaux d'énergie des états non perturbés $|pp\rangle$ et $|ss'\rangle$. Le niveau d'énergie de l'état $|ss'\rangle$ varie très peu en champ électrique, il est donc pris comme référence. La variation du niveau d'énergie de l'état $|pp\rangle$ est en général à peu près linéaire avec le champ électrique F à l'échelle de la résonance de Förster. Le calcul de la Fig. (4.30) est effectué en supposant $\Delta_r \propto -F$.

Les niveaux d'énergie propres donnés par la diagonalisation du système sont représentés à résonance de Förster en fonction du paramètre Θ Fig. 4.31 p. 193 et pour deux angles Θ en fonction du champ électrique Fig. 4.30. 2 niveaux sont d'énergie $\pm \frac{3\sqrt{2}}{8} \frac{\mu_1 \mu_2}{R^3} |1 + 3 \cos 2\Theta|$ (avec $\mu_1 = \mu_{sp}$ et $\mu_2 = \mu_{s'p}$), 2 autres d'énergie $\pm \frac{\sqrt{2}}{8} \frac{\mu_1 \mu_2}{R^3} |7 + 9 \cos 2\Theta|$. Ces 4 états ont un comportement relativement similaire en fonction de Θ et il existe des angles pour lesquels l'interaction dipôle-dipôle est nulle. Les autres niveaux dépendent peu du champ électrique mais sont décalés de manière importante par l'interaction, de $1,5 \times \frac{\mu_{sp}^2}{R^3}$ à $3 \times \frac{\mu_{sp}^2}{R^3}$ (leur comportement est relativement similaire en fonction de Θ). Comme attendu, aucun de ces états d'énergie ne dépend de ϕ .

Une moyenne angulaire de l'interaction dipôle-dipôle (sur Θ et ϕ et l'ensemble des états propres) donne :

$$W_m = \overline{|V_{dd}|} \approx 1,5 \frac{\mu_{sp}^2}{R^3} \quad (\text{A.7})$$

Cette moyenne ne tient pas compte du couplage laser avec l'état intermédiaire de l'excitation dans l'étude du blocage dipolaire, $\Psi_i \equiv \frac{1}{\sqrt{2}}(|7s \ np\rangle + |np \ 7s\rangle)$. Celui-ci est en fait couplé à parts égales d'une part avec les 4 états sans zéros d'interaction et d'autre part avec les 4 états avec zéros (et ceci quelque soit l'angle Θ), dont les comportements sont assez similaires en fonction de Θ . Une moyenne tenant compte du couplage avec l'état Ψ_i donnerait un résultat proche du résultat (A.7).

Annexe B

Distributions spatiales de champ électrique

B.1 Introduction

Deux points sont développés dans cette annexe. Le premier est le calcul de la distribution spatiale des ions et du champ électrique en présence d'explosion coulombienne et d'un champ électrique externe suivant le résultat établi dans l'article [Kaplan et al., 2003]. Le deuxième concerne le calcul spécifique du champ électrique lorsque les ions sont formés de manière continue par le laser TiSa pendant l'excitation. Le cas plus compliqué d'une ionisation par collisions entre atomes de Rydberg n'est pas abordé. C'est un problème plus compliqué où le nombre d'ions formés dépend du nombre d'atomes excités qui lui-même dépend de la distribution spatiale des ions.

B.2 Distribution spatiale du champ électrique après explosion coulombienne

Dans la section 3.2.3, il est établi que la trajectoire d'un ion $\vec{r}(t) = (r(t), \Theta(t), \phi(t))$ est radiale et vérifie la relation fondamentale de la dynamique :

$$\frac{D^2 r}{Dt^2} = \frac{e^2 N(r)}{mr^2} \quad (\text{B.1})$$

L'hypothèse émise est que le nombre d'ions $N(r(t))$ à l'intérieur de la boule de rayon $r(t)$ est constant, i.e. $N(r(t)) = N(r_0)$ avec $r_0 = r(0)$.

En multipliant chaque membre par Dr/Dt puis en intégrant cette équation, il vient :

$$\frac{1}{2} \left(\frac{Dr}{Dt} \right)^2 = \frac{R_0^3 N(r_0)}{N_t t_0^2} \left(\frac{1}{r_0} - \frac{1}{r} \right) \quad (\text{B.2})$$

avec $R_0 = \sigma$ le rayon du nuage gaussien, $t_0 = \frac{1}{q} \sqrt{\frac{4\pi\epsilon_0 m R_0^3}{N_t}}$, N_t étant le nombre total d'ions.

En récrivant l'équation précédente, $\frac{D(\frac{r}{r_0})}{\sqrt{1-\frac{t_0}{r}}} = D(\frac{t}{t_0}) \sqrt{\frac{2R_0^3 N(r_0)}{r_0^3 N_t}}$, l'équation de la trajectoire se met sous la forme d'une équation implicite :

$$\sqrt{\frac{r}{r_0} \left(\frac{r}{r_0} - 1 \right)} + \ln \left(\sqrt{\frac{r}{r_0}} + \sqrt{\frac{r}{r_0} - 1} \right) = \frac{t}{t_0} \sqrt{\frac{2N(r_0)R_0^3}{N_t r_0^3}} \quad (\text{B.3})$$

La densité d'ions en r à l'instant t $\rho(r(t))$ se déduit du fait que $4\pi r^2 \rho(r) Dr = 4\pi r_0^2 \rho(r_0) Dr_0$, soit en dérivant par rapport à r_0 l'équation de la trajectoire :

$$\rho(r(t)) = \rho(r_0) \left(\frac{r_0}{r} \right)^2 \frac{Dr_0}{Dr} \quad (\text{B.4})$$

Le champ électrique en $r(t)$ est quant à lui simplement donné par :

$$E(r(t)) = \frac{eN(r_0)}{r^2} \quad (\text{B.5})$$

Pour chaque valeur initiale r_0 , il existe une et une seule valeur $r(t)$, et réciproquement. Une interpolation des courbes $\rho(r(t))$ et $E(r(t))$ donne le résultat en tout point.

En présence d'un champ électrique externe \vec{E}_{ext} et du champ \vec{E}_1 créé par l'ensemble des autres ions, d'après le principe d'addition des champs électriques, l'équation de la dynamique s'écrit :

$$\frac{D^2 \vec{r}}{Dt^2} = \frac{e\vec{E}_1}{m} + \frac{e\vec{E}_{ext}}{m} \quad (\text{B.6})$$

En posant tout simplement $\vec{r}' = \vec{r} - Z(t)\vec{u}_z$ où $Z(t)\vec{u}_z$ est le déplacement sous l'effet du champ externe dirigé suivant l'axe z , nous sommes ramenés à calculer l'équation B.1 par rapport au centre de masse du nuage d'ions.

B.3 Photoionisation par un laser continu

Au chapitre 3.3.3, nous avons montré que le nombre d'atomes photoionisés dans la boule de rayon de r pendant dt au temps τ , $n_{\tau p}(r, \tau)$ étant la densité d'atomes dans l'état $7p$ s'écrit :

$$dN_i(r, \tau) = \sigma_I \phi d\tau \int_0^r n_{\tau p}(r'', \tau) 4\pi r''^2 dr'' \quad (\text{B.7})$$

Sous l'effet d'un champ externe, cette distribution d'ions se déplace.

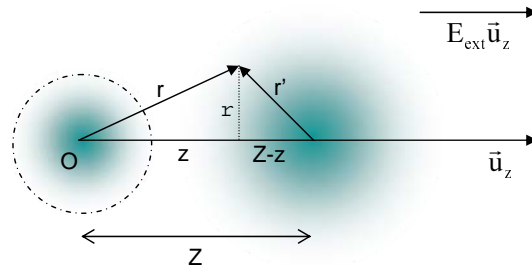


FIG. B.1 – Coordonnées utilisé pour décrire le champ créé par un nuage après déplacement sous l'effet d'un champ électrique externe et éventuellement expansion.

Après un temps $t - \tau$ elle crée en \vec{r} un champ $d\vec{E}(\vec{r}) = q_i \frac{dN_i(r', \tau)}{4\pi\epsilon_0 r'^2} \vec{u}_{r'}$, avec $\vec{r}' = \vec{r} - Z(t - \tau)\vec{u}_z$. En négligeant l'explosion coulombienne, le champ total au temps t est simplement l'addition de tous les champs créés à un instant τ et s'étant déplacés pendant $t - \tau$. Nous obtenons :

$$\vec{E}_t(\vec{r}, t) = E_{ext}\vec{u}_z + \int_0^t q_i \frac{dN_i(r'(\tau), \tau)}{4\pi\epsilon_0 r'(\tau)^2} \vec{u}_{r'(\tau)} d\tau \quad (\text{B.8})$$

En projetant correctement suivant les axes \vec{u}_z et \vec{u}_ρ en coordonnées cylindriques (cf Fig. B.1), nous retrouvons facilement la distribution spatiale du champ électrique. En particulier :

$$r'(\tau) = \sqrt{\rho^2 + (z - Z(t - \tau))^2}$$

$$\vec{u}_{r'(\tau)} = \frac{z - Z(t - \tau)}{r'(\tau)} \vec{u}_z + \frac{\rho}{r'(\tau)} \vec{u}_\rho$$

L'ensemble des calculs numériques est effectué en supposant que les volumes d'excitation laser sont gaussiens. Ils se généraliseraient facilement à un volume de géométrie cylindrique.

Articles

Les articles publiés au cours de cette thèse ne sont pas accessibles dans cette version du manuscrit. Les articles principaux, à savoir les articles concernant l'étude des taux de collisions atomes-molécules dans un piège dipolaire [Zahzam et al., 2006], l'étude de cohérence à résonance de Förster [Mudrich et al., 2005] et la démonstration du blocage dipolaire à résonance de Förster [Vogt et al., 2006], peuvent être retrouvés à l'adresse <http://prl.aps.org/>.

Bibliographie

- [Abrams and Lloyd, 1997] Abrams, D. S. and Lloyd, S. (1997). Simulation of Many-Body Fermi Systems on a Universal Quantum Computer. *Phys. Rev. Lett.*, 79 :2586–2589.
- [Afrousheh et al., 2004] Afrousheh, K., Bohlouli-Zanjani, P., Vagale, D., Mugford, A., Fedorov, M., and Martin, J. D. (2004). Spectroscopic Observation of Resonant Electric Dipole-Dipole Interactions between Cold Rydberg Atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 93(23) :233001.
- [Anderson et al., 2002] Anderson, W. R., Robinson, M. P., Martin, J. D. D., and Gallagher, T. F. (2002). Dephasing of resonant energy transfer in a cold rydberg gas. *Phys. Rev. A*, 65 :063404.
- [Anderson et al., 1998] Anderson, W. R., Veale, J. R., and Gallagher, T. F. (1998). Resonant dipole-dipole energy transfer in a nearly frozen rydberg gas. *Phys. Rev. Lett.*, 80 :249.
- [Aspect, 2005] Aspect, A. (2005). Optique quantique 1: Lasers. Cours à l’Ecole Polytechnique-Département de physique.
- [Barbier and Cheret, 1987] Barbier, L. and Cheret, M. (1987). Experimental study of Penning and Hornbeck-Molnar ionisation of rubidium atoms excited in a high s or d level. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 20 :1229–1248.
- [Bates and Daamgard, 1949] Bates, D. R. and Daamgard, A. (1949). . *Phil. Trans. R. Soc. A*, 242 :101.
- [Bennett and DiVincenzo, 2000] Bennett, C. H. and DiVincenzo, D. P. (2000). Quantum information and computation. *Nature*, 404 :247–255.
- [Bethe and Salpeter, 1957] Bethe, H. A. and Salpeter, E. E. (1957). *Quantum Mechanics of One- and Two-Electron Atoms*. Quantum Mechanics of One- and Two-Electron Atoms, New York : Academic Press, 1957.
- [Bleton, 1996] Bleton, A. (1996). Contribution expérimentale et théorique à l’étude de la photoassociation d’atomes de césium refroidis dans un piège magnéto-optique. PhD Thesis, Université Paris XI.
- [Boisseau et al., 2002] Boisseau, C., Simbotin, I., and Côté, R. (2002). Macrodimers : Ultra-long Range Rydberg Molecules. *Phys. Rev. Lett.*, 88(13) :133004.
- [Boulmer et al., 1987] Boulmer, J., Camus, P., and Pillet, P. (1987). Double-Rydberg spectroscopy of the barium atom. *Journal of the Optical Society of America B Optical Physics*, 4 :805–810.
- [Brennen et al., 1999] Brennen, G. K., Caves, C. M., Jessen, P. S., and Deutsch, I. H. (1999). Quantum Logic Gates in Optical Lattices. *Phys. Rev. Lett.*, 82 :1060–1063.
- [Brune et al., 1996] Brune, M., Schmidt-Kaler, F., Maali, A., Dreyer, J., Hagley, E., Raimond, J. M., and Haroche, S. (1996). Quantum Rabi Oscillation : A Direct Test of Field Quantization in a Cavity. *Phys. Rev. Lett.*, 76 :1800–1803.

- [Bussery and Aubert-Frécon, 1985] Bussery, B. and Aubert-Frécon, M. (1985). Multipolar long-range electrostatic, dispersion, and induction energy terms for the interactions between two identical alkali atoms Li, Na, K, Rb, and Cs in various electronic states. *J. Chem. Phys.*, 82 :3224–3234.
- [Calarco et al., 2000] Calarco, T., Hinds, E. A., Jaksch, D., Schmiedmayer, J., Cirac, J. I., and Zoller, P. (2000). Quantum gates with neutral atoms : Controlling collisional interactions in time-dependent traps. *Phys. Rev. A*, 61(2) :022304.
- [Carroll et al., 2004] Carroll, T. J., Claringbould, K., Goodsell, A., Lim, M. J., and Noel, M. W. (2004). Angular Dependence of the Dipole-Dipole Interaction in a Nearly One-Dimensional Sample of Rydberg Atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 93(15) :153001.
- [Castin, 2001] Castin, Y. (2001). Course 1 : Bose-Einstein Condensates in Atomic Gases : Simple Theoretical Results. In Kaiser, R., Westbrook, C., and David, F., editors, *Coherent atomic matter waves. Editors : R. Kaiser, C. Westbrook, F. David, Les Houches Summer School, vol. 72, p.1*, page 1.
- [Chapelet et al., 1982] Chapelet, M., Boulmer, J., Gauthier, J.-C., and Delpech, J.-F. (1982). Collisional angular momentum mixing of very high ($20 \leq n \leq 46$) Rydberg d states of Na by Ar, Kr and Xe. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 15 :3455–3462.
- [Chardonnet, 1994] Chardonnet, C. (1994). *Les lasers et leurs applications scientifiques et médicales*. Les éditions de physique.
- [Chen et al., 2004] Chen, Y. C., Simien, C. E., Laha, S., Gupta, P., Martinez, Y. N., Mickelson, P. G., Nagel, S. B., and Killian, T. C. (2004). Electron Screening and Kinetic-Energy Oscillations in a Strongly Coupled Plasma. *Phys. Rev. Lett.*, 93(26) :265003.
- [Claessens et al., 2005] Claessens, B. J., van der Geer, S. B., Taban, G., Vredendregt, E. J., and Luiten, O. J. (2005). Ultracold Electron Source. *Phys. Rev. Lett.*, 95(16) :164801.
- [Cohen-Tannoudji, 1992] Cohen-Tannoudji, C. (1992). Laser cooling and trapping of neutral atoms : theory. *Phys. Rep.*, 219 :153–164.
- [Cohen-Tannoudji, 1977] Cohen-Tannoudji, C. (1976-1977). Interactions résonnantes ou quasi-résonnantes d'un atome ou d'une molécule avec une ou plusieurs ondes électromagnétiques intenses et monochromatiques. Cours au Collège de France.
- [Cohen-Tannoudji et al., 2000] Cohen-Tannoudji, C., Diu, B., and Laloë, F. (2000). *Mécanique quantique*. Editions Hermann, Paris.
- [Comparat, 1999] Comparat, D. (1999). Formation de molécules froides par photoassociation d'atomes de césium froids. mise en évidence de forces à longue portée entre atomes froids excités de césium. PhD Thesis, Université d'Orsay Paris XI.
- [Comparat et al., 2005] Comparat, D., Vogt, T., Zahzam, N., Mudrich, M., and Pillet, P. (2005). Star cluster dynamics in a laboratory : electrons in an ultracold plasma. *Mon. Not. R. astr. Soc.*, 361 :1227–1242.
- [Cozzini et al., 2005] Cozzini, M., Calarco, T., Recati, A., and Zoller, P. (2005). Fast Rydberg gates without dipole blockade via quantum control. *ArXiv Quantum Physics e-prints*.
- [Dalgarno and Davinson, 1966] Dalgarno, A. and Davinson, W. D. (1966). The Calculation of Van der Waals Interactions. *Advan. At. Mol. Phys.*, 2 :1.
- [de Oliveira et al., 2003] de Oliveira, A. L., Mancini, M. W., Bagnato, V. S., and Marcassa, L. G. (2003). Rydberg Cold Collisions Dominated by Ultralong Range Potential. *Phys. Rev. Lett.*, 90(14) :143002.

- [Delcroix and Bers, 1994] Delcroix, J. L. and Bers, A. (1994). *Physique des plasmas*. EDP Science.
- [Delpech and Gauthier, 1972] Delpech, J. F. and Gauthier, J. C. (1972). Electron-ion recombination in cryogenic helium plasmas. *Phys. Rev. A*, 6(5) :1932–1939.
- [Dexter, 1953] Dexter, T. (1953). A theory of sensitized luminescence in solids. *Journal of Chemical Physics*, 21 :836–850.
- [Diedrich et al., 1987] Diedrich, F., Peik, E., Chen, J. M., Quint, W., and Walther, H. (1987). Observation of a phase transition of stored laser-cooled ions. *Phys. Rev. Lett.*, 59(26) :2931–2934.
- [Drag, 2000] Drag, C. (2000). Photoassociation d'atomes de césium froids. formation et caractérisation d'un nuage froid de molécules diatomiques de césium. PhD Thesis, Université Paris XI.
- [Dumke et al., 2002] Dumke, R., Volk, M., Müther, T., Buchkremer, F. B., Birkl, G., and Ertmer, W. (2002). Micro-optical Realization of Arrays of Selectively Addressable Dipole Traps : A Scalable Configuration for Quantum Computation with Atomic Qubits. *Phys. Rev. Lett.*, 89(9) :097903.
- [Dutta et al., 2000] Dutta, S. K., Feldbaum, D., and Raithel, G. (2000). Spectroscopic electric-field measurement in laser-excited plasmas. *physics/0007004*.
- [Dutta et al., 2001] Dutta, S. K., Feldbaum, D., Walz-Flannigan, A., Guest, J. R., and Raithel, G. (2001). High-angular-momentum states in cold rydberg gases. *Phys. Rev. Lett.*, 86(18) :3993.
- [Eckert et al., 2002] Eckert, K., Mompert, J., Yi, X. X., Schliemann, J., Bruß, D., Birkl, G., and Lewenstein, M. (2002). Quantum computing in optical microtraps based on the motional states of neutral atoms. *Phys. Rev. A*, 66(4) :042317.
- [Fabre and Haroche, 1983] Fabre, C. and Haroche, S. (1983). *Spectroscopy of one- and two-electron Rydberg atoms*, page 117. Rydberg States of Atoms and Molecules, edited by R.F. Stebbings and F.B. Dunning. Cambridge : Cambridge University Press, 1983., p.117.
- [Fano, 1970] Fano, U. (1970). Quantum Defect Theory of l Uncoupling in H_2 as an Example of Channel-Interaction Treatment. *Phys. Rev. A*, 2 :353–365.
- [Farley et al., 1977] Farley, J., Tsekeris, P., and Gupta, R. (1977). Hyperfine-structure measurements in the Rydberg S and P states of rubidium and cesium. *Phys. Rev. A*, 15 :1530–1536.
- [Farooqi et al., 2003] Farooqi, S. M., Tong, D., Krishnan, S., Stanojevic, J., Zhang, Y. P., Ensher, J. R., Estrin, A. S., Boisseau, C., Côté, R., Eyler, E. E., and Gould, P. L. (2003). Long-range molecular resonances in a cold rydberg gas. *Phys. Rev. Lett.*, 91 :183002.
- [Fioretti et al., 1999] Fioretti, A., " , D., Drag, C., Gallagher, T., and Pillet, P. (1999). Long-range forces between cold atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 82(9) :1839–1842.
- [Flannery et al., 2005] Flannery, M. R., Vrinceanu, D., and Ostrovsky, V. N. (2005). Long-range interaction between polar Rydberg atoms. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 38 :279.
- [Frey et al., 1994] Frey, M. T., Hill, S. B., Ling, X., Smith, K. A., Dunning, F. B., and Fabrikant, I. I. (1994). Inelastic electron-dipole-molecule scattering at sub-milli-electron-volt energies : Possible role of dipole-supported states. *Phys. Rev. A*, 50 :3124–3128.
- [Friedrich, 1998] Friedrich, H. (1998). *Theoretical Atomic Physics*. Springer.

- [Förster, 1948] Förster, T. (1948). Intermolecular energy migration and fluorescence. *Annalen der Physik*, 2 :55–75.
- [Förster, 1965] Förster, T. (1965). *Delocalized Excitation and Excitation Transfer*, pages 93–137. Modern Quantum Chemistry, Part II, edited by O. Sinanoglu : Academic Press, New York.
- [G. S. Agarwal, 1974] G. S. Agarwal (1974). Quantum statistical theories of spontaneous emission and their relation to other approaches. *Springer Tracts in Modern Physics*, 70.
- [Gallagher and Pritchard, 1989] Gallagher, A. and Pritchard, D. E. (1989). Exoergic collisions of cold Na^*-Na . *Phys. Rev. Lett.*, 63 :957–960.
- [Gallagher, 1983] Gallagher, T. F. (1983). *Interaction of Rydberg atoms with blackbody radiation*, page 165. Rydberg States of Atoms and Molecules, edited by R.F. Stebbings and F.B. Dunning. Cambridge : Cambridge University Press, 1983., p.73.
- [Gallagher, 1992] Gallagher, T. F. (1992). Resonant collisional energy transfer between rydberg atoms. *Physics Reports*, 210 :319.
- [Gallagher, 1994] Gallagher, T. F. (1994). *Rydberg Atoms*. Cambridge University Press, Cambridge.
- [Gallagher and Cooke, 1979] Gallagher, T. F. and Cooke, W. E. (1979). Interactions of Blackbody Radiation with Atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 42 :835–839.
- [Gao, 1993] Gao, B. (1993). Effects of Zeeman degeneracy on the steady-state properties of an atom interacting with a near-resonant laser field : Analytic results. *Phys. Rev. A*, 48 :2443–2448.
- [Gigosos et al., 2006] Gigosos, M. A., González, M. Á., and Konjević, N. (2006). On the Stark broadening of Sr^+ and Ba^+ resonance lines in ultracold neutral plasmas. *European Physical Journal D*, 40 :57–63.
- [Gilbert et al., 1983] Gilbert, S. L., Watts, R. N., and Wieman, C. E. (1983). Hyperfine-structure measurement of the $7s$ state of cesium. *Phys. Rev. A*, 27(1) :581–582.
- [Gounand, 1979] Gounand, F. (1979). calculation of radial matrix elements and radiative lifetimes for highly excited states of alkali atoms using the Coulomb approximation. *Le journal de physique*, 40 :457.
- [Goy et al., 1982] Goy, P., Raimond, J. M., Vitrant, G., and Haroche, S. (1982). Millimeter-wave spectroscopy in cesium Rydberg states. Quantum defects, fine- and hyperfine-structure measurements. *Phys. Rev. A*, 26 :2733–2742.
- [Greene et al., 2000] Greene, C. H., Dickinson, A. S., and Sadeghpour, H. R. (2000). Creation of polar and nonpolar ultra-long-range rydberg molecules. *Phys. Rev. Lett.*, 85 :2458–2461.
- [Griem, 1974] Griem, H. R. (1974). *Spectral line broadening by plasmas*. Pure and Applied Physics, New York : Academic Press, 1974.
- [Hahn, 2000] Hahn, Y. (2000). Density dependence of molecular autoionization in a cold gas. *J. Phys. B*, 33 :L655.
- [Hamaguchi et al., 1997] Hamaguchi, S., Farouki, R. T., and Dubin, D. H. E. (1997). Triple point of yukawa systems. *Phys. Rev. E*, 56(4) :4671–4682.
- [Hamilton et al., 2002] Hamilton, E. L., Greene, C. H., and Sadeghpour, H. R. (2002). LETTER TO THE EDITOR : Shape-resonance-induced long-range molecular Rydberg states. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 35 :L199–L206.

- [Hickman et al., 1983] Hickman, A. P., Olson, R. E., and Pascale, J. (1983). *Theoretical approaches to low-energy collisions of Rydberg atoms with atoms and ions*, page 187. Rydberg States of Atoms and Molecules, edited by R.F. Stebbings and F.B. Dunning. Cambridge : Cambridge University Press, 1983., p.187.
- [Hoogenraad and Noordam, 1998] Hoogenraad, J. H. and Noordam, L. D. (1998). Rydberg atoms in far-infrared radiation fields. I. Dipole matrix elements of H, Li and Rb. *Phys. Rev. A*, 57(6) :4533.
- [Hurst et al., 1979] Hurst, G. S., Payne, M. G., Kramer, S. D., and Young, J. P. (1979). Resonance ionization spectroscopy and one-atom detection. *Reviews of Modern Physics*, 51 :767–820.
- [Jaksch et al., 1999] Jaksch, D., Briegel, H.-J., Cirac, J. I., Gardiner, C. W., and Zoller, P. (1999). Entanglement of Atoms via Cold Controlled Collisions. *Phys. Rev. Lett.*, 82 :1975–1978.
- [Jaksch et al., 2000] Jaksch, D., Cirac, J. I., Zoller, P., Rolston, S. L., Côté, R., and Lukin, M. D. (2000). Fast Quantum Gates for Neutral Atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 85 :2208–2211.
- [Ji Ina, 2004] Ji Ina, M. (2004). Features of Nearest Neighbors Distances in High-Dimensional Space. *Accessible sur le Web à l'adresse <http://www.cs.cas.cz/cgi-bin/extftp?ftp://ftp.cs.cas.cz/pub/reports/v913-04.pdf>*. Technical Report, Institute of Computer Science, Academy of Sciences of the Czech Republic.
- [Kaplan et al., 2003] Kaplan, A. E., Dubetsky, B. Y., and Shkolnikov, P. L. (2003). Shock Shells in Coulomb Explosions of Nanoclusters. *Phys. Rev. Lett.*, 91(14) :143401.
- [Kaplan et al., 2003] Kaplan, A. E., Dubetsky, B. Y., and Shkolnikov, P. L. (2003). Shock shells in coulomb explosions of nanoclusters. *Phys. Rev. Lett.*, 91(14) :143401.
- [Kennedy and Manson, 1972] Kennedy, D. J. and Manson, S. T. (1972). Photoionization of the Noble Gases : Cross Sections and Angular Distributions. *Phys. Rev. A*, 5 :227–247.
- [Khadjavi et al., 1968] Khadjavi, A., Lurio, A., and Happer, W. (1968). Stark Effect in the Excited States of Rb, Cs, Cd, and Hg. *Physical Review*, 167 :128–135.
- [Khuskivadze et al., 2002] Khuskivadze, A. A., Chibisov, M. I., and Fabrikant, I. I. (2002). Adiabatic energy levels and electric dipole moments of Rydberg states of Rb_2 and Cs_2 dimers. *Phys. Rev. A*, 66(4) :042709.
- [Killian et al., 1999] Killian, T. C., Kulin, S., Bergeson, S. D., Orozco, L. A., Orzel, C., and Rolston, S. L. (1999). Creation of an ultracold neutral plasma. *Phys. Rev. Lett.*, 83(23) :4776–4779.
- [Killian et al., 2001] Killian, T. C., Lim, M. J., Kulin, S., Dumke, R., Bergeson, S. D., and Rolston, S. L. (2001). Formation of rydberg atoms in an expanding ultracold neutral plasma. *Phys. Rev. Lett.*, 86(17) :3759.
- [Klapisch, 1971] Klapisch, M. (1971). A program for atomic wavefunction computations by the parametric potential method. *Computer Physics Communications*, 2 :239–260.
- [Kulin et al., 2000] Kulin, S., Killian, T. C., Bergeson, S. D., and Rolston, S. L. (2000). Plasma oscillation and expansion of an ultracold neutral plasma. *Phys. Rev. Lett.*, 85(2) :318.
- [Kuzmin and O'Neil, 2002a] Kuzmin, S. G. and O'Neil, T. M. (2002a). Numerical simulation of ultracold plasmas. *Phys. plasmas*, 9(9) :3743.
- [Kuzmin and O'Neil, 2002b] Kuzmin, S. G. and O'Neil, T. M. (2002b). Numerical simulation of ultracold plasmas : How rapid intrinsic heating limits the development of correlation. *Phys. Rev. Lett.*, 88(6) :065003.

- [Laburthe Tolra, 2001] Laburthe Tolra, B. (2001). Atomes, molécules et plasmas ultra-froids : -transition d'un gaz de rydberg gelé vers un plasma ultra-froid, -contrôle de collisions de photoassociation dans des schémas de résonance de feshbach et de transition raman stimulée. PhD Thesis, Université d'Orsay Paris XI.
- [Lahiri and Manson, 1986] Lahiri, J. and Manson, S. T. (1986). Oscillator-strength distributions for discrete and continuum transitions of excited states of cesium. *Phys. Rev. A*, 33(5).
- [Leibfried et al., 2003] Leibfried, D., DeMarco, B., Meyer, V., Lucas, D., Barrett, M., Britton, J., Itano, W. M., Jelenković, B., Langer, C., Rosenband, T., and Wineland, D. J. (2003). Experimental demonstration of a robust, high-fidelity geometric two ion-qubit phase gate. *Nature*, 422 :412–415.
- [Lenz et al., 1993] Lenz, G., Meystre, P., and Wright, E. M. (1993). Nonlinear atom optics. *Phys. Rev. Lett.*, 71 :3271–3274.
- [Lewis and Margenau, 1958] Lewis, M. and Margenau, H. (1958). Statistical broadening of spectral lines emitted by ions in a plasma. *Phys. Rev.*, 109(3) :842–845.
- [Li et al., 2003] Li, W., Mourachko, I., Noel, M. W., and Gallagher, T. F. (2003). Millimeter-wave spectroscopy of cold rb rydberg atoms in a magneto-optical trap : Quantum defects of the ns, np, and nd series. *Phys. Rev. A (Atomic, Molecular, and Optical Physics)*, 67(5) :052502.
- [Li et al., 2004] Li, W., Noel, M. W., Robinson, M. P., Tanner, P. J., Gallagher, T. F., Comparat, D., Laburthe Tolra, B., Vanhaecke, N., Vogt, T., Zahzam, N., Pillet, P., and Tate, D. A. (2004). Evolution dynamics of a dense frozen rydberg gas to plasma. *Phys. Rev. A*, 70(4) :042713.
- [Li et al., 2005] Li, W., Tanner, P. J., and Gallagher, T. F. (2005). Dipole-Dipole Excitation and Ionization in an Ultracold Gas of Rydberg Atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 94(17) :173001.
- [Liebisch et al., 2005] Liebisch, T. C., Reinhard, A., Berman, P. R., and Raithel, G. (2005). Atom Counting Statistics in Ensembles of Interacting Rydberg Atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 95(25) :253002.
- [Liu and Rost, 2006] Liu, L. H. C. and Rost, J. M. (2006). Polyatomic molecules formed with a Rydberg atom in an ultracold environment. *European Physical Journal D*.
- [Lowell, 1998] Lowell, J. R. (1998). Dipole-dipole interactions in a frozen rydberg gas. PhD Thesis, University of Virginia.
- [Lukin et al., 2001] Lukin, M. D., Fleischhauer, M., Cote, R., Duan, L. M., Jaksch, D., Cirac, J. I., and Zoller, P. (2001). Dipole Blockade and Quantum Information Processing in Mesoscopic Atomic Ensembles. *Phys. Rev. Lett.*, 87(3) :037901.
- [Maragò et al., 1998] Maragò, O., Ciampini, D., Fuso, F., Arimondo, E., Gabbanini, C., and Manson, S. T. (1998). Photoionization cross sections for excited laser-cooled cesium atoms. *Phys. Rev. A*, 57 :4110.
- [Marinescu, 1997] Marinescu, M. (1997). Dispersion coefficients for the np - np asymptote of homonuclear alkali-metal dimers. *Phys. Rev. A*, 56(6) :4764–4773.
- [Marinescu and Dalgarno, 1995] Marinescu, M. and Dalgarno, A. (1995). Dispersion forces and long-range electronic transition dipole moments of alkali-metal dimer excited states. *Phys. Rev. A*, 52 :311–328.
- [Marinescu et al., 1994] Marinescu, M., Sadeghpour, H. R., and Dalgarno, A. (1994). Dispersion coefficients for alkali-metal dimers. *Phys. Rev. A*, 49 :982–988.

- [McClellan and Swain, 1977] McClellan, W. A. and Swain, S. (1977). The theory of the optical Autler-Townes effect in sodium. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 10 :L143–L147.
- [Merkle and Powell, 1979] Merkle, L. D. and Powell, R. C. (1979). Energy transfer among Nd^{3+} ions in garnet crystals. *Phys. Rev. B*, 20 :75–84.
- [Metcalf and van der Straten, 1994] Metcalf, H. and van der Straten, P. (1994). Cooling and trapping of neutral atoms. *Phys. Rep.*, 244 :203–286.
- [Metcalf and van der Straten, 2003] Metcalf, H. J. and van der Straten, P. (2003). Laser cooling and trapping of atoms. *Optical Society of America Journal B, Volume 20, Issue 5, pp. 887-908 (2003)*, 20 :887–908.
- [Migdalek and Kim, 1998] Migdalek, J. and Kim, Y.-K. (1998). Core polarization and oscillator strength ratio anomaly in potassium, rubidium and caesium. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 31 :1947–1960.
- [Mourachko, 1999] Mourachko, I. (1999). Contribution expérimentale et théorique à l'étude de ces effets à n corps dans un gaz de rydberg gelé de césium. PhD Thesis, Université Paris XI.
- [Mourachko et al., 1998] Mourachko, I., Comparat, D., de Tomasi, F., Fioretti, A., Nosbaum, P., Akulin, V. M., and Pillet, P. (1998). Many-body effects in a frozen rydberg gas. *Phys. Rev. Lett.*, 80 :253.
- [Mourachko et al., 2004] Mourachko, I., Li, W., and Gallagher, T. F. (2004). Controlled many-body interactions in a frozen Rydberg gas. *Phys. Rev. A*, 70(3) :031401.
- [Msezane, 1983] Msezane, A. Z. (1983). Photoionisation of Cs 6p and Cs 7p subshells. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 16 :L489–L493.
- [Mudrich et al., 2005] Mudrich, M., Zahzam, N., Vogt, T., Comparat, D., and Pillet, P. (2005). Back and Forth Transfer and Coherent Coupling in a Cold Rydberg Dipole Gas. *Phys. Rev. Lett.*, 95(23) :233002.
- [Norcross, 1973] Norcross, D. W. (1973). Photoabsorption by Cesium. *Phys. Rev. A*, 7 :606–616.
- [Nosbaum et al., 1995] Nosbaum, P., Bleton, A., Cabaret, L., Yu, J., Gallagher, T. F., and Pillet, P. (1995). Anticrossing spectroscopy of Cs Rydberg states. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 28 :1707–1713.
- [Orvil Scully and Zubairy, 1997] Orvil Scully, M. and Zubairy, M. S. (1997). *Quantum Optics*. Quantum Optics, by Marlan Orvil Scully and Muhammad Suhail Zubairy, pp. 652. ISBN 0521435951. Cambridge, UK : Cambridge University Press, September 1997.
- [Osterwalder and Merkt, 1999] Osterwalder, A. and Merkt, F. (1999). Using High Rydberg States as Electric Field Sensors. *Phys. Rev. Lett.*, 82 :1831–1834.
- [Picque and Pinard, 1976] Picque, J. L. and Pinard, J. (1976). Direct observation of the Autler-Townes effect in the optical range. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 9 :L77–L81.
- [Pillet, 2005] Pillet, P. (2005). in *Decoherence, Entanglement and Information Protection in Complex Quantum Systems (pages 411-436)*, edited by V. M. Akulin et al., volume 189. NATO Sciences Series II.
- [Pillet et al., 1983] Pillet, P., Kachru, R., Tran, N. H., Smith, W. W., and Gallagher, T. F. (1983). Radiative collisions in a strong-field regime. *Phys. Rev. Lett.*, 50(22) :1763–1766.

- [Pillet et al., 1987] Pillet, P., Kachru, R., Tran, N. H., Smith, W. W., and Gallagher, T. F. (1987). Radiative Rydberg-atom-Rydberg-atom collisions in the strong-field regime. *Phys. Rev. A*, 36 :1132–1147.
- [Pohl et al., 2006] Pohl, T., Comparat, D., Zahzam, N., Vogt, T., Pillet, P., and Pattard, T. (2006). Use of Rydberg atoms to control electron temperatures in ultracold plasmas. *European Physical Journal D*, 40 :45–50.
- [Pohl and Pattard, 2006] Pohl, T. and Pattard, T. (2006). Electron ion recombination in strongly coupled cold plasmas under nonequilibrium conditions. *Journal of Physics A Mathematical General*, 39 :4571–4577.
- [Pohl et al., 2004a] Pohl, T., Pattard, T., and Rost, J. (2004a). Kinetic modelling and molecular dynamics simulation of ultracold neutral plasmas including ionic correlations. *Phys. Rev. A*, 70 :033416.
- [Pohl et al., 2004b] Pohl, T., Pattard, T., and Rost, J. (2004b). On the possibility of "correlation cooling" of ultracold ionic gases. *J. Phys. B*, 37 :L183.
- [Pohl et al., 2004c] Pohl, T., Pattard, T., and Rost, J. M. (2004c). Coulomb crystallization in expanding laser-cooled neutral plasmas. *Phys. Rev. Lett.*, 92 :155003.
- [Pohl et al., 2005] Pohl, T., Pattard, T., and Rost, J. M. (2005). Relaxation to Nonequilibrium in Expanding Ultracold Neutral Plasmas. *Phys. Rev. Lett.*, 94(20) :205003.
- [Protsenko et al., 2002] Protsenko, I. E., Raymond, G., Schlosser, N., and Grangier, P. (2002). Conditional quantum logic using two atomic qubits. *Phys. Rev. A*, 66(6) :062306.
- [Raimond et al., 1978] Raimond, J. M., Gross, M., Fabre, C., Haroche, S., and Stroke, H. H. (1978). Laser measurement of intensity ratio anomalies in principal series doublets of caesium Rydberg states : does the D_1 line vanish? . *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 11 :L765–L771.
- [Raimond et al., 1981] Raimond, J. M., Vitrant, G., and Haroche, S. (1981). Spectral line broadening due to the interaction between very excited atoms : 'the dense Rydberg gas' . *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 14 :L655–L660.
- [Rajesh and Periasamy, 2003] Rajesh, B. S. and Periasamy, A. (2003). Fluorescence resonance energy transfer (FRET) microscopy imaging of live cell protein localizations. *The Journal of Cell biology*, 160 :629–633.
- [Rauschenbeutel et al., 1999] Rauschenbeutel, A., Nogues, G., Osnaighi, S., Bertet, P., Brune, M., Raimond, J. M., and Haroche, S. (1999). Coherent Operation of a Tunable Quantum Phase Gate in Cavity QED. *Phys. Rev. Lett.*, 83 :5166–5169.
- [Rinneberg et al., 1985] Rinneberg, H., Neukammer, J., Jönsson, G., Hieronymus, H., König, A., and Vietzke, K. (1985). High n Rydberg atoms and external fields. *Phys. Rev. Lett.*, 55 :382–385.
- [Roberts et al., 2004] Roberts, J. L., Fertig, C. F., Lim, M. L., and Rolston, S. L. (2004). Electron temperature of ultracold plasmas. *Phys. Rev. Lett.*, 92 :253003.
- [Robicheaux, 2005] Robicheaux, F. (2005). Ionization due to the interaction between two Rydberg atoms. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 38 :333.
- [Robicheaux and Hanson, 2002] Robicheaux, F. and Hanson, J. D. (2002). Simulation of the expansion of an ultra-cold plasma. *Phys. Rev. Lett.*, 88(5) :055002.
- [Robicheaux and Hernández, 2005] Robicheaux, F. and Hernández, J. V. (2005). Many-body wave function in a dipole blockade configuration. *Phys. Rev. A*, 72(6) :063403.

- [Robicheaux et al., 2004] Robicheaux, F., Hernández, J. V., Topçu, T., and Noordam, L. D. (2004). Simulation of coherent interactions between Rydberg atoms. *Phys. Rev. A*, 70(4) :042703.
- [Robinson et al., 2000] Robinson, M. P., Tolra, B. L., Noel, M. W., Gallagher, T. F., and Pillet, P. (2000). Spontaneous evolution of rydberg atoms into an ultracold plasma. *Phys. Rev. Lett.*, 85(21) :4466.
- [Romanovsky and Ebeling, 2006] Romanovsky, M. Y. and Ebeling, W. (2006). Elementary many-particle processes in plasma microfields. *Contrib. Plasma Phys.*, 46(3) :195–260.
- [Rosén and Lindgren, 1972] Rosén, A. and Lindgren, I. (1972). Relativistic Effects in the Hyperfine Structure of the Alkali Atoms. *Physica Scripta*, 6 :109.
- [Rubbmark et al., 1981] Rubbmark, J. R., Kash, M. M., Littman, M. G., and Kleppner, D. (1981). Dynamical effects at avoided level crossings : A study of the Landau-Zener effect using Rydberg atoms. *Phys. Rev. A*, 23 :3107–3117.
- [Ryabtsev et al., 2005] Ryabtsev, I. I., Tretyakov, D. B., and Beterov, I. I. (2005). Applicability of Rydberg atoms to quantum computers. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 38 :421.
- [Saffman and Walker, 2005] Saffman, M. and Walker, T. G. (2005). Analysis of a quantum logic device based on dipole-dipole interactions of optically trapped Rydberg atoms. *Phys. Rev. A*, 72(2) :022347.
- [Safinya et al., 1981] Safinya, K. A., Delpech, J. F., Gounand, F., Sandner, W., and Gallagher, T. F. (1981). Resonant Rydberg-Atom-Rydberg-Atom Collisions. *Phys. Rev. Lett.*, 47 :405–408.
- [Schlosser et al., 2001] Schlosser, N., Reymond, G., Protsenko, I., and Grangier, P. (2001). Sub-poissonian loading of single atoms in a microscopic dipole trap. *Nature*, 411 :1024–1027.
- [Schmidt-Kaler et al., 2003] Schmidt-Kaler, F., Häffner, H., Riebe, M., Gulde, S., Lancaster, G. P. T., Deuschle, T., Becher, C., Roos, C. F., Eschner, J., and Blatt, R. (2003). Realization of the Cirac-Zoller controlled-NOT quantum gate. *Nature*, 422 :408–411.
- [Seaton, 1983] Seaton, M. J. (1983). Quantum defect theory. *Rep. Prog. Phys.*, 46 :167.
- [Silverstone, 1978] Silverstone, H. J. (1978). Perturbation theory of the Stark effect in hydrogen to arbitrarily high order. *Phys. Rev. A*, 18 :1853–1864.
- [Simien et al., 2004] Simien, C. E., Chen, Y. C., Gupta, P., Laha, S., Martinez, Y. N., Mickelson, P. G., Nagel, S. B., and Killian, T. C. (2004). Using Absorption Imaging to Study Ion Dynamics in an Ultracold Neutral Plasma. *Phys. Rev. Lett.*, 92(14) :143001.
- [Singer et al., 2004] Singer, K., Reetz-Lamour, M., Amthor, T., Marcassa, L. G., and Weidemüller, M. (2004). Suppression of Excitation and Spectral Broadening Induced by Interactions in a Cold Gas of Rydberg Atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 93(16) :163001.
- [Singer et al., 2005] Singer, K., Stanojevic, J., Weidemüller, M., and Côté, R. (2005). Long-range interactions between alkali Rydberg atom pairs correlated to the ns ns, np np and nd nd asymptotes. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 38 :295.
- [Sobel'man, 1972] Sobel'man, I. I. (1972). *Introduction to the theory of Atomic Spectra*. Pergamon Press.
- [Stanojevic et al., 2006] Stanojevic, J., Côté, R., Tong, D., Farooqi, S. M., Eyler, E. E., and Gould, P. L. (2006). Long-range Rydberg-Rydberg interactions and molecular resonances. *European Physical Journal D*, 40 :3–12.

- [Steck, 2004] Steck, D. A. (2004). Cesium d line data. *Accessible sur le Web à l'adresse <http://george.ph.utexas.edu/dsteck/alkalidata/cesiumnumbers.pdf>*.
- [Teo et al., 2002] Teo, B. K., Cubel, T., and Raithel, G. (2002). A slow and dark atomic beam. *Optics Communications*, 212 :307–315.
- [Tong et al., 2004] Tong, D., Farooqi, S. M., Stanojevic, J., Krishnan, S., Zhang, Y. P., Côté, R., Eyler, E. E., and Gould, P. L. (2004). Local Blockade of Rydberg Excitation in an Ultracold Gas. *Phys. Rev. Lett.*, 93(6) :063001.
- [Torquato et al., 1990a] Torquato, S., Lu, B., and Rubinstein, J. (1990a). Nearest-neighbor distribution functions in many-body systems. *Phys. Rev. A*, 41 :2059–2075.
- [Torquato et al., 1990b] Torquato, S., Lu, B., and Rubinstein, J. (1990b). Nearest-neighbour distribution function for systems on interacting particles. *Journal of Physics A Mathematical General*, 23 :L103–L107.
- [Treutlein et al., 2004] Treutlein, P., Hommelhoff, P., Steinmetz, T., Hänsch, T. W., and Reichel, J. (2004). Coherence in Microchip Traps. *Phys. Rev. Lett.*, 92(20) :203005.
- [Vandersypen et al., 2001] Vandersypen, L. M. K., Steffen, M., Breyta, G., Yannoni, C. S., Sherwood, M. H., and Chuang, I. L. (2001). Experimental realization of Shor's quantum factoring algorithm using nuclear magnetic resonance. *nature*, 414 :883–887.
- [Vanhaecke et al., 2005] Vanhaecke, N., Comparat, D., Tate, D. A., and Pillet, P. (2005). Ionization of rydberg atoms embedded in an ultracold plasma. *Phys. Rev. A*, 71(1) :013416.
- [Vitrant et al., 1982] Vitrant, G., Raimond, J. M., Gross, M., and Haroche, S. (1982). Rydberg to plasma evolution in a dense gas of very excited atoms. *J. Phys. B*, 15 :L49.
- [Vogt et al., 2006] Vogt, T., Viteau, M., Zhao, J., Chotia, A., Comparat, D., and Pillet, P. (2006). Dipole blockade through Rydberg Förster resonance energy transfer. *ArXiv Physics e-prints*.
- [Walker and Saffman, 2005] Walker, T. G. and Saffman, M. (2005). Zeros of Rydberg Rydberg Förster interactions. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 38 :309.
- [Walz-Flannigan et al., 2004] Walz-Flannigan, A., Guest, J. R., Choi, J.-H., and Raithel, G. (2004). Cold-rydberg-gas dynamics. *Phys. Rev. A*, 69 :063405.
- [Warner, 1968] Warner, B. (1968). Atomic oscillator strengths-III. Alkali-like spectra. *Mon. Not. R. astr. Soc.*, 139 :115.
- [Weber and Sansonetti, 1987] Weber, K.-H. and Sansonetti, C. J. (1987). Accurate energies of nS, nP, nD, nF, and nG levels of neutral cesium. *Phys. Rev. A*, 35 :4650–4660.
- [Westermann et al., 2006] Westermann, S., Amthor, T., de Oliveira, A. L., Deiglmayr, J., Reetz-Lamour, M., and Wiedemüller, M. (2006). Dynamics of resonant energy transfer in a cold Rydberg gas. *European Physical Journal D*.
- [Wilken and Bauer, 2006] Wilken, F. and Bauer, D. (2006). Adiabatic Approximation of the Correlation Function in the Density-Functional Treatment of Ionization Processes. *ArXiv Physics e-prints*.
- [Yi and You, 2003] Yi, S. and You, L. (2003). Expansion of a dipolar condensate. *Phys. Rev. A*, 67(4) :045601.
- [Zahzam et al., 2006] Zahzam, N., Vogt, T., Mudrich, M., Comparat, D., and Pillet, P. (2006). Atom-Molecule Collisions in an Optically Trapped Gas. *Phys. Rev. Lett.*, 96(2) :023202.
- [Zanon et al., 2002] Zanon, R. A., Magalhães, K. M., de Oliveira, A. L., and Marcassa, L. G. (2002). Time-resolved study of energy-transfer collisions in a sample of cold rubidium atoms. *Phys. Rev. A*, 65(2) :023405.

- [Zimmerman et al., 1979] Zimmerman, M. L., Littman, M. G., Kash, M. M., and Kleppner, D. (1979). Stark structure of the Rydberg states of alkali-metal atoms. *Phys. Rev. A*, 20 :2251–2275.

Résumé

Cette thèse traite des interactions à très longue portée entre atomes de Rydberg froids. Elle présente les résultats de la première réalisation du blocage dipolaire, qui se traduit par une limitation de l'excitation d'un ensemble d'atomes vers un état de Rydberg en raison du déplacement des niveaux d'énergie lié aux interactions dipôle-dipôle entre atomes. L'importance de l'implication du blocage dipolaire a été soulignée pour l'information quantique avec la possible réalisation de portes quantiques conditionnelles à deux qubits. La mise en évidence du blocage dipolaire est présentée dans le cadre de deux configurations expérimentales différentes : en présence d'un champ électrique et à résonance de Förster. Parvenir à la maîtrise du blocage dipolaire de l'excitation vers des états de Rydberg a demandé un contrôle important des conditions expérimentales : compensation des champs parasites, contrôle des sources d'ionisation d'atomes, contrôle de l'intensité laser d'excitation pour se placer en-dessous du seuil de saturation par puissance. Des études complémentaires ont été réalisées, telle que celle des forces dipolaires entre atomes de Rydberg responsables d'un phénomène d'ionisation Penning, aussi à l'origine de la formation d'un plasma ultra-froid. Une autre étude concerne le processus du transfert d'excitation à résonance de Förster, dont les propriétés de cohérence ont été analysés par une technique spectroscopique originale dite de "creusement spectral".

Abstract

This thesis deals with long-range interactions between cold Rydberg atoms. It describes results of the first realization of the dipole blockade, characterized in an ensemble of atoms by a strong limitation of the excitation to Rydberg states, due to the shift of the energy levels linked to the dipole-dipole interactions between Rydberg atoms. The importance of the dipole blockade has been underlined in quantum information with the possible realization of two qubits conditional quantum gates. The evidence for the dipole blockade is brought using two different configurations: in the presence of a static electric field and using Förster resonances. Getting the dipole blockade requires a very good control of experimental conditions : compensation for stray electric fields, control of ionization sources, control of the intensity of excitation to stay below the power saturation threshold. Complementary experiments have been carried out, such as the study of dipolar forces between Rydberg atoms responsible for Penning ionization, which can be at the origin of the formation of an ultra-cold plasma. Another study concerns the excitation transfert at Förster resonance, whose coherence properties have been studied by an original spectroscopic technique close to spectral hole-burning.

Mots clés

Atomes de Rydberg	Forces dipolaires	Ionisation Penning
Blocage dipolaire	Information quantique	Photoionisation
Cohérence	Interaction Van der Waals	Plasmas froids
Collisions froides	Interaction dipôle-dipôle	Procédé Förster