



EXPERIENCES AVEC DES ATOMES DE RYDBERG ET DES MOLECULES ULTRA-FROIDS.

Daniel Comparat

► To cite this version:

Daniel Comparat. EXPERIENCES AVEC DES ATOMES DE RYDBERG ET DES MOLECULES ULTRA-FROIDS.. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Paris Sud - Paris XI, 2008. tel-00343528

HAL Id: tel-00343528

<https://theses.hal.science/tel-00343528>

Submitted on 1 Dec 2008

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

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

Université Paris-Sud 11
Laboratoire Aimé Cotton

Mémoire d'Habilitation à Diriger des Recherches

EXPERIENCES AVEC DES ATOMES DE RYDBERG ET DES
MOLECULES ULTRA-FROIDS.

Daniel Comparat

Soutenue à Orsay le 20 novembre 2008 devant le jury composé de :

Jean Dalibard
Frédéric Merkt
Matthias Weidemüller
Maria Allegrini
Pierre Pillet
Christoph Westbrook

Rapporteur
Rapporteur
Rapporteur

Table des matières

1	Remerciements	7
2	Preface : Activité au cours des dernières années	9
3	Résumé : articles + Curriculum vitæ	13
3.1	Atomes de Rydberg	13
3.2	Plasmas ultra-froids	14
3.2.1	Application à la formation d’antihydrogène	14
3.2.2	Application à la production d’un faisceau d’ions ou d’électrons	15
3.3	Photoassociation et molécules froides	15
3.4	Chargement d’un piège dipolaire : vers la condensation de Bose-Einstein d’atomes et de molécules de césium	16
3.5	Étude des conditions d’adiabaticité	17
3.6	Projets futurs	17
3.7	Curriculum vitæ	17
	Bibliographie	26
4	Atomes de Rydberg	27
4.1	Introduction et contexte international	27
4.1.1	Gas gelé et dynamique	27
4.1.2	Blocage dipolaire de l’excitation Rydberg	28
4.1.3	Comportement collectif d’un gaz de Rydberg dipolaire	29
4.1.4	Modélisation d’un gaz de Rydberg	30
4.1.5	Molécules exotiques avec des atomes de Rydberg	31
4.2	Étude du blocage dipolaire	31
4.2.1	Dipôles créés par un champ électrique : PRL 99 073002 (2007)	32
4.2.2	Dipôles créés par une résonance : PRL 97 083003 (2006)	34
4.3	Effet des forces	34
4.3.1	Effet de décohérence	35
4.3.2	Modélisation de la dynamique : NJP 10, 045031 (2008)	35
4.4	Évolution future des recherches	38
4.4.1	Molécules de Rydberg	38
4.4.2	Gaz dipolaire ordonné	38
4.4.3	Contrôle quantique	39
4.4.4	Refroidissement et piégeage laser des atomes Rydberg	39
	Bibliographie	39

5	Plasmas ultra-froids	47
5.1	Introduction et contexte international	47
5.1.1	Vers un plasma corrélé ?	48
5.1.2	Photoionisation d'atomes froids	49
5.1.3	Diagnostiquer les plasmas ultra-froids	49
5.1.4	Réchauffement initial et modélisation	50
5.1.5	Ionisation des atomes de Rydberg	51
5.2	Ionisation des atomes Rydberg	52
5.3	Refroidissement du plasma par collisions avec les atomes de Rydberg : PRA 71 013416 (2005)	54
5.4	Modélisation, analogie avec les amas globulaires stellaires : Monthly Notices of the Royal Astronomical Society 361 1227 (2005)	56
5.5	Évolution future des recherches	58
5.5.1	Plasma moléculaire	58
5.5.2	Plasma piégé ou refroidi par laser	58
	Bibliographie	65
6	Application à la production d'un faisceau d'ions ou d'électrons	67
6.1	Introduction et contexte international	67
6.1.1	FIB (Focussed Ion Beam)	68
6.1.2	La microscopie électronique	69
6.1.3	L'extraction des charges d'un plasma ultra-froid	70
6.2	Description de l'expérience	70
6.3	Évolution future des recherches	71
	Bibliographie	74
7	Application à la formation d'antihydrogène	75
7.1	Introduction et contexte international	75
7.1.1	Expérience avec l'anti-matière	75
7.1.2	Formation d'un jet d'anti-hydrogènes	76
7.1.3	Efficacité et piégeage	77
7.1.4	Proposition d'utiliser un jet d'anti-hydrogène	77
7.2	L'expérience AEGIS : NIMB 266 351 (2008)	78
7.3	Évolution future des recherches	81
7.3.1	Effets sur les atomes de Rydberg	81
7.3.2	Refroidissement maximum du nuage d'antiprotons : bunching	81
7.3.3	Refroidissement maximum du nuage d'antiproton : évaporation ?	82
7.3.4	Refroidissement laser	83
7.3.5	Projets à long terme	85
	Bibliographie	95
8	Photoassociation et molécules froides	97
8.1	Introduction et contexte international	97
8.1.1	La photoassociation : spectroscopie et collision	97
8.1.2	Les molécules (ultra-)froides	101
8.1.3	Molécules froides formées à partir d'atomes froids	102
8.1.4	Molécules froides formées à partir de molécules	104

8.2	Spectroscopie de photoassociation	107
8.2.1	Photoassociation à deux photons	107
8.2.2	Étude d'une résonance de Feshbach par photoassociation	108
8.2.3	Amélioration de la loi de LeRoy-Bernstein J. Chem. Phys 120 1318 (2004)	109
8.2.4	Nouvelle spectroscopie	109
8.2.5	Détection de la photoassociation par ionisation	109
8.3	Piégeage et étude des collisions avec des molécules froides : PRL 89 063001 (2002) + PRL 96 023202 (2006)	110
8.4	Formation de molécules singlet et détection non sélective	112
8.5	Refroidissement des degrés de libertés internes des molécules. Science 321, 232 (2008).	113
8.5.1	Propositions théoriques : utilisation d'un laser femtoseconde façonné . . .	113
8.5.2	Photoassociation femtoseconde	114
8.5.3	Pompage optique de molécules	115
8.6	Évolution future des recherches	116
8.6.1	Amélioration du taux de formation	116
8.6.2	Étude rotationnelle et étude en jet	116
8.6.3	Piégeage des molécules, étude des collisions, vers la condensation de Bose- Einstein	117
8.6.4	Refroidissement laser des molécules	117
	Bibliographie	133
9	Chargement d'un piège dipolaire : vers la condensation de Bose-Einstein d'atomes et de molécules de césium	135
9.1	Introduction et contexte international	135
9.1.1	Condensation et chargement de pièges conservatifs	135
9.1.2	Historique des expériences avec des BEC	136
9.1.3	L'atome de Césium : les pertes collisionnelles et le refroidissement évaporatif	138
9.2	Chargement d'un piège et évaporation : notre quête de la condensation de Bose- Einstein	139
9.2.1	Etude d'un pousseur-guideur pour transférer les atomes : EPJD 42 299 (2007)	140
9.2.2	Modèle théorique du chargement d'un "dimple" et de l'évaporation : PRA 73 043410 (2006)	140
9.2.3	Résultats expérimentaux	142
9.3	Évolution future des recherches	143
	Bibliographie	155
10	Étude des conditions d'adiabaticité	157
10.1	Introduction et contexte international	157
10.1.1	Peut-on utiliser la condition adiabatique ?	157
10.1.2	À quoi sert le théorème adiabatique ?	158
10.2	Conditions générales pour une évolution adiabatique : soumis à PRL	159
10.2.1	La condition usuelle n'est pas valable !	159
10.2.2	La condition usuelle est perturbative	159
10.2.3	Quand la condition adiabatique est-elle valable ?	160
10.2.4	D'autres conditions impliquant l'adiabaticité.	161

10.2.5	Quelle phase lors d'une évolution adiabatique?	162
10.3	Évolution future des recherches	162
	Bibliographie	165
11	Compilation de certains articles publiés	167

Chapitre 1

Remerciements

Cette rédaction d'un rapport d'habilitation à diriger les recherches n'est pas seulement le moyen de faire le bilan de mes dix années de recherche, il me permet aussi de remercier tous ceux sans qui cette recherche n'aurait pas été possible.

Il est évident qu'une partie essentielle de mon activité de recherche fut guidée par mon travail de thèse. Ma profonde gratitude va donc à mon directeur de thèse Pierre Pillet qui malgré ma formation mathématique m'a fait confiance quant à la conduite de recherches expérimentales. Je le remercie bien évidemment aussi pour son soutien qui m'a ensuite permis de poursuivre ces recherches avec le statut de chercheur permanent dans son équipe. Je tiens aussi à le remercier chaleureusement pour son calme, sa compétence et sa direction conciliante de l'équipe. Comme Pierre Pillet est aussi directeur du laboratoire il m'est ainsi facile de remercier l'actuel directeur du laboratoire Aimé Cotton, ainsi que son prédécesseur Christian Colliex, pour m'y avoir accueilli et pour m'avoir permis de travailler dans les meilleures conditions.

La qualité de ma recherche est évidemment liée à celle des personnes qui ont travaillé sur les expériences dont j'avais la charge. Je suis particulièrement reconnaissant à tous les étudiants en thèse et post-doctorant que j'ai côtoyés, puis peu à peu encadrés, au cours de ces années. Je pense notamment aux thésards que j'ai côtoyés durant ma thèse Bruno Laburthe-Tolra ou Cyril Drag en passant par des post-doc comme Wilson de Souza Melo. Au cours de mon stage post doctoral chez Dan Heinzen au Texas j'ai pu apprécier l'efficacité des deux thésards que furent Roahn Wynar et Riley Freeland. Suite à mon embauche au CNRS j'ai commencé à travailler sur l'expérience "molécules froides" avec les thésards et post doc très efficaces que furent Nicolas Vanhaecke, Christian Lisdat, Marcel Mudrich, Nassim Zahzam, Jianming Zhao, Thibault Vogt, Matthieu Viteau ou Amodsen Chotia. Je profite de ces remerciements pour m'excuser parfois du manque de temps que j'ai eu à leur consacrer, j'espère qu'ils ont ressenti cela comme la contrepartie du fait que j'encadrais des chercheurs déjà autonomes et efficaces. La gestion de l'expérience de condensation de Bose-Einstein, que je fus heureux de souvent partager avec Andréa Fioretti, fut parfois difficile et je tiens donc particulièrement à remercier toutes les personnes qui y ont travaillé sous mon encadrement ou qui ont commencé à travailler avant mon arrivée sur cette expérience avec Samuel Guibal : Salah Boussen, Nathalie Hoang, Emilyia Dimova, Guillaume Stern ou Dimitris Sofikitis. Il faut ajouter à cette liste le plaisir qu'il y a à travailler avec des chercheurs étrangers de passage, plus ou moins longtemps, comme Duncan Tate, Maria Allegrini ou Thomas Gallagher.

Il me faut évidemment revenir sur l'environnement de travail stimulant que constitue le laboratoire Aimé Cotton pour le sujet des molécules froides notamment. Je voudrais ainsi plus

particulièrement remercier mes collègues théoriciens ou expérimentateurs avec lesquels j'ai le plus interagi que sont Nadia Bouloufa, Anne Crubellier, Olivier Dulieu, Eliane Luc, Françoise Masnou ou Laurence Pruvost et leurs nombreux étudiants en thèses ou post docs. Au sein du laboratoire, les discussions furent souvent vives mais surtout constructives. Je me suis souvent enrichi de ce bouillonnement d'idées pour développer mes propres projets. J'espère aussi que les discussions avec Etienne Brion ou Vladimir Akulin concernant les atomes de Rydberg se poursuivront. Un remerciement tout particulier va aussi aux personnels des services du laboratoire. Le nombre important de personnes travaillant dans tous ces secteurs (administration, électronique, chaudronnerie, mécanique, accueil, achats et marchandises, ...) est un atout important du laboratoire. Je vais éviter la tâche difficile qui consiste à en donner la liste en utilisant l'excuse du risque d'oublier quelques stagiaires, mais que le personnel du laboratoire Aimé Cotton qui a toujours accompli mes demandes dans les plus brefs délais soit remercié. Merci à tous.

Je tiens aussi à remercier Michèle Leduc pour son enthousiasme et son aide sans faille aux jeunes chercheurs avec notamment la mise de place de l'IFRAF qui m'a permis de démarrer un projet très intéressant avec Antoine Browaeys et de renforcer la partie femtoseconde de notre expérience au LAC. Je pense que ce type d'aide peut aussi me permettre de mettre sur pied une nouvelle équipe ou thématique de recherche. Je tiens aussi à remercier Jérôme Leygnier pour m'avoir permis d'enseigner en travaux pratiques de licence.

Que Frédéric Merkt, Matthias Weidemüller et Jean Dalibard trouvent ici toute ma reconnaissance pour avoir accepté le rôle difficile et exigeant de rapporteur. J'exprime aussi toute ma gratitude à Maria Allegrini et Chris Westbrook pour l'intérêt qu'ils ont porté à mon travail en acceptant de faire partie du jury.

Ces remerciements ne seraient pas complets sans que j'exprime ma profonde gratitude à tous ceux, ma mère en particulier, qui ont bien voulu relire mon manuscrit pour y traquer les imprécisions et les fautes d'orthographe qui j'espère sont ainsi en nombre plus acceptable pour le lecteur.

Je tiens finalement à remercier toute ma famille, mes ami(e)s et tout particulièrement ma femme Delphine qui m'ont soutenu et supporté tout au long de ces années.

Chapitre 2

Preface : Activité au cours des dernières années

Selon l'arrêté ministériel relatif, "l'habilitation à diriger des recherches sanctionne la reconnaissance du haut niveau scientifique du candidat, du caractère original de sa démarche dans un domaine de la science, de son aptitude à maîtriser une stratégie de recherche dans un domaine scientifique ou technologique suffisamment large et de sa capacité à encadrer de jeunes chercheurs".

Dans la rédaction de ce rapport en vue d'obtenir ce diplôme d'habilitation à diriger les recherches, il me semble donc nécessaire de démontrer que j'arrive à un moment de ma carrière où plusieurs de ces commentaires commencent à pouvoir m'être associés.

Dans cette préface je voudrais mentionner les aspects un peu extérieurs aux progressions de mes recherches. Je souhaiterais donc décrire l'environnement dans lequel ce travail s'est effectué, c'est-à-dire retracer très rapidement la chronologie, l'évolution de ma place dans l'équipe, les responsabilités que j'ai prises dans la gestion quotidienne de l'équipe ainsi que la place de l'enseignement que j'ai eu à développer.

Depuis mes débuts (octobre 2000) en tant que chargé de recherche et même lors de ma thèse (1996-1999) ou lors de mon post-doc (oct. 1999-2000), ma thématique de recherche a toujours conservé deux aspects : étude des molécules froides et des gaz d'atomes de Rydberg. Un unique dispositif expérimental me permet de travailler (typiquement avec une alternance de une année et demi) sur la formation de molécules froides et sur l'étude d'un gaz d'atomes excités (état de Rydberg) ou ionisés pour former un plasma ultra-froid. Depuis octobre 2004, un second dispositif expérimental, dont Samuel Guibal s'occupait jusqu'alors, consacré à la condensation de Bose-Einstein (BEC en anglais) de césium s'est ajouté à ces deux thèmes. Depuis 2006 je participe de plus à l'élaboration d'une expérience de mesure de la gravité avec des atomes d'anti-hydrogène qui doit prochainement être examinée par le CERN. Finalement, depuis 2007, je commence une collaboration avec l'entreprise Orsay Physics pour la réalisation d'un prototype d'un jet d'atomes refroidis puis ionisés en vue de la création d'un faisceau d'ions focalisés.

Durant ma thèse et mon post-doc, bien qu'encadrant quelques stagiaires, l'essentiel de mon temps était consacré à travailler sur les expériences. Le directeur de recherche (Pierre Pillet) dirigeant le groupe expérimental auquel j'appartiens a été nommé directeur du laboratoire en janvier 2002. Ceci, joint au départ pour le laboratoire Matériaux et Phénomènes Quantiques de l'université Paris 7, de Samuel Guibal (CR1) qui s'occupait jusqu'alors de l'expérience BEC

fait qu'une partie importante de mon temps est depuis lors dévolu à la gestion quotidienne des deux équipes. Je commençai alors à découvrir la partie du travail qui consistait en des prises de responsabilités quant aux décisions concernant les deux équipes, les recherches de stagiaires, thésards, de financements extérieurs à ceux provenant du CNRS. Je me suis aussi engagé au niveau plus local avec des activités au sein du laboratoire (plaquette Web, imprimante A0, gestion de la cafétéria, fête de la science, vice-présidence du conseil de laboratoire ...). J'ai heureusement travaillé avec plusieurs thésards efficaces (dont Nicolas Vanhaecke récemment recruté CR2 dans notre groupe). Avant de les mentionner tous, je me dois déjà de les remercier pour l'aide extrêmement précieuse qu'il m'ont apportée lors de l'encadrement des nombreux stagiaires qui se sont succédés dans le groupe. La liste des stagiaires que j'ai ainsi co-encadré est bien trop longue pour figurer ici, mais elle comporte typiquement chaque année un (ou une) stagiaire de L3 de M1 et de M2. Concernant les étudiants en thèse, j'ai plus particulièrement co-encadré sur le premier dispositif expérimental les thèses de Nassim Zahzam (2002-2005), Thibault Vogt (2003-2006), Matthieu Viteau et Amodsen Chotia (2005-2008) ainsi qu'un stagiaire post-doctoral Marcel Mudrich (2004-2005). En octobre 2004, une autre charge de travail m'incomba, suite à l'arrivée d'un chercheur italien (Andréa Fioretti) : le redémarrage de l'expérience BEC. Jusqu'en 2006, date du départ d'Andréa Fioretti, nous avons co-encadré un thésard Guillaume Stern (2004-2007) et une étudiante post-doctorante bulgare (Emilyia Dimova, 2005-2006). Je voudrais ici aussi mentionner les projets de ralentissement de molécules par effet Stark ou Zeeman, de Nicolas Vanhaecke dans notre groupe de recherche qui ont débutés en 2006 avec le soutien d'un contrat ANR. Je m'étais investi avant cela sur les réflexions concernant le projet d'un ralentissement Stark de molécules excitées dans un état de Rydberg. Mais, depuis le démarrage effectif de ces deux expériences nos deux groupes de recherches sont séparés, en ce qui concerne leur gestion quotidienne ; mais nos convergences thématiques devraient évidemment nous permettre d'effectuer des expériences communes dans le futur.

En restant sur le plan local, il me faut mentionner d'autres activités liées à l'Université Paris-Sud, comme ma participation à deux PPF, mes demandes de postes BQR, ma nomination à la commission de spécialistes chargée de l'évaluation de la 30ème section pour l'université de Paris-Sud. En 2007 j'ai aussi été élu membre au conseil national des universités (CNU) de cette même section. Le lien avec l'université s'est aussi traduit par la rédaction de deux nouveaux polycopiés et à la mise en place, pour un enseignement d'une trentaine d'heures par an, de travaux pratiques de L3 consacrés aux expériences d'interférométrie de Michelson et du phénomène de Speckle. Un enseignement sur le piégeage des atomes froids en M2, et un cours à venir (en octobre 2008, cours de l'école pré-doctorale des Houches) viennent parachever cette description des mes enseignements.

L'équipe a régulièrement reçu des visiteurs étrangers comme Thomas Gallagher ou Maria Allegrini qui ont travaillé directement sur l'expérience avec les étudiants en thèse présents. Mon engagement international s'est traduit aussi dans ma participation à deux réseaux (COMOL, QUACS) du sixième programme cadre européen (FP6).

Si ces engagements étaient plus liés à mon appartenance au groupe de Pierre Pillet qu'à des initiatives faites en mon nom propre, de nouvelles collaborations plus personnelles sont déjà réalisées ou sont en court de réalisation. En particulier, nous avons reçu deux professeurs chinois Liantuan Xiao et Jia Suotang (2005) et une de leur collaboratrice (Jianming Zhao) qui, en cumulé, ont passé près d'un an avec nous et avec qui j'ai démarré une collaboration sur le sujet des molécules froides et des atomes de Rydberg. J'ai déjà mentionné les collaborations

avec le CERN par exemple. Des partenariats (Hubert Curien) avec la Bulgarie et la Serbie sont en cours d'élaboration pour la réalisation d'un dispositif de refroidissement d'atomes par laser. Plus précisément avec une ancienne post doc Emilyia Dimova, qui crée un groupe atomes froids à Sofia et avec Ticijana Ban, du groupe de Goran Pichler, qui dirige le groupe "femtoseconde" à Zagreb.

Mes travaux de recherche se sont toujours articulés autour des expériences de molécules froides, d'atomes de Rydberg et de plasma ultra-froids. Néanmoins, mon C.V. (joint ci-après) permet, au travers de ma formation à la fois mathématique et de physicien, d'expliquer un aspect, souvent moins collectif, de mon travail qui s'approche plus de la théorie. Cet aspect consista en effet à essayer de modéliser ou d'améliorer des modèles existants comme lors de mes études de la loi dite de LeRoy-Bernstein, des équations d'évolution des plasmas par analogie avec les équations d'évolution des amas globulaires d'étoiles, ou bien plus récemment lors de l'étude des conditions adiabatiques. Je mentionne aussi mes simulations numériques de la dynamique des interactions entre atomes de Rydberg avec la résolution par une méthode de Monte-Carlo cinétique des équations de taux ou encore sur la simulation du refroidissement laser des molécules. Cet aspect important mais plus théorique de mon travail sera donc évidemment aussi abordé dans les chapitres suivants. Il s'est aussi retrouvé dans la rédaction d'articles par exemple sur Wikipedia (Méthode de Monte-Carlo cinétique, Approximation BKW, Plasmas ultra-froids, ...).

Une fois cet aspect personnel de mon travail décrit, vient la partie plus proprement scientifique de mon rapport d'habilitation. Je décrirai donc dans la suite de ce rapport mes travaux de recherche. J'ai choisi de les présenter dans l'ordre suivant : Atomes de Rydberg, Plasmas ultra-froids, Application à la formation d'antihydrogène, Application à la production d'un faisceau d'ions ou d'électrons, Photoassociation et molécules froides, Chargement d'un piège dipolaire : vers la condensation de Bose-Einstein d'atomes et de molécules de césium et finalement Étude des conditions d'adiabaticité. Évidemment la frontière entre chaque chapitre est ténue et le lien entre les thématiques scientifiques est souvent très fort. J'ai toutefois voulu séparer certaines thématiques des autres car elle ne concernent souvent pas les mêmes personnes, ni les même montages expérimentaux. Par exemple la formation d'antihydrogène s'effectue dans des états de Rydberg qui est donc la thématique de l'ensemble des personnes travaillant dans notre groupe de recherche au laboratoire Aimé Cotton, pourtant je suis seul membre du groupe travaillant effectivement sur ce projet. Bien que réalisant ainsi des chapitres de tailles et d'importance très inégales, ce découpage permet ainsi une vision plus synthétique de chaque aspect de mon travail.

Chaque chapitre commence par "Introduction et contexte international", rappelant la chronologie des grandes étapes du domaine. Cette partie n'a pas vocation à être exhaustive et reflétera donc plutôt mes centres d'intérêt. Toutes les références originales ne seront donc pas systématiquement citées mais j'espère que les références manquantes seront palliées par les références faites à des articles de revues récents. Je m'excuse ainsi par avance de toutes les omissions que j'ai pu faire. La vocation principale de cette section est de replacer mes recherches dans le cadre international. Viennent ensuite les sections consacrées à la description succincte de mes travaux de recherche les plus importants (les autres articles "mineurs" sont ainsi simplement mentionnés mais ne sont pas commentés) en me focalisant principalement sur la période 2000-2008 suite à mon embauche en tant que chargé de recherche CNRS. Afin de ne pas trop alourdir le manuscrit je résume ainsi rapidement certains de mes travaux qui sont détaillés dans les articles joints. L'évolution future de mes recherches est finalement développée.

Afin de faciliter la lecture du manuscrit je tiens aussi à résumer mes travaux dans le chapitre qui suit. Certains de mes articles seront discutés en détail dans les chapitres qui suivent. Mais, afin de ne pas trop alourdir le manuscrit seulement les plus importants d'entres-eux (ceux qui sont mentionnés dans la table des matières) sont inclus en fin de manuscrit.

Chapitre 3

Résumé : articles + Curriculum vitæ

Au cours de ce résumé je retranscris tous mes travaux de recherche. Je ne mentionne ici aucun travaux d'autres équipes car ceux ci seront étudiés par la suite. J'ai ainsi mis toutes les références de mes articles, de proceedings et de chapitres de livres, menés depuis mes débuts en thèse (1996-1999), en post-doc (1999-2000) et en tant que chargé de recherche (octobre 2000). Ainsi cette partie permet aussi d'énoncer ma liste bibliographique sans trop alourdir mon C.V. (joint-ci après). Les travaux dont la référence est mentionnée dans la table des matières sont reproduit en fin de manuscrit.

Ma thématique de recherche a principalement deux aspects : molécules froides et gaz d'atomes de Rydberg avec toujours un souci d'une modélisation théorique. Un unique dispositif expérimental permet de travailler sur la formation de molécules froides et sur l'étude d'un gaz d'atomes de Rydberg ou encore sur un plasma ultra-froid. Depuis octobre 2004, s'est ajouté un second dispositif expérimental consacré à la condensation de Bose-Einstein de césium. Depuis 2006 je participe à l'élaboration de l'expérience AEGIS (Antimatter Experiment for Gravitational Interactions Study) de mesure de la gravité avec des atomes d'anti-hydrogène. Le financement en 2007 par la société Orsay Physics et par le RTRA (Triangle de la Physique) d'un projet industriel sur la réalisation d'un faisceau d'ions focalisés est le dernier projet qui vient de débiter pour une période de 3 ans.

3.1 Atomes de Rydberg

Les expériences concernant les atomes de Rydberg froids furent initiées en 1997 par notre équipe et celle de Thomas Gallagher (université de Virginie) [Mourachko et al., 1997, Pillet et al., 1998a, Pillet et al., 1998b] et font apparaître des phénomènes à N corps qui conduisent à une description de ce gaz de Rydberg "gelé" en terme de solide artificiel [Mourachko et al., 1998]. Le contrôle de plus en plus précis des interactions et forces dipôle-dipôle, dont dérivent des potentiels à longues portées [Fioretti et al., 1999b] qui engendrent des collisions et déplacent les niveaux d'énergie des atomes de Rydberg fut ensuite notre quête perpétuelle. Nous avons pu montrer que les forces créées par ces potentiels peuvent être responsables de la destruction de la cohérence d'une paire d'atomes du gaz de Rydberg sous l'influence de collisions [Mudrich et al., 2005, Pillet et al., 2005]. Nous avons ensuite montré expérimentalement et théoriquement que les interactions sont perturbées ne serait-ce que par la présence d'un unique ion. L'observation du phénomène de blocage dipolaire de l'excitation des atomes de Rydberg fut longue et difficile. J'ai un peu participé à la base d'étude théorique de réalisation de porte quan-

tique [Brion et al., 2005g, Brion et al., 2005c, Brion et al., 2005d, Brion et al., 2005e, Brion et al., 2005f, Brion et al., 2006, Brion et al., 2005b, Brion et al., 2005a], mais mon travail principal fut l'étude expérimentale de ce phénomène de blocage dipolaire qui fut finalement réalisée en 2006 dans deux situations distinctes : transfert résonnant d'excitation [Vogt et al., 2006] et contrôle par champ électrique [Vogt et al., 2007]. Mon travail s'est aussi poursuivi d'une façon théorique avec des simulations numériques concernant la dynamique liée aux interactions entre atomes de Rydberg avec la résolution exacte par une méthode Monte-Carlo Cinétique des équations de taux et de la dynamique à N-corps avec l'algorithme de Verlet [Chotia et al., 2008].

Les études concernant les atomes de Rydberg pourront à court terme concerner des molécules exotiques (macro-Rydberg, trilobites, ...). Mais, la prochaine étape sera la réalisation effective d'une porte quantique à 2 atomes comme prédite théoriquement. Cette expérience est effectuée sur le site de l'Institut d'Optique Graduate School, en collaboration IFRAF, avec Antoine Browaeys du groupe de Philippe Grangier.

Un projet à plus long terme, auquel nous réfléchissons avec Pierre Pillet, consisterait à démarrer une expérience basée sur l'atome d'Ytterbium et à utiliser les deux électrons externes de cet atome. En excitant un électron sur une orbite Rydberg quasiment circulaire l'autre électron devient spectateur, il devient alors possible de lui appliquer les techniques de refroidissement laser ou de piégeage dipolaire afin de manipuler cette "matière Rydberg".

3.2 Plasmas ultra-froids

L'évolution d'un gaz de Rydberg froid vers un plasma ultra-froid montre la frontière ténue entre ces deux systèmes. En 2000, le groupe du laboratoire Aimé Cotton (j'étais alors en post-doc) et celui de Thomas Gallagher ont étudié l'auto-ionisation d'un gaz de Rydberg dense et froid. Cette étude c'est ensuite affinée [Li et al., 2004]. Nos résultats principaux concernent ensuite, en 2005, l'étude expérimentale de l'effet "glaçon" des atomes de Rydberg plongés dans un tel plasma [Vanhaecke et al., 2005b] ainsi que l'étude théorique de ces plasmas [Pohl et al., 2006]. J'ai aussi dégagé une analogie surprenante mais riche entre l'évolution de ces plasmas avec l'évolution des amas globulaires stellaires. Dans cette analogie les atomes de Rydberg sont les analogues des étoiles binaires [Comparat et al., 2005]. Un article paru en 2006 [Pillet and Comparat, 2006] puis un second article dans la revue de la Société Française de Physique (Reffet de la Physique) a ensuite regroupé toutes ces recherches [Comparat et al., 2007].

Le futur des recherches est décrite dans les deux sections suivantes mais un projet annexe est l'ionisation d'un nuage moléculaire qui pourrait mener à court terme à la formation d'un plasma ultra-froid moléculaire aux propriétés de recombinaison très différentes des propriétés d'un plasma atomique.

3.2.1 Application à la formation d'antihydrogène

Depuis 2006 je suis membre de l'expérience AEGIS (Antimatter Experiment for Gravitational Interactions Study) dont le but est de former, en utilisant des états de Rydberg intermédiaires, un jet d'anti-atomes afin de mesurer pour la première fois l'effet de la gravité sur des atomes d'antimatière. Je me suis particulièrement investi en tant qu'"expert" dans les domaines concernant l'étude des états de Rydberg, de leur excitation par laser [Castelli et al., 2008] et du piégeage et du refroidissement laser des atomes d'antihydrogène [Kellerbauer et al., 2008, Testera et al., 2008].

L'avancée de ce projet de formation d'un jet d'anti-hydrogène, dépend principalement de son approbation par le CERN ou, pour le laboratoire Aimé Cotton, du financement, par l'ANR, du projet de Louis Cabaret concernant la réalisation d'un laser quasi-continu à 121 nm pour refroidir les atomes. En attendant ces réponses, je poursuis toutefois, en collaboration avec un groupe italien, la modélisation du transport des atomes de Rydberg en champ électriques et magnétiques.

3.2.2 Application à la production d'un faisceau d'ions ou d'électrons

Ce projet a la volonté d'étendre les techniques issues de la physique de la matière froide à la technique FIB (Focused Ion Beam : faisceau d'ions focalisés) en collaboration avec la société Orsay Physics. Je suis depuis 2008 consultant, à 20% de mon temps, dans cette PME provençale. Une seconde partie du projet, financé par le RTRA (triangle de la physique), concerne non plus la réalisation de faisceaux d'ions mais d'électrons très monocinétiques pour des applications à la microscopie électronique liée à la spectrométrie de perte d'énergie d'électrons, en lien avec le groupe de Christian Colliex du Laboratoire de Physique des Solides (LPS).

Les enjeux du travail sur les sources d'ions ou d'électrons sont d'importance car le projet, qui vient réellement de commencer à l'été 2008 avec la venue d'Andréa Fioretti et le début d'une thèse CIFRE (Leila Kime) que j'encadre, concerne la réalisation d'un jet d'ions très monocinétique de césium, pour le réalisation d'un microanalyseur ionique secondaire (SIMS) basse énergie. On travaillera ensuite sur la maîtrise d'un plasma ultra-froid de gaz rare avec des applications de FIB non contaminantes. De concert nous réfléchiront à la possibilité d'extraire des électrons très monocinétiques pour des applications en microscopie.

3.3 Photoassociation et molécules froides

Le thème de recherche sur les molécules (ultra-)froides ($T < 1$ mK) a été lancé au cours de ma thèse à la fin l'année 1997 [Fioretti et al., 1998]. Le résultat important de ma thèse fut la première mise en évidence de la formation de molécules froides (dimères de césium) qui furent obtenues après désexcitation spontanée de molécules créées par photoassociation [Fioretti et al., 1998, Fioretti et al., 1999a, Comparat et al., 2000, Drag et al., 2000, Fioretti et al., 2000, Guibal et al., 2000, Laburthe Tolra et al., 2001]. Nos recherches concernèrent l'étude du processus de formation [Drag et al., 2000b, Fioretti et al., 2000, Vatasescu et al., 2000] ou de détection en lui-même [Dion et al., 2002], l'étude spectroscopique [Comparat et al., 1999, Fioretti et al., 1999, Pillet et al., 2000], et des mesures de longueur de diffusion [Drag et al., 1999, Drag et al., 2000a] ou de durée de vie radiative de l'atome. Les grandes étapes [Comparat and Pillet, 2002, Pillet et al., 2003, Comparat et al., 2003, Vanhaecke et al., 2003, Vanhaecke et al., 2004] concernèrent ensuite le premier piège (magnétique) efficace pour molécules ultra-froides ($T < 1$ mK) que j'ai mis au point au début de 2000 lors de mon stage post-doctoral [Verhaar et al., 2001, Ryu et al., 2002] puis en 2002 au Laboratoire Aimé Cotton [Vanhaecke et al., 2002].

Nous avons aussi essayé de contrôler la formation de molécules en utilisant des résonances de Feshbach [Laburthe Tolra et al., 2003] ainsi qu'en utilisant la spectroscopie [Vanhaecke et al., 2004] d'un processus Raman stimulé [Lisdat et al., 2002].

J'ai aussi mené une contribution purement théorique concernant l'amélioration de la loi dite de LeRoy-Bernstein permettant d'attribuer des spectres moléculaires en connaissant la progression vibrationnelle [Comparat, 2004]. Finalement, le piégeage laser, ayant la potentialité

de piéger tous types de molécules (triplet ou singlet), fut réalisé en 2005-2006 en focalisant la lumière laser à $10,6\,\mu\text{m}$ d'un laser CO_2 de 100 watts [Zahzam et al., 2006]. Nous avons principalement étudié les collisions inélastiques entre espèces : atome-atome, atome-molécule et molécule-molécule.

Enfin, en 2008, les molécules formées par photoassociation furent transférées par des mécanismes de pompage optique dans le niveau sans rotation ni vibration rendu, par façonnage d'impulsions, "noir" pour l'absorption de photons des impulsions successives d'un laser femtoseconde [Viteau et al., 2008]. Ce résultat a stimulé de ma part une modélisation théorique du processus de refroidissement laser de tous les degrés de liberté d'une molécules (vibration, rotation, translation).

La technique du refroidissement vibrationnel est très simple et nous la testerons aussi sur un jet moléculaire. De façon plus générale cette technique ouvre la porte à un contrôle de tous les degrés de liberté des molécules. On peut en particulier envisager un refroidissement laser des degrés de liberté externe des molécules et reprendre ainsi avec les molécules l'ensemble des expériences réalisées sur les atomes. De plus, une fois appliquée à un échantillon atomique dense et froid, idéalement un condensat de Bose-Einstein (BEC), le refroidissement des degrés de liberté internes devrait permettre de former un échantillon dense et froid de molécules dans le niveau de vibration $v = 0$. Des études de piégeage dipolaire avec laser femtoseconde, laser à fibre ou laser CO_2 ou des études de collisions et de refroidissement évaporatif pourraient alors débiter.

Un autre projet à court terme consiste à marier les techniques de photoassociation et de refroidissement de la vibration moléculaire avec celle de la condensation de Bose-Einstein.

Un projet à plus long terme pourrait enfin consister à associer l'atome de césium à l'atome d'Ytterbium (utile aussi pour les expériences Rydberg sus-citées). Ceci permettrait de réaliser des molécules hétéro-nucléaires bosoniques ou fermioniques (selon l'isotope choisi) en appliquant les techniques de photoassociation. Les études concernant les gaz dipolaires nous seraient alors ouvertes.

Enfin, les expériences concernant la décélération de molécules Rydberg par un champ électrique dépendant du temps, auxquelles j'ai participé à leurs débuts [Vanhaecke et al., 2005a], vont aussi se poursuivre mais encadrées par Nicolas Vanhaecke.

3.4 Chargement d'un piège dipolaire : vers la condensation de Bose-Einstein d'atomes et de molécules de césium

Depuis octobre 2004, j'ai relancé avec Andréa Fioretti, l'expérience consacrée à la réalisation d'un condensat de Bose-Einstein de césium (BEC). En commun avec le groupe d'Hélène Perrin au Laboratoire de Physique des Lasers à Villetaneuse, nous avons amélioré le mécanisme de transfert d'atomes froids entre un premier piège magnéto-optique et un deuxième où un vide plus poussé règne [Dimova et al., 2007]. L'expérience de condensation n'a pas abouti mais l'étude d'un chargement efficace d'un piège dipolaire d'atomes de césium est déjà bien avancée. J'ai suggéré une approche pour former rapidement un condensat contenant un nombre important d'atomes suite au piégeage dipolaire d'atomes simultanément piégés magnétiquement [Comparat et al., 2006]. Il semble, pour le moment, que dans le cas du césium cette approche optimiste ne tienne pas ses promesses. Nous terminons actuellement l'étude quasi exhaustive des conditions de chargement d'un piège dipolaire par mélasse brillante, mélasse grise, piège

magnétique [Stern et al., 2007], dark SPOT ou même par refroidissement par bandes latérales Raman.

De façon immédiate, des études concernant la première observation des états d'Efimov, en utilisant une résonance de Feshbach existant pour un champ magnétique de 800 G peuvent être envisagées.

Mais, afin de pouvoir mener à bien l'ensemble des autres projets mentionnés précédemment, il semble nécessaire de regrouper les deux expériences (molécules froides-Rydberg et BEC) du groupe. Ainsi, le projet le plus évident, à moyen terme, consiste-t-il à marier les techniques de photoassociation et de refroidissement de la vibration moléculaire avec celle de la condensation de Bose-Einstein.

3.5 Étude des conditions d'adiabaticité

Au cours des années 2007-2008, stimulé par mon cours de M2, j'ai mené une étude théorique des conditions d'adiabaticité. Ce travail, qui viens juste d'être soumis à publication, m'a permis de clarifier une polémique naissante sur leurs liens avec le théorème adiabatique [Comparat, 2006]. En particulier, étant donné un hamiltonien $H(t)$ aucune condition (générale et efficace) d'adiabaticité n'était connue. Au bout de ces deux années, j'ai finalement trouvé des conditions très simples et générales pour décrire une évolution adiabatique : pour un hamiltonien H réel et "non-oscillant" un taux de variation du hamiltonien petit par rapport à l'écart spectral est suffisant pour assurer une évolution adiabatique. Ces conditions expliquent notamment pourquoi il est préférable d'utiliser la base tournante, ou les états habillés, pour éliminer les termes oscillants afin de pouvoir appliquer la condition adiabatique usuelle, que je démontre alors être correcte dans ce cas. Cela clarifie ainsi certains problèmes de l'adiabaticité en physique atomique et moléculaire pour le contrôle des niveaux d'énergie du système.

3.6 Projets futurs

En dehors des nombreux projets (CERN, FIB, ...) qu'il me faut mener de front il semble nécessaire de regrouper les deux expériences (molécules froides-Rydberg et BEC) du groupe. Les travaux futurs, décrit ci-dessus, dépendront très fortement des recrutements possibles dans le groupe que ce soit en personnels permanents, en post-doc ou en thésards.

3.7 Curriculum vitæ

CURRICULUM VITAE de Daniel Comparat

Nom	COMPARAT	Adresse professionnelle
Prénom	DANIEL	Laboratoire Aimé Cotton
Naissance	10 mai 1970	Bâtiment 505 , Campus d'Orsay
Nationalité	Française	Tel : + 33 (0)1 69 35 20 55, Fax: +33 (0)1 69 41 01 56
Situation	Marié, 2 enfants	

Courrier électronique: Daniel.Comparat@lac.u-psud.fr

Parcours professionnel

2005 Nomination comme chargé de recherche 1^{ère} classe.

2000 - 2005 Nomination comme chargé de recherche CNRS 2^{ème} classe, au sein du laboratoire Aimé Cotton.

1999 - 2000 Stage post-doctoral sur la formation de molécules froides dans un condensat de Bose-Einstein d'atomes de rubidium, dans l'équipe du Pr Dan Heinzen, department of Physics, the University of Texas at Austin, E.U.

1996 - 1999 Thèse: « Formation de molécules froides par photoassociation d'atomes froids de césium. Mise en évidence de forces à longue portée entre atomes froids excités de césium. » au laboratoire Aimé Cotton, Orsay, France, sous la direction de Pierre Pillet.

1994 - 1995 Service national en tant que professeur en classe de Mathématiques Supérieures à l'ISSAT (Damas, Syrie).

1993 - 1994 Agrégation de mathématiques
D.E.A. de Physique Théorique, université Paris 7

1991 - 1993 Magistère de mathématiques pures d'Orsay
Ecole Normale Supérieure de Cachan.

Enseignement

2004 - Chaque année : 3h Cours Magistaux en DEA Physique (interaction laser matière)

2004 6h Cours Magistaux à l'école doctorale EDOM + encadrement de 6 projets bibliographiques

2002 - Chaque année : 32h TP (Michelson+Speckle) 2ème cycle de Magistère Paris XI

Administration de l'enseignement et de la recherche, responsabilité ...

- 2008 - Membre de la section 30 - Milieux dilués et optique du Conseil national des Universités
- 2004 - 2007 Membre de la commissions de spécialistes de la section 30 au sein de l'université Paris-Sud 11.
- 2005 Organisation du colloque « Ultracold PARYS » (Ultracold Plasmas And Rydberg Systems) Mars 2005 Gif/Yvette

Co-encadrement de thésards Nassim Zahzam (2002-2005), Thibault Vogt (2003-2006), Gillaume Stern (2004-2007), Matthieu Viteau et Amodsen Chotia (2005-2008), Dimitris Sofikitis (2006-2009)

Membre de la S.F.P. et de la S.F.O.

Referee pour P.R.L., Eur. Phys. J. D., ...

Prix et distinctions

- 1999 Prix Jeune Chercheur Saint GOBAIN décerné par la S.F.P.

Thème de recherche développée. Atomes et molécules froids.

- Formation de molécules froides par photoassociation.
- Plasmas ultra-froids et création de faisceau d'électrons ou d'ions.
- Interactions entres atomes de Rydberg froids et information quantique.
- Condensation de Bose-Einstein (du césium).
- Formation d'atomes d'antihydrogène. Participation au projet AEGIS de mesure de gravité avec de l'antihydrogène au CERN

Vulgarisation scientifique (hors séminaire)

Rédactions d'articles Wikipedia : Méthode de Monte Carlo cinétique, Approximation BKW, Plasma ultra-froids

Aux frontières des plasmas : les plasmas ultras-froids,
Daniel Comparat, Amodsen Chotia, Matthieu Viteau, Thibault Vogt et Pierre Pillet
Mars 2007 : Reflets de la physique n°3 (revue de la S.F.P.)

Deux conférences (2*3h) aux étudiants de L1 à l'Université de Paris 6 ("L'histoire du froid")

Au cours de la fête de la science 2004 (journée porte ouverte). Organisation de visite du Laboratoire, réalisation de la page WEB du groupe et en coloboration avec Olivier Dulieu 2 conférences grand-public sur l'histoire du froid.

Bibliographie

- [Brion et al., 2005a] Brion, E., Akulin, V. M., Comparat, D., Dumer, I., Gershkovich, V., Harel, G., Kurizki, G., Mazets, I., and Pillet, P. (2005a). Coherence protection by the quantum ZENO effect. In Ozhigov, Y. I., editor, *Quantum Informatics 2004. Edited by Ozhigov, Yuri I. Proceedings of the SPIE, Volume 5833, pp. 70-79 (2005).*, volume 5833 of *Presented at the Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) Conference*.
- [Brion et al., 2005b] Brion, E., Akulin, V. M., Comparat, D., Dumer, I., Gershkovich, V., Harel, G., Kurizki, G., Mazets, I., and Pillet, P. (2005b). Coherence Protection in a Rubidium. In Ozhigov, Y. I., editor, *Quantum Informatics 2004. Edited by Ozhigov, Yuri I. Proceedings of the SPIE, Volume 5833, pp. 70-79 (2005).*, volume 5833 of *Presented at the Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) Conference*.
- [Brion et al., 2005c] Brion, E., Akulin, V. M., Comparat, D., Dumer, I., Gershkovich, V., Harel, G., Kurizki, G., Mazets, I., and Pillet, P. (2005c). Non-Holonomic Control I. In Ozhigov, Y. I., editor, *Quantum Informatics 2004. Edited by Ozhigov, Yuri I. Proceedings of the SPIE, Volume 5833, pp. 62-69 (2005).*, volume 5833 of *Presented at the Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) Conference*, pages 62–69.
- [Brion et al., 2005d] Brion, E., Akulin, V. M., Comparat, D., Dumer, I., Gershkovich, V., Harel, G., Kurizki, G., Mazets, I., and Pillet, P. (2005d). Non-Holonomic Control II : Non-Holonomic Quantum Devices. In Ozhigov, Y. I., editor, *Quantum Informatics 2004. Edited by Ozhigov, Yuri I. Proceedings of the SPIE, Volume 5833, pp. 70-79 (2005).*, volume 5833 of *Presented at the Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) Conference*, pages 70–79.
- [Brion et al., 2005e] Brion, E., Akulin, V. M., Comparat, D., Dumer, I., Gershkovich, V., Harel, G., Kurizki, G., Mazets, I., and Pillet, P. (2005e). Non-holonomic control III : coherence protection by the quantum zeno effect and non-holonomic control. In Ozhigov, Y. I., editor, *Quantum Informatics 2004. Edited by Ozhigov, Yuri I. Proceedings of the SPIE, Volume 5833, pp. 80-90 (2005).*, volume 5833 of *Presented at the Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) Conference*, pages 80–90.
- [Brion et al., 2005f] Brion, E., Akulin, V. M., Comparat, D., Dumer, I., Gershkovich, V., Harel, G., Kurizki, G., Mazets, I., and Pillet, P. (2005f). Non-holonomic control IV : coherence protection in a rubidium isotope. In Ozhigov, Y. I., editor, *Quantum Informatics 2004. Edited by Ozhigov, Yuri I. Proceedings of the SPIE, Volume 5833, pp. 91-99 (2005).*, volume 5833 of *Presented at the Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) Conference*, pages 91–99.
- [Brion et al., 2005g] Brion, E., Akulin, V. M., Comparat, D., Dumer, I., Harel, G., Kébaili, N., Kurizki, G., Mazets, I., and Pillet, P. (2005g). Coherence protection by the quantum Zeno effect and nonholonomic control in a Rydberg rubidium isotope. *Phys. Rev. A*, 71(5) :052311–+.

- [Brion et al., 2006] Brion, E., Comparat, D., and Harel, G. (2006). Implementation of a CNOT gate in two cold Rydberg atoms by the nonholonomic control technique. *European Physical Journal D*, 38 :381–387.
- [Castelli et al., 2008] Castelli, F., Boscolo, I., Cialdi, S., Giammarchi, M. G., Villa, F., and Comparat, D. (2008). Efficient positronium excitation by two laser pulses for antihydrogen production. *ArXiv e-prints*, 804.
- [Chotia et al., 2008] Chotia, A., Viteau, M., Vogt, T., Comparat, D., and Pillet, P. (2008). Kinetic Monte Carlo modeling of dipole blockade in Rydberg excitation experiment. *New Journal of Physics*, 10 :5031–+.
- [Comparat, 2004] Comparat, D. (2004). Improved LeRoy-Bernstein near-dissociation expansion formula, and prospect for photoassociation spectroscopy. *J. Chem. Phys.*, 120 :1318–1329.
- [Comparat, 2006] Comparat, D. (2006). General conditions for a quantum adiabatic evolution. *ArXiv Quantum Physics e-prints*.
- [Comparat et al., 2007] Comparat, D., Chotia, A., Viteau, M., Vogt, T., and Pillet, P. (2007). Aux frontières des plasmas : les plasmas ultras-froids. *Reflets de la physique*.
- [Comparat et al., 1999] Comparat, D., Drag, C., Fioretti, A., Dulieu, O., and Pillet, P. (1999). Photoassociative Spectroscopy and Formation of Cold Molecules in Cold Cesium Vapor : Trap-Loss Spectrum versus Ion Spectrum. *Journal of Molecular Spectroscopy*, 195 :229–235.
- [Comparat et al., 2000] Comparat, D., Drag, C., Laburthe Tolra, B., Fioretti, A., Pillet, P., Crubellier, A., Dulieu, O., and Masnou-Seeuws, F. (2000). Formation of cold Cs_2 ground state molecules through photoassociation in the 1_u pure long-range state. *European Physical Journal D*, 11 :59–71.
- [Comparat et al., 2006] Comparat, D., Fioretti, A., Stern, G., Dimova, E., Tolra, B. L., and Pillet, P. (2006). Optimized production of large Bose-Einstein condensates. *Physical Review A*, 73(4) :043410–+.
- [Comparat and Pillet, 2002] Comparat, D. and Pillet, P. (2002). *Recent Research and Developments in Molecular Spectroscopy*, chapter Experiments of photoassociation and of cold-molecule formation in a cesium magneto-optical trap, pages 154–176. S.G. Pandalai, Transworld Research Network.
- [Comparat et al., 2003] Comparat, D., Vanhaecke, N., Lisdar, C., and Pillet, P. (2003). *Interactions in Ultracold Gases : From atoms to molecules*, chapter Formation and Trapping of Cold Molecules, page 320. Matthias Weidemüller, Claus Zimmermann : Wiley-VCH Verlag GmbH.
- [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. *MNRAS*, 361 :1227–1242.
- [Dimova et al., 2007] Dimova, E., Morizot, O., Stern, G., Alzar, C. G., Fioretti, A., Lorent, V., Comparat, D., Perrin, H., and Pillet, P. (2007). Continuous transfer and laser guiding between two cold atom traps. *Eur. Phys. J. D*, 42 :299.
- [Dion et al., 2002] Dion, C. M., Dulieu, O., Comparat, D., de Souza Melo, W., Vanhaecke, N., Pillet, P., Beuc, R., Milošević, S., and Pichler, G. (2002). Photoionization and detection of ultracold Cs_2 molecules through diffuse bands. *European Physical Journal D*, 18 :365–370.

- [Drag et al., 2000] Drag, C., Laburthe-Tolra, B., Comparat, D., Fioretti, A., A.Crubellier, Dulieu, O., Masnou-Seeuws, F., Guibal, S., and Pillet, P. (2000). Photoassociative spectroscopy of Cs₂ : Formation of cold molecules and determination of the Cs-Cs scattering lengths. In S. Martelluci, A.N. Chester, A. Aspect et M. Inguscio, editor, *Comptes rendus du Workshop \$Bose-Einstein condensates and atoms lasers*. Kluwer Academic/Plenum Publishers.
- [Drag et al., 2000a] Drag, C., Laburthe Tolra, B., T'jampens, B., Comparat, D., Allegrini, M., Crubellier, A., and Pillet, P. (2000a). Photoassociative Spectroscopy as a Self-Sufficient Tool for the Determination of the Cs Triplet Scattering Length. *Physical Review Letters*, 85 :1408–1411.
- [Drag et al., 1999] Drag, C., Tolra, B. L., Comparat, D., andA. Crubellier, A. F., Dulieu, O., Masnou-Seeuws, F., Guibal, S., and Pillet, P. (1999). Photoassociative spectroscopy of Cs₂ : formation of cold molecules and determination of the Cs-Cs scattering length. *Proceedings of the workshop on Bose-Einstein condensation, EriceSicile*.
- [Drag et al., 2000b] Drag, C., Tolra, B. L., Dulieu, O., Comparat, D., Vatasescu, M., Boussen, S., Guibal, S., Crubellier, A., and Pillet, P. (2000b). Experimental versus theoretical rates for photoassociation and for formation of ultracold molecules. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 36 :1378–1388.
- [Fioretti et al., 1998] Fioretti, A., Comparat, D., Crubellier, A., Dulieu, O., Masnou-Seeuws, F., and Pillet, P. (1998). Formation of Cold Cs₂ Molecules through Photoassociation. *Phys. Rev. Lett.*, 80 :4402–4405.
- [Fioretti et al., 1999] Fioretti, A., Comparat, D., Drag, C., Amiot, C., Dulieu, O., Masnou-Seeuws, F., and Pillet, P. (1999). Photoassociative spectroscopy of the long-range state. *European Physical Journal D*, 5 :389–403.
- [Fioretti et al., 1998] Fioretti, A., Comparat, D., Drag, C., Crubellier, A., Dulieu, O., Masnou-Seeuws, F., Amiot, C., and Pillet, P. (1998). Translationally cold Cs₂ molecules formation in a magneto-optical trap. In J.C. Vickermann, IL Lyon, N.P. Lockyer and J.E. Parks, editor, *CP454 : Resonance Ionization Spectroscopy*, pages 147–152.
- [Fioretti et al., 1999a] Fioretti, A., Comparat, D., Drag, C., Crubellier, A., Dulieu, O., Masnou-Seeuws, F., Amiot, C., and Pillett, P. (1999a). Molécules froides. *Images de la physique*, pages 47–51.
- [Fioretti et al., 1999b] Fioretti, A., Comparat, D., Drag, C., Gallagher, T., and Pillet, P. (1999b). Long-range forces between cold atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 82 :1839.
- [Fioretti et al., 2000] Fioretti, A., Drag, C., Comparat, D., Laburthe Tolra, B., Dulieu, O., Crubellier, A., Amiot, C., Masnou-Seeuws, F., and Pillet, P. (2000). Formation of cold Cs₂ molecules through photoassociation. In *American Institute of Physics Conference Series*, volume 500 of *American Institute of Physics Conference Series*, pages 198–206.
- [Fioretti et al., 2000] Fioretti, A., Drag, C., Laburthe-Tolra, B., Comparat, D., Amiot, C., A.Crubellier, Dulieu, O., Masnou-Seeuws, F., and Pillet, P. (2000). Formation of cold Cs₂ molecules through photoassociation. In Y. Itikawa, K. Okuno, H. Tanaka, A. Yagishita, M. Matsuzawa, editor, *The Physics of Electronic and Atomic Collisions,XXI-ICPEAC : AIP conference Proceeding vol 500*, pages 198–206.
- [Guibal et al., 2000] Guibal, S., Tolra, B. L., Drag, C., Comparat, D., Fioretti, A., Crubellier, A., Dulieu, O., Masnou-Seeuws, F., and Pillet, P. (2000). Formation de molécules de Cs₂ froides. In *Comptes rendus de COLOQ'6*, volume 10, page 151.

- [Kellerbauer et al., 2008] Kellerbauer, A., Amoretti, M., Belov, A. S., Bonomi, G., Boscolo, I., Brusa, R. S., Büchner, M., Byakov, V. M., Cabaret, L., Canali, C., Carraro, C., Castelli, F., Cialdi, S., de Combarieu, M., Comparat, D., Consolati, G., Djourellov, N., Doser, M., Drobychev, G., Dupasquier, A., Ferrari, G., Forget, P., Formaro, L., Gervasini, A., Giammarchi, M. G., Gninenko, S. N., Gribakin, G., Hogan, S. D., Jacquy, M., Lagomarsino, V., Manuzio, G., Mariazzi, S., Matveev, V. A., Meier, J. O., Merkt, F., Nedelec, P., Oberthaler, M. K., Pari, P., Prevedelli, M., Quasso, F., Rotondi, A., Sillou, D., Stepanov, S. V., Stroke, H. H., Testera, G., Tino, G. M., Trénec, G., Vairo, A., Vigué, J., Walters, H., Warring, U., Zavatarelli, S., and Zvezhinskij, D. S. (2008). Proposed antimatter gravity measurement with an antihydrogen beam. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 266 :351–356.
- [Laburthe Tolra et al., 2001] Laburthe Tolra, B., Drag, C., Boussen, S., T’Jampens, B., Dion, C., Guibal, S., Comparat, D., Dulieu, O., Crubellier, A., Masnou-Seeuws, F., and Pillet, P. (June 2001). "photoassociation, cold molecules and prospects". *Comptes Rendus de l’Académie des Sciences Series IV Physics*, 2 :681–686(6).
- [Laburthe Tolra et al., 2003] Laburthe Tolra, B., Hoang, N., T’Jampens, B., Vanhaecke, N., Drag, C., Crubellier, A., Comparat, D., and Pillet, P. (2003). Controlling the formation of cold molecules via a Feshbach resonance. *Europhysics Letters*, 64 :171–177.
- [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–+.
- [Lisdar et al., 2002] Lisdar, C., Vanhaecke, N., Comparat, D., and Pillet, P. (2002). Line shape analysis of two-colour photoassociation spectra on the example of the Cs ground state. *European Physical Journal D*, 21 :299–309.
- [Mourachko et al., 1997] Mourachko, I., Comparat, D., de Tomasi, F., Fioretti, A., Akulin, V., and Pillet, P. (1997). Many-body interaction in a frozen rydberg gas. In Nenner, I. and Vetter, R., editors, *Comptes rendus du XVII Symposium International sur les Jets Moléculaires (Molecular Beams)*, pages 325–328.
- [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.
- [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. *Physical Review Letters*, 95(23) :233002–+.
- [Pillet et al., 1998a] Pillet, P., Akulin, V., Comparat, D., de Tomasi, F., Fioretti, A., and Mourachko, I. (1998a). Atomes de rydberg ultra-froids. In *Comptes rendus de COLOQ’5*, volume 23, page 1549.
- [Pillet and Comparat, 2006] Pillet, P. and Comparat, D. (2006). Topical issue on “Ultracold plasmas and cold Rydberg atoms”. *European Physical Journal D*, 40 :1–2.
- [Pillet et al., 1998b] Pillet, P., Comparat, D., Drag, C., Fioretti, A., Crubellier, A., Dulieu, O., and Masnou-Seeuws, F. (1998b). Molécules froides. In *(DIAM Ũ 5ème colloque), Tome 1 : Conférences, C-33*, volume 1.
- [Pillet et al., 2005] Pillet, P., Comparat, D., Mudrich, M., Vogt, T., Zahzam, N., Akulin, V., Gallagher, T., Li, W., Tanner, P., Noel, M., and Mourachko, I. (2005). *Decoherence, Entan-*

- glement and Information Protection in Complex Quantum Systems*, chapter Coherence and decoherence in Rydberg gases, pages 411–436. V. M. Akulin et al. : Springer.
- [Pillet et al., 2000] Pillet, P., Drag, C., Tolra, B. L., Comparat, D., Fioretti, A., Guibal, S., Amiot, C., Crubellier, A., Dulieu, O., and Masnou-Seeuws, F. (2000). Photoassociative spectroscopy and formation of cold molecules. *Physica Scripta*, T86 :38.
- [Pillet et al., 2003] Pillet, P., Vanhaecke, N., Lisdat, C., Comparat, D., Dulieu, O., Crubellier, A., and Masnou-Seeuws, F. (2003). Ultra-cold Molecules : Formation, Trapping and Prospects. *Physica Scripta Volume T*, 105 :7–+.
- [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.
- [Ryu et al., 2002] Ryu, C., Freeland, R. S., Wynar, R., Comparat, D., and Heinzen, D. J. (2002). Formation, magnetic trapping, and collisions of ultracold Rb_2 molecules. In *Technical Digest. Summaries of papers presented at the Quantum Electronics and Laser Science Conference 2002. Conference Edition 100*, volume 1.
- [Stern et al., 2007] Stern, G., Dimova, E., Fioretti, A., Comparat, D., and Pillet, P. (2007). Magnetic or optical molasses loading for a Cs dipole trap. In *14th International School on Quantum Electronics : Laser Physics and Applications. Edited by Atanasov, Peter A. ; Dreischuh, Tanja N. ; Gateva, Sanka V. ; Kovachev, Lubomir M.. Proceedings of the SPIE, Volume 6604, pp. 66040M (2007).*, volume 6604 of *Presented at the Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) Conference*.
- [Testera et al., 2008] Testera, G., Belov, A. S., Bonomi, G., Boscolo, I., Brambilla, N., Brusa, R. S., Byakov, V. M., Cabaret, L., Canali, C., Carraro, C., Castelli, F., Cialdi, S., de Combarieu, M., Comparat, D., Consolati, G., Djourellov, N., Doser, M., Drobychev, G., Dupasquier, A., Fabris, D., Ferragut, R., Ferrari, G., Fischer, A., Fontana, A., Forget, P., Formaro, L., Lunardon, M., Gervasini, A., Giammarchi, M. G., Gninenko, S. N., Gribakin, G., Heyne, R., Hogan, S. D., Kellerbauer, A., Krasnický, D., Lagomarsino, V., Manuzio, G., Mariazzi, S., Matveev, V. A., Merkt, F., Moretto, S., Morhard, C., Nebbia, G., Nedelec, P., Oberthaler, M. K., Pari, P., Petracek, V., Prevedelli, M., Al-Qaradawi, I. Y., Quasso, F., Rohne, O., Pesente, S., Rotondi, A., Stapnes, S., Sillou, D., Stepanov, S. V., Stroke, H. H., Tino, G., Vairo, A., Viesti, G., Walters, H., Warring, U., Zavatarelli, S., Zenoni, A., and Zvezhinskij, D. S. (2008). Formation Of A Cold Antihydrogen Beam in AEGIS For Gravity Measurements. *ArXiv e-prints*, 805.
- [Vanhaecke et al., 2004] Vanhaecke, N., Comparat, D., Crubellier, A., and Pillet, P. (2004). Photoassociation spectroscopy of ultra-cold long-range molecules. In Éditions scientifiques et médicales Elsevier SAS, editor, *Comptes Rendus Physique : Gas phase molecular spectroscopy*, volume 5, pages 161–169.
- [Vanhaecke et al., 2005a] Vanhaecke, N., Comparat, D., and Pillet, P. (2005a). Rydberg decelerator using a travelling electric-field gradient. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 38 :409–+.
- [Vanhaecke et al., 2005b] Vanhaecke, N., Comparat, D., Tate, D. A., and Pillet, P. (2005b). Ionization of Rydberg atoms embedded in an ultracold plasma. *Phys. Rev. A*, 71(1) :013416–+.

- [Vanhaecke et al., 2002] Vanhaecke, N., de Souza Melo, W., Laburthe Tolra, B., Comparat, D., and Pillet, P. (2002). Accumulation of Cold Cesium Molecules via Photoassociation in a Mixed Atomic and Molecular Trap. *Physical Review Letters*, 89(6) :063001–+.
- [Vanhaecke et al., 2003] Vanhaecke, N., Lisdat, C., Comparat, D., and Pillet, P. (2003). *Interactions in Ultracold Gases : From atoms to molecules*, chapter Photoassociation spectroscopy of the Cs_2 ground state, page 320. Matthias Weidemüller, Claus Zimmermann : Wiley-VCH Verlag GmbH.
- [Vanhaecke et al., 2004] Vanhaecke, N., Lisdat, C., T’jampens, B., Comparat, D., Crubellier, A., and Pillet, P. (2004). Accurate asymptotic ground state potential curves of Cs_2 from two-colour photoassociation. *European Physical Journal D*, 28 :351–360.
- [Vatasescu et al., 2000] Vatasescu, M., Dulieu, O., Amiot, C., Comparat, D., Drag, C., Kokoouline, V., Masnou-Seeuws, F., and Pillet, P. (2000). Multichannel tunneling in the $\text{Cs}_2 0_g^-$ photoassociation spectrum. *Phys. Rev. A*, 61(4) :044701–+.
- [Verhaar et al., 2001] Verhaar, B. J., Kokkelmans, S., van Kempen, E., Freeland, R. S., Wynar, R., Comparat, D., Ryu, C., and Heinzen, D. J. (2001). Spectroscopy of the Highest Rb_2 Bound States with 10 kHz Precision. *APS Meeting Abstracts*, pages H4002+.
- [Viteau et al., 2008] Viteau, M., Chotia, A., Allegrini, M., Bouloufa, N., Dulieu, O., Comparat, D., and Pillet, P. (2008). Optical Pumping and Vibrational Cooling of Molecules. *Science*, 321(5886) :232–234.
- [Vogt et al., 2007] Vogt, T., Viteau, M., Chotia, A., Zhao, J., Comparat, D., and Pillet, P. (2007). Electric-Field Induced Dipole Blockade with Rydberg Atoms. *Physical Review Letters*, 99(7) :073002–+.
- [Vogt et al., 2006] Vogt, T., Viteau, M., Zhao, J., Chotia, A., Comparat, D., and Pillet, P. (2006). Dipole Blockade at Förster Resonances in High Resolution Laser Excitation of Rydberg States of Cesium Atoms. *Physical Review Letters*, 97(8) :083003–+.
- [Zahzam et al., 2006] Zahzam, N., Vogt, T., Mudrich, M., Comparat, D., and Pillet, P. (2006). Atom-Molecule Collisions in an Optically Trapped Gas. *Physical Review Letters*, 96(2) :023202–+.

Chapitre 4

Atomes de Rydberg

4.1 Introduction et contexte international

4.1.1 Gas gelé et dynamique

Les expériences concernant les atomes de Rydberg froids furent initiées en 1996 par notre équipe et celle de Thomas Gallagher (université de Virginie) et font apparaître des phénomènes à N-corps qui conduisent à une description de ce gaz de Rydberg "gelé" en terme de solide artificiel [Mourachko et al., 1998, Anderson et al., 1998]. Les effets à N-corps sont toujours un champ important d'études [Tanner et al., 2008, Reinhard et al., 2008] qui exploitent le fait que les dipôles de transitions entre atomes de Rydberg sont gigantesques car ils varient en n^2 où n est le nombre quantique principal de l'atome.

Ces études se font souvent en champ électrique afin d'étudier, entre autres, le phénomène appelé transfert résonnant d'excitation. Dans le cas du césium cela concerne, par exemple, l'excitation de l'état np placé, par effet Stark, à mi-chemin en énergie entre les états ns et $(n+1)s$. Le nom résonance de Förster donné à cette configuration provient du titre de l'article [Walker and Saffman, 2005] (malgré une erreur dans le nom "Föster") en liaison avec l'analogie du processus de FRET (Förster Resonant Energy Transfer) en biologie où l'interaction dipolaire entre deux molécules permet de transférer l'excitation de l'une à l'autre qui devient alors fluorescente lorsque la distance entre les deux particules rend le processus résonnant. Mentionnons tout de suite que la richesse de cette analogie, ainsi que des analogies possibles avec la diffusion d'excitation (excitons, verre de spin, ...), commencent tout juste à être abordées à l'aide, par exemple, d'une résolution spatiale des atomes [van Ditzhuijzen et al., 2007].

Au début de ces études FRET, quelques modèles théoriques furent étudiés mais dans le cadre d'un gaz de Rydberg gelé [Akulin et al., 1999]. Or, en 1999 nous avons démontré que cette hypothèse doit être corrigée car il est nécessaire de prendre en compte l'effet dynamique des forces dipôle-dipôle pour les paires d'atomes proches [Fioretti et al., 1999].

Au cours des années 1998-2000 l'étude des plasmas ultra-froids commença [Killian et al., 1999]. L'évolution d'un gaz de Rydberg froid vers un plasma ultra-froid [Robinson et al., 2000] montre la frontière ténue entre ces deux systèmes. Le sujet des plasmas ultra-froids sera plus spécifiquement abordé au chapitre suivant.

4.1.2 Blocage dipolaire de l'excitation Rydberg

Depuis l'année 2001, un autre intérêt des atomes de Rydberg froids apparut suite à deux propositions théoriques [Jaksch et al., 2000, Lukin et al., 2001], pour réaliser une porte quantique rapide avec des atomes froids excités dans un état de Rydberg.

Le principe d'une porte logique est le contrôle d'un (quantum-)bit par un autre. C'est exactement ce qui se passe dans ces propositions qui utilisent le fait que l'excitation laser d'un atome dépend de l'excitation d'un autre atome. En effet, lorsqu'un atome est excité, par un laser spectralement fin, dans un état de Rydberg le second ne peut être excité car la résonance est déplacée du fait de l'interaction dipôle - dipôle. C'est le phénomène de blocage dipolaire de l'excitation. On classe parfois, selon l'ordre de la théorie des perturbations, en deux types l'interaction dipolaire. La première est entre des dipôles permanents, ou de transition comme dans le cas "Förster", et crée donc un potentiel d'interaction variant comme C_3/R^3 avec la distance internucléaire R . La seconde, parfois qualifiée de Van der Waals, a lieu en champ électrique nul et provient d'une interaction dipôle-dipôle du second ordre (dipôle induit-dipôle induit), avec un potentiel d'interaction variant comme C_6/R^6 avec la distance internucléaire R .

L'observation du phénomène de blocage dipolaire ou Van der Waals fut alors la quête de presque tous les groupes de recherche travaillant sur les atomes de Rydberg froids. L'observation de cet effet demande une résolution spectroscopique importante (typiquement de l'ordre de grandeur des interactions en jeu, i.e ≈ 10 MHz). Il fallut pour tous ces groupes se passer de la méthode traditionnelle d'excitation des atomes de Rydberg et ne plus utiliser de lasers pulsés commerciaux trop larges spectralement. Notons qu'avec ces lasers continus une meilleure excitation des états de Rydberg, par transfert adiabatique, deviens alors possible [Kritsun et al., 2004, Cubel et al., 2005]. En 2004, deux expériences, l'une du groupe de Phil Gould (Storrs, Connecticut) [Tong et al., 2004] utilisant un laser pulsé fin spectralement et l'autre du groupe de Matthias Weidemüller (Fribourg, Allemagne) [Singer et al., 2004] ou, en 2005, du groupe de Georg Raithel (Ann Arbor, Michigan) [Liebisch et al., 2005] utilisant une excitation continue, semblaient indiquer au moins partiellement un blocage Van der Waals. Un autre type d'expérience, du groupe de James Martin [Afrousheh et al., 2004], sonde à l'aide d'une transition radio-fréquence la bande de niveau créée par les interactions Van der Waals entre les atomes du MOT excités dans des états de Rydberg. En 2006, nous avons montré à la fois expérimentalement et théoriquement que le phénomène est perturbé ne serait-ce que par la présence d'un unique ion ce qui peut rendre difficile l'interprétation de ces expériences.

La première mise en évidence de l'effet de blocage dipolaire, pour un potentiel en C_3/R^3 , fut réalisée par notre groupe en 2006, dans deux situations distinctes mais toujours contrôlées par un champ électrique : transfert (FRET) résonnant d'excitation [Vogt et al., 2006] et dipôle induit par champ électrique [Vogt et al., 2007] avec moins d'un ion présent en moyenne dans l'échantillon afin d'éviter toute discussion concernant un éventuel blocage ionique de l'excitation Rydberg.

En 2005, nous avons étudié de façon expérimentale la destruction de la cohérence d'une paire d'atomes du gaz de Rydberg sous l'influence des forces dipolaires [Mudrich et al., 2005]. Ces études font partie des études concernant la destruction de la cohérence d'un gaz de Rydberg sous l'influence des interactions dipolaires initiées par le groupe de T. Gallagher qui étudia les effets de migration d'excitation par des méthodes de type Ramsey [Anderson et al., 2002]. Ces études furent suivies ensuite en 2007 par une étude de type spin-écho dans le groupe de T. Pfau [Heidemann et al., 2007] et en 2008 par des études de transparence induite par la lumière (EIT) de C. Adams à Durham [Weatherill et al., 2008] qui peuvent aussi être menées en cellule

avec des atomes thermiques [Mohapatra et al., 2007]. Les conclusions sont que dans un piège magnéto-optique usuel (MOT) une décohérence, liée aux forces dipolaires, intervient en moins d'une microseconde. Ceci a évidemment des implications pour la réalisation de porte quantiques ou d'intrication entre atomes.

La prochaine étape de nos expériences sera en effet la réalisation effective d'une porte quantique à 2 atomes comme prédite théoriquement. C'est précisément le but de la collaboration que je mène avec Antoine Browaeys du groupe de Philippe Grangier (à l'Institut d'Optique Graduate School) dont le groupe possède l'expertise permettant de piéger uniquement 2 atomes individuellement [Schlosser et al., 2001, Beugnon et al., 2006]. L'expérience se déroule à l'Institut d'Optique et j'interviens en tant qu'"expert" Rydberg. Nos premières études ont ainsi permis de déterminer que l'état $\text{Rb}(58d)$ présente une résonance de type Förster en champ nul et semble donc être un candidat intéressant pour réaliser cette expérience. Le but de l'expérience est d'étudier, sur des systèmes à très petit nombre d'atomes, l'interaction dipolaire afin de pouvoir la contrôler et l'utiliser éventuellement pour faire des manipulations quantiques. En cela elle est très similaire à celle menée dans le groupe de Mark Saffman et de Thad Walker. Ces derniers viennent très récemment de démontrer l'excitation Rydberg cohérente, au travers de l'observation des oscillations de Rabi (observées précédemment sur un échantillon par le groupe de M. Weidemüller [Reetz-Lamour et al., 2008]), d'un unique atome [Johnson et al., 2008] et aussi le phénomène de blocage dipolaire sur deux atomes [Urban et al., 2008]. Ce dernier résultat est aussi un de nos buts immédiats. Mais l'observation du phénomène de blocage dipolaire sur deux atomes permettrait, en ramenant l'un des atomes dans son état fondamental, de réaliser pour la première fois une intrication entre deux atomes neutres dans leur état fondamental.

4.1.3 Comportement collectif d'un gaz de Rydberg dipolaire

Depuis environ 2000 des prédictions théoriques [Santos et al., 2000], notamment des groupes de G. Shlyapnikov, P. Zoller, M. Lewenstein ou L. Santos, concernant le comportement de gaz dipolaires proches de la dégénérescence quantique apparaissent. Je renvoie uniquement aux revues [Baranov et al., 2002, Menotti and Lewenstein, 2007, Menotti et al., 2008] pour plus d'informations.

L'originalité du diagramme de phase en fonction des intensités relatives entre les interactions dipolaires et les interactions à courtes portées, comme la longueur de diffusion, stimula de nombreuses expériences avec des molécules polaires ou des atomes ayant des moments dipolaires magnétiques importants comme l'atome de Chrome. Les études des gaz d'atomes de Rydberg en interactions dipolaires fortes sont un peu hors de ce champ mais peuvent aussi être vues comme la limite de très forte interaction dipolaire de ces études. Une des limites de cette comparaison provient de la durée de vie courte des atomes de Rydberg et de l'existence de collisions inélastiques à 2 corps qui rendent les échantillons d'atomes de Rydberg très instables. En attendant la production de condensat de Bose-Einstein de molécules polaires, les résultats les plus impressionnants sont sans nul doute, à l'heure actuelle, ceux obtenus dans le groupe de Tilman Pfau avec un BEC de Chrome dont le comportement est totalement modifié par les interactions dipolaire magnétiques [Stuhler et al., 2005] avec des liens avec la physique du solide [Santos and Pfau, 2006, Kawaguchi et al., 2006].

Ce même groupe de recherche fut aussi le premier à démontrer un comportement collectif lié au blocage dipolaire [Heidemann et al., 2007]. En effet, le fait de ne pouvoir exciter qu'un atome parmi N à cause du blocage dipolaire impose une fréquence de Rabi $\sqrt{N}$ fois plus

rapide que pour une excitation d'un atome isolé. Cette excitation collective d'un état de Fock (ici à une excitation) d'un système mésoscopique est un aspect important qui était prédit dès les premiers articles théoriques concernant le blocage dipolaire. Ces aspects collectifs sont à rapprocher des observations récentes du comportement superradiant d'un gaz de Rydberg froid sous l'effet du rayonnement du corps noir par les groupes de Phil Gould et de Thad Walker [Wang et al., 2007, Day et al., 2008]. Nous avons aussi observé, ainsi que le groupe de Thomas Gallagher, des comportements similaires [Viteau et al., 2008]. De façon générale, si l'interaction intense entre atomes de Rydberg et rayonnement, micro-onde ou du corps noir notamment, est bien étudiée, par exemple dans les expériences du groupe de Serge Haroche [Maioli et al., 2005, Haroche et al., 2008], son importance pour les expériences concernant les atomes de Rydberg froids commence juste à perçue.

4.1.4 Modélisation d'un gaz de Rydberg

Le système de gaz de Rydberg froids est très complexe à modéliser à cause des multiples facteurs entrant en jeu : effet du corps noir, effets collectifs quantiques, interactions à plusieurs corps, effet des forces et donc de la dynamique du mouvement, prise en compte de nombreux transferts possibles d'excitation pouvant mener à des phénomènes de diffusion d'excitation, effet d'orientation des dipôles, effet de structures fines, effet des ions, effet du placement aléatoire des atomes dans un piège magnéto-optique (MOT) ... Cela explique pourquoi de nombreuses expériences utilisent une vision très simplifiée à 2 atomes pour rendre compte des résultats. Bien que très simple, cette vision a toutefois permis jusqu'à présent de rendre compte de la quasi-totalité des expériences en ne la modifiant que légèrement pour prendre en compte l'un ou l'autre des effets mentionnés.

Les premiers travaux de Vladimir Akulin [Akulin et al., 1999] avec notre groupe, ou les travaux de Frasier avec le groupe de Thomas Gallagher [Frasier et al., 1999], concernèrent l'effet des interactions à deux corps successives et leur interprétation comme une diffusion d'excitation. L'observation du blocage dipolaire par notre groupe en 2006 ou Van der Waals par le groupe du Connecticut en 2004 redonna plusieurs années plus tard un nouvel élan aux simulations théoriques.

Il faut ainsi noter les nombreux travaux théoriques concernant la modélisation du phénomène de blocage dipolaire. Le groupe du Connecticut (Phil Gould et Robin Côté) a développé une approche simple de type champ moyen [Tong et al., 2004] que nous (le thésard Thibault Vogt en particulier) avons améliorée en distinguant l'effet du plus proche voisin qui domine souvent l'effet collectif dans ces interactions en C_3/R^3 ou C_6/R^6 . Conjointement, l'équipe de Jan Michael Rost (à Dresde) [Ates et al., 2007b] étudia l'évolution de la matrice densité réduite qui se résume à notre vision champ moyen amélioré. Enfin Francis Robicheaux étudia avec grand soin les effets quantiques possibles liés aux nombres d'atomes [Robicheaux et al., 2004, Hernández and Robicheaux, 2008]. Comme aussi prédit par la résolution de l'équation de Schrödinger à quelques atomes ($N < 10$), effectuée par le groupe de Matthias Weidemüller [Westermann et al., 2004], un petit nombre d'atomes permet de comprendre tous les effets, ce qui justifie a posteriori l'utilisation dans les modélisations d'une vision simple à 2 atomes éventuellement perturbée par un champ moyen.

Je me suis aperçu qu'un aspect très important n'était pratiquement jamais pris en compte : la dynamique engendrée par la présence d'un ion ou par les forces entre atomes de Rydberg qui est évidemment liée aux processus d'ionisation détaillés dans la partie plasma. Cela m'amena

à développer une simulation, ensuite reprise par le thésard Amodsen Chotia, pour le moment purement classique, des interactions ion-Rydberg ou dipôle-dipôle et des mouvements qu'elles engendrent. La résolution des équations de taux liés à l'excitation laser, et des équations du mouvement, me permit de mettre en évidence, dans les expériences de blocage dipolaire, des effets dynamiques qui sont une signature directe de l'influence des forces à longues portées provenant des dipôles des atomes de Rydberg.

4.1.5 Molécules exotiques avec des atomes de Rydberg

Il faut conclure cette partie théorique par les études concernant les courbes de potentiels moléculaires di-atomiques dont l'un des atomes est un atome de Rydberg. En dehors de leurs parties asymptotiques en C_n/R^n , ces courbes révélèrent des états moléculaires exotiques. En 2000 le groupe de C. Greene et H. Sadeghpour prédit des états ayant par exemple un dipôle permanent même en champ électrique nul et qu'ils appelèrent, au vu de la forme spatiale de la densité de présence de l'électron Rydberg, trilobite ou papillon [Greene et al., 2000, Granger et al., 2001, Hamilton et al., 2002]. En 2002, Robin Côté étudia non pas l'interaction entre un atome de Rydberg et un atome peu ou pas excité mais entre deux atomes de Rydberg et prédit des molécules purement à longue distance : des macro-Rydberg [Boisseau et al., 2002]. Ces études se poursuivent avec des calculs parfois en champ électrique ou magnétique, à plus de deux atomes ou avec un gaz en réseau [Chibisov et al., 2002, Khuskivadze et al., 2002, Liu and Rost, 2006, Mayle et al., 2007, Schwettmann et al., 2006, Ates et al., 2007a].

Il faut tout de suite préciser que la quête expérimentale de ces molécules est vierge de résultats. Tout au plus peut-on mentionner l'observation spectroscopique, en 2003 par le groupe de Stoors (Phil Gould), d'un croisement de niveau moléculaire [Farooqi et al., 2003, de Oliveira et al., 2003] et l'observation en 2006 d'élargissement de raies atomique du rubidium (à température thermique) probablement associé à ces courbes de potentiels [Greene et al., 2006].

4.2 Étude du blocage dipolaire

Comme mentionné précédemment, le contrôle de l'excitation Rydberg d'une paire d'atomes a été proposé pour la réalisation de porte logique (par exemple CNOT), et serait d'un grand intérêt pour l'information quantique. Le fonctionnement d'une telle porte repose sur l'effet de blocage dipolaire de l'excitation. Mon travail dans ce cadre fut essentiellement expérimental mais je voudrais juste mentionner mon (petit) apport en tant qu'"expert Rydberg" aux travaux théoriques d'Étienne Brion concernant l'implantation d'une porte CNOT entre deux atomes de Rydberg en utilisant une méthode de contrôle développée par Vladimir Akuline [Brion et al., 2006, Brion et al., 2005]. Du point de vue expérimental une telle excitation doit bien sûr être réalisée avec des lasers de grande finesse spectrale. Nous avons abordé le problème de plusieurs façons en améliorant les propriétés spectrales des lasers utilisés pour exciter les états de Rydberg. Plusieurs types d'excitation ont été utilisés depuis l'année 2005 : excitation pulsée et dépompage par un laser continu Titane :Saphir (Ti :Sa), excitation pulsée d'un état intermédiaire puis excitation depuis cet état vers l'état de Rydberg à l'aide d'un laser Sa :Ti, excitation en échelon (6s,6p,7s,np) à l'aide de deux diodes laser et du laser Sa :Ti et enfin utilisation des transitions micro-ondes (couvrant la gamme 0 – 110 GHz) avec les atomes de Rydberg. Ces expériences sont difficiles et elles montrent clairement la formation d'ions quel que soit le processus d'excitation mis en jeu. Les ions sont créés lors de l'excitation laser ou sont

formés lors de collisions entre atomes de Rydberg. Il est donc très difficile de s'affranchir de la présence des ions sauf au prix d'une diminution drastique du nombre d'atomes de Rydberg et donc de l'intensité de l'interaction dipôle-dipôle mise en jeu. Une des solutions consiste alors à avoir l'interaction dipolaire la plus forte possible [Walker and Saffman, 2008]. C'est pourquoi nous avons préféré travailler avec une interaction de type dipolaire et non Van der Waals. Je présente ci-dessous nos expériences avec plus de détails.

4.2.1 Dipôles créés par un champ électrique : PRL 99 073002 (2007)

Expérience en champ électrique

Dans la première expérience démontrant le blocage dipolaire de l'excitation Rydberg, que je présente ici, l'excitation que nous avons choisie se fait en cascade : $6s \rightarrow 6p$ avec les lasers du MOT, $6p \rightarrow 7s$ à l'aide d'une diode laser de longueur d'onde 1473 nm et finalement $7s \rightarrow np$ à l'aide du laser Sa :Ti.

La figure 4.1 a) indique le diagramme Stark pour l'atome de césium. On y voit nettement que l'état $np_{3/2}$ que nous excitons est polarisé par le champ électrique F . En effet, pour l'état $|np, F\rangle$ en champ, un dipôle permanent $\vec{\mu} = \langle np, F | q_e \vec{r} | np, F \rangle$ se crée et est aligné avec le champ électrique $\vec{F}$, ici q_e est la charge de l'électron et $\vec{r}$ est le rayon vecteur de l'électron de valence. Cette polarisation est due au fait que l'état p est couplé principalement à l'état d voisin par le champ F via un couplage Stark : $\langle np | -q_e \vec{r} | (n-1)d \rangle \cdot \vec{F} = \vec{\mu}_{pd} \cdot \vec{F}$. Un traitement perturbatif indique que $\mu = \|\vec{\mu}\| \sim \frac{\vec{\mu}_{pd} \cdot \vec{F}}{\Delta_{pd}/2}$ où $\hbar \Delta_{pd} = E_{(n-1)d_{5/2}} - E_{np_{3/2}}$ est la différence d'énergie entre l'état $(n-1)d_{5/2}$ et $np_{3/2}$. On retrouve le résultat intuitif : plus le champ électrique extérieur F est important plus le dipôle μ le sera et donc plus l'effet de déplacement d'énergie des niveaux Rydberg le sera et finalement plus l'effet blocage dipolaire sera important. Les spectres d'excitation du niveau $75p_{3/2}$ pour différents champs électriques visibles sur la figure 4.1 b) montrent en effet clairement l'effet croissant d'un blocage d'excitation lorsque le champ F augmente.

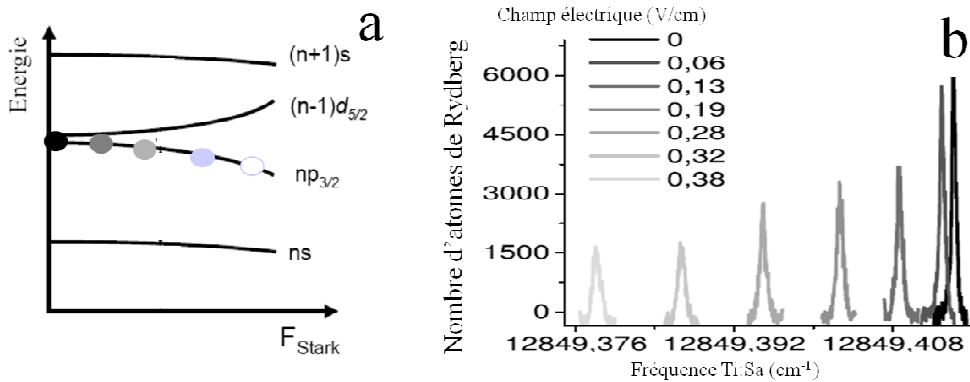


FIG. 4.1 – a) Diagramme Stark simplifié de l'atome de césium. b) Spectre d'excitation du niveau $75p_{3/2}$ pour les différents champs électriques indiqués sur la partie a).

Théorie du blocage dipolaire en champ électrique

La modélisation du phénomène de blocage dipolaire est la suivante. Un atome i pourra être excité dans un état de Rydberg si la largeur laser $\hbar\Delta_{\text{Laser}}$ de l'excitation (6 MHz dans notre cas) est inférieure à l'énergie d'interaction $W_{\text{dip,dip}}$. Cette énergie d'interaction contient l'interaction avec tous les voisins j qui sont dans un état de Rydberg $|np, F\rangle$:

$$W_{\text{dip,dip}} = \sum_j W_{ij} = \sum_j \frac{\vec{\mu}_i \cdot \vec{\mu}_j - (\vec{\mu}_i \cdot \vec{n}_{ij})(\vec{\mu}_j \cdot \vec{n}_{ij})}{4\pi\epsilon_0 R_{ij}^3}$$

où $\vec{\mu}_j$ est le dipôle de l'atome j dans l'état de Rydberg et $\vec{n}_{ij} = \vec{R}_{ij}/R_{ij}$ avec $\vec{R}_{ij}$ le vecteur reliant les atomes i et j .

Un point important de la discussion concernant la sommation $W_{\text{dip,dip}}$ est la dépendance angulaire de l'interaction (observée en 2004 par le groupe de Noel [Carroll et al., 2004]). Jusqu'à notre travail son évaluation était faite, dans le cas Van der Waals tout au moins [Tong et al., 2004], en remplaçant la somme discrète en une intégrale, ce qui revient à faire une théorie de champ moyen. Malheureusement à cause de la variation en $1 - 3\cos^2\theta_{ij}$ de l'interaction dipolaire W_{ij} , où θ_{ij} est l'angle entre l'axe internucléaire et le champ externe, la moyenne angulaire de cette interaction est, dans le cas dipôle-dipôle, nulle. Il est donc nécessaire de traiter plus convenablement cette somme.

En 2005, notre étudiant en thèse, Thibault Vogt, suggéra de séparer la contribution du plus proche voisin des autres et il développa une approche basée sur l'évolution de la matrice densité. Une simulation Monte-Carlo¹ m'a permis de confirmer cette hypothèse de l'effet prédominant du plus proche voisin. Le résultat final est très simple car, dans l'hypothèse du plus proche voisin, celui-ci est situé environ à $R_0 = R_{ij}$ tel que $R_{ij}^3 n_{\text{Ryd}} \sim 1$ où $n_{\text{Ryd}}(t)$ est la densité d'atomes de Rydberg à l'instant t considéré. Ainsi $W_{\text{dip,dip}} \sim \mu^2/R_0^3 \sim \mu^2 n_{\text{Ryd}}(t)$ qui devient de plus en plus important au fur et à mesure que le temps d'excitation, et donc la densité d'atomes de Rydberg, croît. La densité maximum $n_{\text{Ryd,Max}}$ d'atomes de Rydberg que nous pouvons atteindre vérifie donc :

$$\hbar\Delta_{\text{Laser}} \sim \frac{\mu^2 n_{\text{Ryd,Max}}}{4\pi\epsilon_0} \sim n^4 \frac{\mu_{pd}^2 F^2}{\Delta_{pd}^2/4} \frac{n_{\text{Ryd,Max}}}{4\pi\epsilon_0}$$

Cette estimation simple est valide pour des champs faibles, et des temps d'interactions courts. Elle permet par exemple de rendre qualitativement compte des résultats de la figure 4.1 (b) comme la variation de $n_{\text{Ryd,Max}}$ avec F . Au temps plus long ou pour des intensités laser plus importantes des ions peuvent apparaître.

Évidemment les collisions ionisantes entre atomes de Rydberg froids, et donc initialement immobiles, est une signature directe de l'influence des forces à longues portées provenant de l'interaction dipôle-dipôle que l'on cherche à détecter. Je reparlerai donc de la simulation à N corps que j'ai effectuée pour traiter cette dynamique dans la section consacrée aux forces dipolaires.

Notons toutefois ici que nous étudierons plus loin (cf. figure 4.4) l'effet des ions qui est très important car il peut masquer totalement l'effet de blocage dipolaire. Nous avons alors pris soin d'indiquer que le nombre d'ions observés est très inférieur à un dans l'expérience de la figure 4.1.

¹Afin d'avoir un générateur de nombres pseudo-aléatoires performant, j'ai utilisé la GNU Scientific Library (GSL) qui contient une implémentation du générateur Mersenne Twister ainsi que la possibilité de stoker son état à la fin de chaque programme pour le recharger ensuite.

4.2.2 Dipôles créés par une résonance : PRL 97 083003 (2006)

Une autre façon d'étudier le blocage dipolaire est, non pas de créer des dipôles permanents, mais de créer des dipôles de transition entre états.

En particulier nous étudions le transfert d'énergie électronique

$$np_{3/2} + np_{3/2} \rightarrow ns + (n+1)s$$

Pour qu'il soit efficace, à nos températures froides, ce transfert doit être résonnant en énergie. Dans le cas du césium (voir 4.1(a)), lorsque $n < 42$, il se trouve que l'énergie de l'état $np_{3/2}$ est un peu au-dessus de l'énergie médiane des états ns et $(n+1)s$. Ainsi le diagramme Stark pour deux atomes montre qu'il existe un champ électrique particulier où l'énergie d'une paire $np_{3/2}$ (notée p) est exactement celle d'une paire ns (notée s) et $(n+1)s$ (notée s') comme cela est résumé sur la partie droite de la figure 4.2. Pour ce champ, le transfert devient résonnant et l'énergie d'interaction de la paire d'atome pp est cette fois-ci donnée par

$$\frac{\vec{\mu}_{ps} \cdot \vec{\mu}_{ps'} - (\vec{\mu}_{ps} \cdot \vec{n}_{ij})(\vec{\mu}_{ps'} \cdot \vec{n}_{ij})}{4\pi\epsilon_0 R_{ij}^3}$$

où $\vec{\mu}_{ps} = \langle np | -q_e \vec{r} | ns \rangle$ et $\vec{\mu}_{ps'} = \langle np | -q_e \vec{r} | (n+1)s \rangle$.

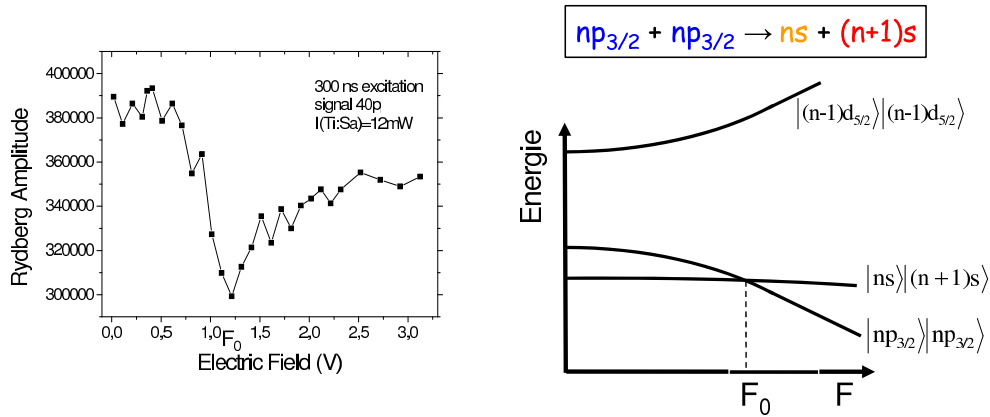


FIG. 4.2 – Droite : schéma des niveaux (pour $n < 42$). Gauche : signaux expérimentaux (pour $n = 40$). On note une diminution partielle, i.e. un blocage partiel, de l'excitation des atomes de Rydberg lors de la résonance de Förster ($F_0 \approx 1,4 \text{ V/cm}$).

Le déplacement en énergie des deux atomes i et j est donc aussi basé sur l'interaction dipolaire et l'étude du blocage dipolaire peut ainsi se faire. L'avantage ici est que le nombre quantique principal n est relativement faible et que les dipôles de transitions sont toujours maximum, ce qui rend l'effet parasite des ions relativement moins gênant. En considérant cette configuration nous avons ainsi réalisé, comme indiqué par la figure 4.2, la première mise en évidence du blocage dipolaire local de l'excitation contrôlé par effet Stark.

4.3 Effet des forces

L'effet des forces à longues portées entre atomes de Rydberg froids a été étudié dès 1999 lors de ma thèse en analogie avec les forces à longues portées, elles aussi en C_3/R^3 entre atomes froids

lors d'un processus de photoassociation [Fioretti et al., 1999]. Les paires d'atomes subissent une force $F = -\frac{dC_3/R^3}{dR} = 3C_3/R^4$ que nous avons négligée dans tous nos modèles précédents. Les forces ne joueront un rôle que pour les paires d'atomes proches $R < 5 \mu\text{m}$. Je décris ci-dessous notre article consacré à la perte de cohérence liée au mouvement des atomes causé par les forces dipolaires.

4.3.1 Effet de décohérence

Une signature de l'influence des forces à longue portée, provenant de l'interaction dipôle-dipôle, est d'être responsable de la destruction de la cohérence d'une paire d'atomes du gaz de Rydberg. Nous avons mis cet effet en évidence en étudiant qualitativement l'oscillation entre les états pp et ss' lors de l'étude de la résonance de Förster. En effet à la résonance de Förster les états propres ne sont pas pp et ss' mais $|+\rangle = \frac{|p\rangle|p\rangle+|s\rangle|s'\rangle}{\sqrt{2}}$ et $|-\rangle = \frac{|p\rangle|p\rangle-|s\rangle|s'\rangle}{\sqrt{2}}$.

L'excitation laser s'effectuant sur les états atomiques $|np\rangle$, il est nécessaire de résoudre spectroscopiquement le croisement de niveau donnant lieu aux états propres $|+\rangle$ et $|-\rangle$ afin de les distinguer. Ne disposant pas encore en 2005 de notre système d'excitation avec des lasers continus nous avons utilisé une spectroscopie dite de dépompage, i.e. en utilisant un laser continu (Ti :Sa) non pas pour exciter mais pour sonder (vers l'état $7s$) la population des états de Rydberg np suite à une excitation large bande produite par un laser pulsé. Le laser pulsé ne résout pas les états $|+\rangle$ et $|-\rangle$ mais excite une paire $|p\rangle|p\rangle = \frac{|+\rangle+|-\rangle}{\sqrt{2}}$. L'une des différences les plus importantes entre les deux états provient du fait que les atomes formant l'état $|+\rangle$ sont soumis à une force répulsive alors que les atomes formant l'état $|-\rangle$ sont soumis à une force attractive. Ainsi les énergies des états $|+\rangle$ et $|-\rangle$ évoluent différemment au cours du temps ce qui produit un déphasage entre eux. Notre étude de la décohérence fut très simple. Sans détecter la phase relative entre ces deux états il nous est possible de mesurer, grâce à notre spectroscopie de dépompage, l'énergie des états $|+\rangle$ et $|-\rangle$ au cours du temps. Évidemment le signal est moyenné sur l'ensemble des paires d'atomes et son interprétation est parfois difficile. Mais l'une des observations les plus directes (voir l'article attaché) fut la perte totale de cohérence au bout d'une microseconde liée à la disparition des états $|-\rangle$ lors de la collision inélastique induite par les forces attractives. L'effet de cette ionisation fut visible de façon encore plus évidente lors des expériences menées en 2006 avec des lasers continus. J'ai donc choisi d'illustrer cette expérience par la figure 4.3. Le signal expérimental indique que pour un champ électrique F supérieur au champ de Förster F_0 l'excitation de la paire d'atomes np, np crée une paire d'atomes $|-\rangle$ attirés l'un vers l'autre, qui finit par s'ioniser.

4.3.2 Modélisation de la dynamique : NJP 10, 045031 (2008)

L'influence des forces à longues portées provenant de l'interaction dipôle-dipôle est donc important et nocif pour le contrôle éventuel de cette interaction. Comme indiqué précédemment, en dehors des études concernant les plasmas ultra-froids, il n'existe quasiment aucune simulation de ces forces ou des effets des ions sur les atomes de Rydberg en interactions dipolaire. Il m'a donc semblé très important d'avoir une simulation plus poussée. Malheureusement, marier les effets dynamiques à N corps et la cohérence quantique n'est pas chose aisée et j'ai donc opté pour une approche purement classique où tous les dipôles $\vec{\mu}$ sont classiques. Outre la simplicité de cette approche la comparaison avec des expériences où la cohérence semble jouer un rôle permettra d'isoler les effets purement quantiques des autres. Le code fut écrit en C++ et ensuite

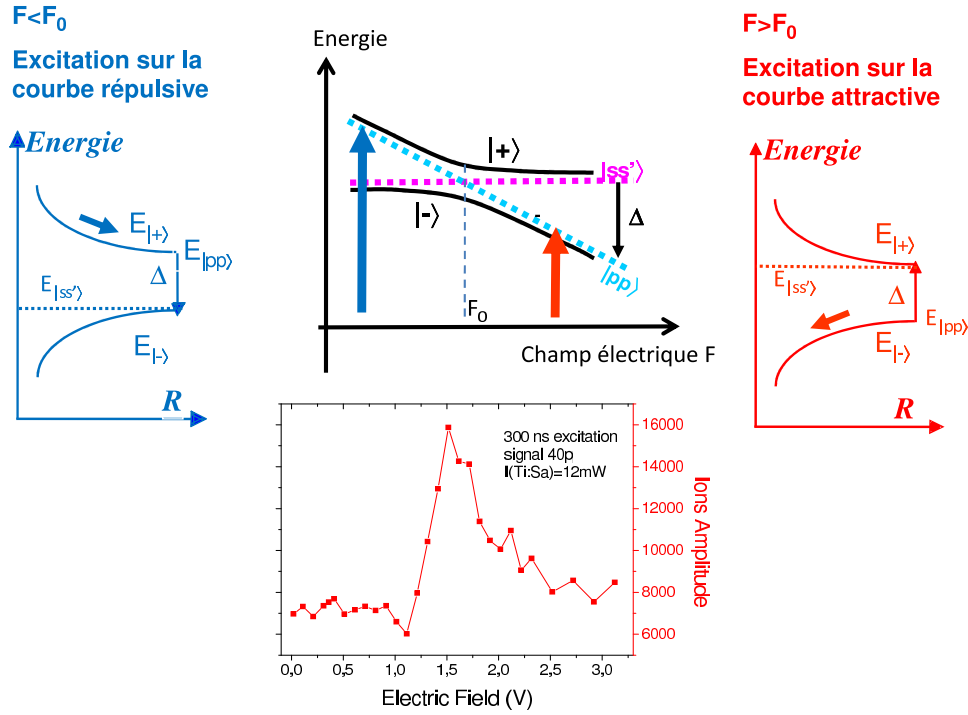


FIG. 4.3 – Mise en évidence des forces dipôles-dipôles entre atomes de Rydberg de césium excités dans l'état $np_{3/2}$. Haut au milieu : zoom sur le schéma des niveaux (pour $n < 42$). Lorsque le champ électrique est à résonance (champ de Förster F_0), $|+\rangle = \frac{|np\rangle|np\rangle + |ns\rangle|(n+1)s\rangle}{\sqrt{2}}$ et $|-\rangle = \frac{|np\rangle|np\rangle - |ns\rangle|(n+1)s\rangle}{\sqrt{2}}$ sont les états propres du système en interaction dipolaire. Les états $|+\rangle$ sont soumis à une force répulsive (voir le schéma des courbes d'interaction en haut à gauche) alors que les atomes formant l'état $|-\rangle$ sont soumis à une force attractive (haut à droite). L'excitation laser se fait sur l'état np . En fonction de la position du champ électrique par rapport à F_0 on excite soit l'état $|+\rangle$ ($F < F_0$) soit l'état $|-\rangle$ ($F > F_0$ à droite). La figure du milieu en bas est le signal expérimental ionique montrant clairement l'effet des collisions entre atomes lors de l'excitation de l'état $|-\rangle$ pour $F > F_0$.

corrigé par Amodsen Chotia en thèse dans notre groupe. Toutes les cohérences sont donc figées ce qui ramène les équations d'évolution de la matrice densité réduite à un corps à une simple équation de taux. Une fois l'excitation laser réduite à une équation de taux il ne suffit plus qu'à résoudre cette équation de manière la plus rapide et exacte possible. J'ai alors découvert une approche appelée Monte-Carlo cinétique [Chotia et al., 2008]. Cette approche était à ma connaissance inusitée en physique atomique, bien que très utilisée en physique des dépôts sur surfaces. Contrairement à la méthode classique, consistant à choisir un petit pas de temps dt afin de faire évoluer le système avec une probabilité $\Gamma dt \ll 1$, où Γ est le taux de départ, la méthode cinétique choisit de façon optimale $dt \sim 1/\Gamma$ afin de faire évoluer le système à chaque pas de temps. De plus, aussi surprenant que cela puisse paraître, cette méthode résout de façon exacte (au sens qu'il est impossible de distinguer le résultat d'une expérience) et rapide toute équation de taux (ou équation maîtresse). J'ai donc choisi de détailler l'algorithme, dans la publication (et sur le site Wikipedia) relative à notre simulation de l'effet de blocage dipolaire

par cette approche [Chotia et al., 2008].

La dynamique à N corps, quant à elle, fut effectuée à l'aide du site web <http://www.manybody.org> et du livre "The Art of Computational Science". Les courbes de potentiels réelles sont bien plus complexes, notamment à R faible, que les courbes d'attraction classique entre dipôle utilisées dans le code et le calcul de la dynamique ne nécessite pas une grande précision. Le choix d'un grand pas de temps et d'un algorithme d'ordre élevé (plus de quatre) n'est pas nécessairement l'optimum à cause des erreurs d'arrondi et de la faible stabilité. De plus il est connu que l'algorithme classique de Runge-Kutta ne convient pas à une évolution hamiltonienne car il crée des termes dissipatifs non hamiltoniens au cours de l'évolution. Pour toutes ces raisons, j'ai donc opté pour l'algorithme Leapfrog (algorithme saute-mouton) de Verlet-Störmer-Delambre (utilisé en 1791 par Delambre et redécouvert plusieurs fois notamment par le physicien français Verlet) qui est aussi utilisé dans la modélisation des trajectoires des jeux électroniques.

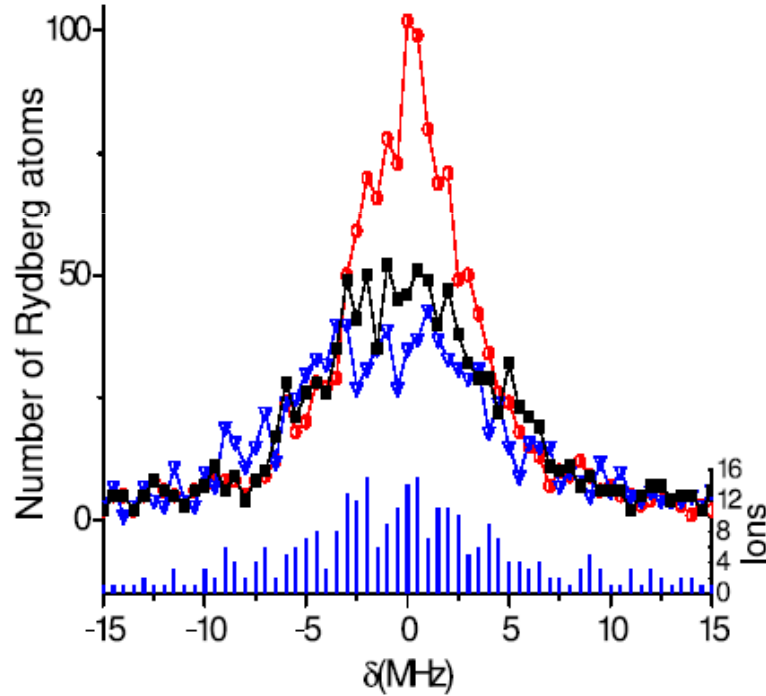


FIG. 4.4 – Simulation cinétique Monte-Carlo et dynamique à N corps de l'excitation laser d'atomes vers l'état $70p$ en présence d'un champ électrique de $F = 0.4$ V/cm. Nombre d'atomes excités après 300 ns en fonction du désaccord du laser à résonance, pas d'interaction dipolaire (cercles), interaction dipolaire mais pas d'ions (carrés) ce qui montre l'effet de blocage. Afin d'étudier l'effet des ions nous avons simulé (triangle), l'apparition d'ions (en nombre donné par les barres bleues) durant l'expérience à un taux dix fois celui réel et en annulant artificiellement les interactions dipolaires. On voit ici qu'il est difficile de distinguer une situation avec blocage dipolaire d'une situation où les ions seuls créent un blocage.

Ce code a déjà permis de valider l'hypothèse d'une interaction prédominante entre plus proches voisins. La prise en compte de l'ionisation lorsque deux atomes de Rydberg s'approchent [Li et al., 2005] a aussi permis de montrer que l'effet d'un unique ion permet de masquer l'effet de blocage dipolaire comme indiqué sur la figure 4.4. Contrairement aux études théoriques

précédentes [Ates et al., 2007b] notre modélisation incluant l'ionisation par collision a permis de rendre compte de l'expérience [Singer et al., 2004] du groupe de Matthias Weidemüller et de montrer que l'observation du blocage dipolaire pouvait être en partie masquée par la présence de quelques ions. Le modèle nous a finalement permis de suggérer que les collisions Rydberg-ion peuvent aussi être très importantes pour augmenter le taux d'ionisation des atomes de Rydberg. Un article en collaboration avec Thomas Gallagher viens d'être soumis à publication sur le sujet [Viteau et al., 2008].

Le modèle peut évoluer facilement pour prendre en compte les aspects superradiants ou à très longues portées en $1/R$ qui pourraient jouer un rôle dans la dynamique d'évolution. Enfin, une des difficultés qu'il reste à résoudre pour l'évolution futur de la modélisation est l'implantation de la cohérence, au moins entre deux atomes, pour traiter le cas des résonances de Förster.

4.4 Évolution future des recherches

Sans dévoiler tous mes projets, je voudrais donner ici quelques pistes de réflexion sur nos évolutions futures.

4.4.1 Molécules de Rydberg

Outre qu'elles sont réalisées sur le même montage que les expériences de molécules froides, les expériences Rydberg ne sont pas sans lien avec cette thématique, d'abord conceptuellement, avec les aspects longue distance des interactions, mais aussi avec la possibilité d'étudier des collisions atome de Rydberg/molécule ou même pour la formation de molécules de Rydberg. Une expérience intéressante serait la photoassociation d'atomes froids en état de Rydberg pour créer les molécules exotiques mentionnées dans l'introduction comme celles formées de deux atomes de Rydberg (macro Rydberg) ou bien de molécules où l'orbitale de l'électron Rydberg englobe l'ion et un autre atome (états trilobites). Ces expériences découlent tout naturellement de la poursuite de l'amélioration des techniques d'excitation des états de Rydberg atomiques. Une récente publication [Schwettmann et al., 2007] prédit un taux de photoassociation d'une petite dizaine de molécules par seconde, ce qui devrait être détectable en ionisant ces molécules et en utilisant un compteur d'ions.

4.4.2 Gaz dipolaire ordonné

Il faut noter qu'à ce jour toutes les expériences concernant les atomes de Rydberg furent effectués avec des MOT ou alors très récemment dans des condensats de Bose-Einstein [Heidemann et al., 2008] i.e. avec des atomes distribués de façon aléatoire dans l'échantillon atomique. De nombreux effets nouveaux pourraient apparaître avec l'utilisation de gaz en réseau. Une collaboration avec le groupe de Ennio Arimondo à Pise qui possède un réseau "parfait" (lié à une transition de Mott [Greiner et al., 2002]) d'atomes de Rb est envisagée dans ce cadre. Matthieu Viteau va effectuer son stage post-doctoral dans cette équipe ce qui devrait encore faciliter les collaborations. Une idée intéressante, suggérée par [Santos et al., 2000], est de créer un dipôle permanent pour les atomes dans l'état fondamental en les couplant de façon perturbative à des atomes de Rydberg. Cette astuce permettrait d'avoir des gaz dipolaire d'atomes dans l'état fondamental et serait une alternative très intéressante pour l'étude des gaz dipolaires.

4.4.3 Contrôle quantique

De façon un peu similaire au gaz en réseau le contrôle précis des distances entre atomes de Rydberg, ou tout au moins la mesure spectroscopique des interactions entre ces atomes en fonction des distances internucléaires, est la voie royale vers un contrôle quantique total du système. C'est dans cette optique que ce déroule l'expérience à l'Institut d'Optique supervisée par Antoine Browaeys et dont je suis un partenaire "expert Rydberg".

L'expérience s'intéresse à la manipulation d'atomes individuels piégés dans des pinces optiques en vu de produire des états quantiques de deux atomes ou plus. En particulier, nous voulons créer et étudier des états intriqués de deux atomes, chacun piégé dans une pince optique. La technique proposée pour intriquer les deux atomes consistent à utiliser l'énergie d'interaction très forte que ceux-ci possèdent lorsqu'ils sont portés dans un état de Rydberg. Pour parvenir à l'intrication de deux atomes, il faut tout d'abord réaliser l'excitation cohérente d'un atome depuis son état fondamental vers un état de Rydberg. Cette étape vient juste d'être réalisé. L'étape suivante, qui semble imminente, est l'observation du blocage de l'excitation simultanée de deux atomes. L'expérience concurrente la plus directe semble être celle des groupes de Mark Saffman et Thad Walker qui tout comme l'expérience à l'institut d'optique devrait donner des résultats importants pour le contrôle quantique de l'interaction dipolaire et pourrait aussi permettre l'observation des molécules de Rydberg exotiques.

4.4.4 Refroidissement et piégeage laser des atomes Rydberg

Je voudrais conclure ce chapitre en mentionnant le projet que nous avons en commun avec Pierre Pillet, mais qui demande un investissement laser important et qui est donc encore à l'étude. Cela consiste à utiliser les deux électrons externes de l'atome d'ytterbium pour effectuer des études Rydberg sur l'un et du refroidissement laser sur l'autre.

Le piégeage d'un grand nombre d'atomes de Rydberg est une tache difficile mais ce champ d'étude est actuellement en rapide évolution comme en témoigne le piégeage récent réalisé par le groupe de F. Merkt pour l'atome d'hydrogène [Hogan and Merkt, 2008] ou les études pour la réalisation d'un piégeage dipolaire ou par un laser CO₂ [Gabbanini, 2006].

Le piégeage d'atomes de Rydberg circulaires ou d'ions ytterbium pourrait permettre de refroidir un gaz de Rydberg ou même un plasma. L'atome d'ytterbium possède de nombreux avantages, notamment il est spectroscopiquement assez semblable au baryum dont les états de Rydberg sont particulièrement bien connus au laboratoire [Pruvost et al., 1991]. De plus de nombreux isotopes de l'ytterbium existent et permettraient d'étudier des gaz de fermions ou de bosons. Je rappelle que la condensation de Bose-Einstein de l'ytterbium a déjà été réalisée [Takasu et al., 2003].

Bibliographie

- [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. *Physical Review Letters*, 93(23) :233001–+.
- [Akulin et al., 1999] Akulin, V. M., Tomasi, F. D., Mourachko, I., and Pillet, P. (1999). Level-band problem and many-body effects in cold Rydberg atoms. *Physica D Nonlinear Phenomena*, 131 :125–140.
- [Anderson et al., 2002] Anderson, W. R., Robinson, M. P., Martin, J. D., and Gallagher, T. F. (2002). Dephasing of resonant energy transfer in a cold Rydberg gas. *Phys. Rev. A*, 65(6) :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.
- [Ates et al., 2007a] Ates, C., Pohl, T., Pattard, T., and Rost, J. M. (2007a). Antiblockade in Rydberg Excitation of an Ultracold Lattice Gas. *Physical Review Letters*, 98(2) :023002–+.
- [Ates et al., 2007b] Ates, C., Pohl, T., Pattard, T., and Rost, J. M. (2007b). Many-body theory of excitation dynamics in an ultracold Rydberg gas. *Phys. Rev. A*, 76(1) :013413–+.
- [Baranov et al., 2002] Baranov, M., Dobrek, Ł. G. K., Góral, K., Santos, L., and Lewenstein, M. (2002). Ultracold Dipolar Gases - a Challenge for Experiments and Theory. *Physica Scripta Volume T*, 102 :74–81.
- [Beugnon et al., 2006] Beugnon, J., Jones, M. P. A., Dingjan, J., Darquié, B., Messin, G., Browaeys, A., and Grangier, P. (2006). Quantum interference between two single photons emitted by independently trapped atoms. *Nature*, 440 :779–782.
- [Boisseau et al., 2002] Boisseau, C., Simbotin, I., and Côté, R. (2002). Macrodimers : Ultralong Range Rydberg Molecules. *Physical Review Letters*, 88(13) :133004–+.
- [Brion et al., 2005] Brion, E., Akulin, V. M., Comparat, D., Dumer, I., Harel, G., Kébaili, N., Kurizki, G., Mazets, I., and Pillet, P. (2005). Coherence protection by the quantum Zeno effect and nonholonomic control in a Rydberg rubidium isotope. *Phys. Rev. A*, 71(5) :052311–+.
- [Brion et al., 2006] Brion, E., Comparat, D., and Harel, G. (2006). Implementation of a CNOT gate in two cold Rydberg atoms by the nonholonomic control technique. *European Physical Journal D*, 38 :381–387.
- [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. *Physical Review Letters*, 93(15) :153001–+.

- [Chibisov et al., 2002] Chibisov, M. I., Khuskivadze, A. A., and Fabrikant, I. I. (2002). LETTER TO THE EDITOR : Energies and dipole moments of long-range molecular Rydberg states. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 35 :L193–L198.
- [Chotia et al., 2008] Chotia, A., Viteau, M., Vogt, T., Comparat, D., and Pillet, P. (2008). Kinetic Monte Carlo modeling of dipole blockade in Rydberg excitation experiment. *New Journal of Physics*, 10 :5031–+.
- [Cubel et al., 2005] Cubel, T., Teo, B. K., Malinovsky, V. S., Guest, J. R., Reinhard, A., Knuffman, B., Berman, P. R., and Raithel, G. (2005). Coherent population transfer of ground-state atoms into Rydberg states. *Phys. Rev. A*, 72(2) :023405–+.
- [Day et al., 2008] Day, J. O., Brekke, E., and Walker, T. G. (2008). Dynamics of Low-Density Ultracold Rydberg Gases. *ArXiv e-prints*, 803.
- [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. *Physical Review Letters*, 90(14) :143002–+.
- [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. *Physical Review Letters*, 91(18) :183002–+.
- [Fioretti et al., 1999] Fioretti, A., Comparat, D., Drag, C., Gallagher, T., and Pillet, P. (1999). Long-range forces between cold atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 82 :1839.
- [Frasier et al., 1999] Frasier, J. S., Celli, V., and Blum, T. (1999). Resonant processes in a frozen gas. *Phys. Rev. A*, 59 :4358–4367.
- [Gabbanini, 2006] Gabbanini, C. (2006). Assessments of lifetimes and photoionization cross-sections at 10.6 μm of nd Rydberg states of Rb measured in a magneto-optical trap. *Spectrochimica Acta*, 61 :196–199.
- [Granger et al., 2001] Granger, B. E., Hamilton, E. L., and Greene, C. H. (2001). Quantum and semiclassical analysis of long-range Rydberg molecules. *Phys. Rev. A*, 64(4) :042508–+.
- [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. *Physical Review Letters*, 85 :2458–2461.
- [Greene et al., 2006] Greene, C. H., Hamilton, E. L., Crowell, H., Vadla, C., and Niemax, K. (2006). Experimental Verification of Minima in Excited Long-Range Rydberg States of Rb_2 . *Physical Review Letters*, 97(23) :233002–+.
- [Greiner et al., 2002] Greiner, M., Mandel, O., Esslinger, T., Hansch, T., and Bloch, I. (2002). Quantum phase transition from a superfluid to a Mott insulator in a gas of ultracold atoms. *NATURE*, 415(6867) :39–44.
- [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.
- [Haroche et al., 2008] Haroche, S., Brune, M., and Raimond, J.-M. (2008). Schrödinger cat states and decoherence studies in cavity QED. *The European Physical Journal Special Topics*, Volume 159, Issue 1, pp.19-26, 159 :19–26.

- [Heidemann et al., 2008] Heidemann, R., Raitzsch, U., Bendkowsky, V., Butscher, B., Löw, R., and Pfau, T. (2008). Rydberg Excitation of Bose-Einstein Condensates. *Physical Review Letters*, 100(3) :033601–+.
- [Heidemann et al., 2007] Heidemann, R., Raitzsch, U., Bendkowsky, V., Butscher, B., Löw, R., Santos, L., and Pfau, T. (2007). Evidence for Coherent Collective Rydberg Excitation in the Strong Blockade Regime. *Physical Review Letters*, 99(16) :163601–+.
- [Hernández and Robicheaux, 2008] Hernández, J. V. and Robicheaux, F. (2008). Simulation of a strong van der Waals blockade in a dense ultracold gas. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 41 :5301–+.
- [Hogan and Merkt, 2008] Hogan, S. D. and Merkt, F. (2008). Demonstration of Three-Dimensional Electrostatic Trapping of State-Selected Rydberg Atoms. *Physical Review Letters*, 100(4) :043001–+.
- [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. *Physical Review Letters*, 85 :2208–2211.
- [Johnson et al., 2008] Johnson, T. A., Urban, E., Henage, T., Isenhower, L., Yavuz, D. D., Walker, T. G., and Saffman, M. (2008). Rabi Oscillations between Ground and Rydberg States with Dipole-Dipole Atomic Interactions. *Physical Review Letters*, 100(11) :113003–+.
- [Kawaguchi et al., 2006] Kawaguchi, Y., Saito, H., and Ueda, M. (2006). Einstein de Haas Effect in Dipolar Bose-Einstein Condensates. *Physical Review Letters*, 96(8) :080405–+.
- [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.
- [Kritsun et al., 2004] Kritsun, O., Boiko, O., and Metcalf, H. (2004). Excitation of Metastable Helium Atoms to Rydberg States by STIRAP. *APS Meeting Abstracts*, pages D1026+.
- [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. *Physical Review Letters*, 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. *Physical Review Letters*, 95(25) :253002–+.
- [Liu and Rost, 2006] Liu, I. C. H. and Rost, J. M. (2006). Polyatomic molecules formed with a Rydberg atom in an ultracold environment. *European Physical Journal D*, 40 :65–71.
- [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. *Physical Review Letters*, 87(3) :037901–+.
- [Maioli et al., 2005] Maioli, P., Meunier, T., Gleyzes, S., Auffeves, A., Nogues, G., Brune, M., Raimond, J. M., and Haroche, S. (2005). Nondestructive Rydberg Atom Counting with Mesoscopic Fields in a Cavity. *Physical Review Letters*, 94(11) :113601–+.
- [Mayle et al., 2007] Mayle, M., Hezel, B., Lesanovsky, I., and Schmelcher, P. (2007). One-Dimensional Rydberg Gas in a Magnetoelectric Trap. *Physical Review Letters*, 99(11) :113004–+.

- [Menotti and Lewenstein, 2007] Menotti, C. and Lewenstein, M. (2007). Ultra-cold dipolar gases. *ArXiv e-prints*, 711.
- [Menotti et al., 2008] Menotti, C., Lewenstein, M., Lahaye, T., and Pfau, T. (2008). Dipolar interaction in ultra-cold atomic gases. In *Dynamics and Thermodynamics of Systems with Long Range Interactions : Theory and Experiments*, volume 970 of *American Institute of Physics Conference Series*, pages 332–361.
- [Mohapatra et al., 2007] Mohapatra, A. K., Jackson, T. R., and Adams, C. S. (2007). Coherent Optical Detection of Highly Excited Rydberg States Using Electromagnetically Induced Transparency. *Physical Review Letters*, 98(11) :113003–+.
- [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.
- [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. *Physical Review Letters*, 95(23) :233002–+.
- [Pruvost et al., 1991] Pruvost, L., Camus, P., Lecomte, J.-M., Mahon, C. R., and Pillet, P. (1991). High angular momentum 6pnl and 6dnl doubly excited Rydberg states of barium . *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 24 :4723–4741.
- [Reetz-Lamour et al., 2008] Reetz-Lamour, M., Deiglmayr, J., Amthor, T., and Weidemüller, M. (2008). Rabi oscillations between ground and Rydberg states and van der Waals blockade in a mesoscopic frozen Rydberg gas. *New Journal of Physics*, 10(4) :045026–+.
- [Reinhard et al., 2008] Reinhard, A., Cubel Liebisch, T., Younge, K. C., Berman, P. R., and Raithel, G. (2008). Rydberg-Rydberg Collisions : Resonant Enhancement of State Mixing and Penning Ionization. *Physical Review Letters*, 100(12) :123007–+.
- [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.
- [Santos et al., 2000] Santos, L., , Shlyapnikov, G. V., Zoller, P., and M.Lewenstein (2000). Bose-Einstein condensation in trapped dipolar gases. *Phys. Rev. Lett.*, 85 :1791.
- [Santos and Pfau, 2006] Santos, L. and Pfau, T. (2006). Spin-3 Chromium Bose-Einstein Condensates. *Physical Review Letters*, 96(19) :190404–+.
- [Santos et al., 2000] Santos, L., Shlyapnikov, G. V., Zoller, P., and Lewenstein, M. (2000). Bose-Einstein Condensation in Trapped Dipolar Gases. *Physical Review Letters*, 85 :1791–1794.
- [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.
- [Schwettmann et al., 2006] Schwettmann, A., Crawford, J., Overstreet, K. R., and Shaffer, J. P. (2006). Cold Cs Rydberg-gas interactions. *Phys. Rev. A*, 74(2) :020701–+.
- [Schwettmann et al., 2007] Schwettmann, A., Overstreet, K. R., Tallant, J., and Shaffer, J. P. (2007). Analysis of long-range Cs Rydberg potential wells. *Journal of Modern Optics*, 54 :2551.

- [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. *Physical Review Letters*, 93(16) :163001—+.
- [Stuhler et al., 2005] Stuhler, J., Griesmaier, A., Koch, T., Fattori, M., Pfau, T., Giovanazzi, S., Pedri, P., and Santos, L. (2005). Observation of Dipole-Dipole Interaction in a Degenerate Quantum Gas. *Physical Review Letters*, 95(15) :150406—+.
- [Takasu et al., 2003] Takasu, Y., Maki, K., Komori, K., Takano, T., Honda, K., Kumakura, M., Yabuzaki, T., and Takahashi, Y. (2003). Spin-Singlet Bose-Einstein Condensation of Two-Electron Atoms. *Physical Review Letters*, 91(4) :040404—+.
- [Tanner et al., 2008] Tanner, P. J., Han, J., Shuman, E. S., and Gallagher, T. F. (2008). Many-Body Ionization in a Frozen Rydberg Gas. *Physical Review Letters*, 100(4) :043002—+.
- [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. *Physical Review Letters*, 93(6) :063001—+.
- [Urban et al., 2008] Urban, E., Johnson, T. A., Henage, T., Isenhower, L., Yavuz, D. D., Walker, T. G., and Saffman, M. (2008). Observation of Rydberg blockade between two atoms. *ArXiv e-prints*, 805.
- [van Ditzhuijzen et al., 2007] van Ditzhuijzen, C. S. E., Koenderink, A. F., Hernández, J. V., Robicheaux, F., Noordam, L. D., and van Linden van den Heuvell, H. B. (2007). Spatially resolved observation of dipole-dipole interaction between Rydberg atoms. *ArXiv e-prints*, 706.
- [Viteau et al., 2008] Viteau, M., Chotia, A., Comparat, D., Tate, D. A., Gallagher, T. F., and Pillet, P. (2008). Ionization in a frozen Rydberg gas with attractive or repulsive potentials. *ArXiv e-prints*, 806.
- [Vogt et al., 2007] Vogt, T., Viteau, M., Chotia, A., Zhao, J., Comparat, D., and Pillet, P. (2007). Electric-Field Induced Dipole Blockade with Rydberg Atoms. *Physical Review Letters*, 99(7) :073002—+.
- [Vogt et al., 2006] Vogt, T., Viteau, M., Zhao, J., Chotia, A., Comparat, D., and Pillet, P. (2006). Dipole Blockade at Förster Resonances in High Resolution Laser Excitation of Rydberg States of Cesium Atoms. *Physical Review Letters*, 97(8) :083003—+.
- [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—+.
- [Walker and Saffman, 2008] Walker, T. G. and Saffman, M. (2008). Consequences of Zeeman degeneracy for the van der Waals blockade between Rydberg atoms. *Phys. Rev. A*, 77(3) :032723—+.
- [Wang et al., 2007] Wang, T., Yelin, S. F., Côté, R., Eyler, E. E., Farooqi, S. M., Gould, P. L., Koštrun, M., Tong, D., and Vranceanu, D. (2007). Superradiance in ultracold Rydberg gases. *Phys. Rev. A*, 75(3) :033802—+.
- [Weatherill et al., 2008] Weatherill, K. J., Pritchard, J. D., Abel, R. P., Bason, M. G., Mohapatra, A. K., and Adams, C. S. (2008). Electromagnetically induced transparency of an interacting cold Rydberg ensemble. *ArXiv e-prints*, 805.
- [Westermann et al., 2006] Westermann, S., Amthor, T., de Oliveira, A. L., Deiglmayr, J., Reetz-Lamour, M., and Weidemüller, M. (2006). Dynamics of resonant energy transfer in a cold Rydberg gas. *European Physical Journal D*, 40 :37–43.

Chapitre 5

Plasmas ultra-froids

5.1 Introduction et contexte international

L'état plasma, qui représente près de 99% de la matière dans l'univers visible, se rencontre principalement dans les étoiles et le milieu interstellaire mais un plasma peut toutefois se former à basse température (cinétique) si la source d'ionisation lui est extérieure, comme dans le cas de l'ionosphère qui subit en permanence un intense bombardement ionisant de particules venant du soleil. Pour atteindre le régime des basses températures une source d'ionisation extérieure laser doit donc être utilisée comme nous allons le montrer ici.

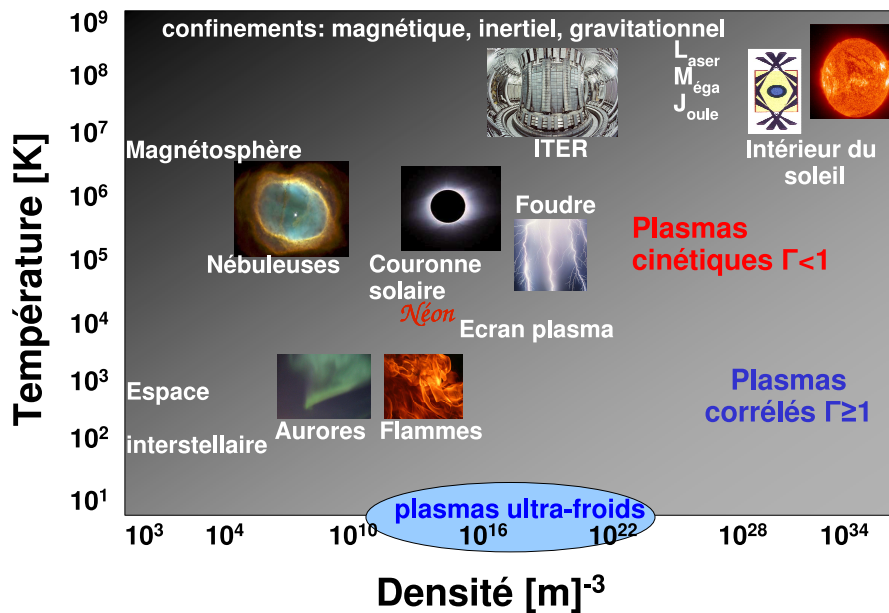


FIG. 5.1 – Classification de plasmas naturels ou de laboratoire repérés par leur température en Kelvins et par leur densité exprimée en particules chargées par mètre cube. Dans la zone foncée le plasma est dit cinétique ($\Gamma_e < 1$), tandis que dans la zone claire le plasma est dit fortement corrélé ($\Gamma_e > 1$) où Γ_e est le rapport de l'énergie de Coulomb à l'énergie thermique.

Nous ne considérerons ici que des plasmas (quasiment totalement) neutres. De façon géné-

rale, un plasma est caractérisé par la force des interactions mises en jeu et qui dépendent de la température T_e et de la densité n_e des électrons (on notera T_i et n_i pour les ions). La température permet de connaître l'énergie cinétique $E_{\text{cin}} \sim k_B T_e$ d'un électron alors que la densité est reliée à l'interaction potentielle coulombienne $E_{\text{pot}} \sim e^2/a$ entre deux électrons ($e^2 = q_e^2/(4\pi\epsilon_0)$) où $a \simeq (4\pi n_e/3)^{1/3}$ est la distance moyenne entre plus proches voisins. T_e et n_e sont donc les deux paramètres à la base de la classification des plasmas présentée sur la figure 5.1.

5.1.1 Vers un plasma corrélé ?

La réalisation de plasmas (neutres) "ultra-froids", dans la partie basse température de cette classification permettrait d'aborder un nouveau type de physique. En particulier ils permettraient d'approcher en laboratoire un état "fortement corrélé" où l'énergie de Coulomb domine l'énergie thermique. Dans ce type de plasma le paramètre plasma $\Gamma_e = E_{\text{pot}}/E_{\text{cin}}$ (Γ_e pour les électrons et Γ_{ion} pour les ions), qui compare l'énergie de Coulomb et l'énergie thermique, devient plus grand que l'unité. Les effets physiques attendus sont particulièrement spectaculaires. La théorie [Ichimaru, 1982, Dubin and O'Neil, 1999] prédit des corrélations en position des électrons ou des ions pour $\Gamma > 1$ et une cristallisation, i.e. un ordre à très grande distance si $\Gamma > 174$. Le système tend alors à se mettre dans une configuration d'énergie minimale correspondant à des particules éloignés le plus possible de leurs voisins, les particules formant alors un réseau ("Coulomb crystal") ou un cristal de Wigner [Wigner, 1934].

À ma connaissance [Bonitz et al., 2005, Bonitz et al., 2008], les principaux plasmas corrélés sont :

- Naines blanches : $T \sim 10^7$ K, $n \sim 10^{40} \text{ m}^{-3}$ et $\Gamma_e \sim 300$.
- Naines Brunes (ou le centre des planètes comme Jupiter) : $T \sim 10^4$ K, $n \sim 10^{30} \text{ m}^{-3}$ et $\Gamma_e \sim 20$. Mais évidemment, tout comme les naines blanches, leur étude en laboratoire n'est pas aisée.
- Plasmas laser réalisés par impact sur une cible : $T \sim 10^4$ K, $n \sim 10^{30} \text{ m}^{-3}$ et $\Gamma_e \sim 20$. Mais ils ne restent corrélés que durant quelques picosecondes.
- Les ions piégés et refroidis par laser avec $\Gamma_i > 10000$.
- Des particules multi-chargées en suspension colloïdale. (Dusty plasma) : $T_i \sim 10$ K et $\Gamma_i \sim 200$.
- Le cristal de Wigner d'électrons qui a pu être observé dans des hétérojonctions GaAs/GaAlAs sous champ magnétique [Williams et al., 1991].

Des expériences basées sur des plasmas neutres semblent intéressantes car l'effet de l'interaction coulombienne est moins évident que dans le cas d'un plasma non neutre comme c'est le cas des ions piégés, les charges ioniques étant alors écrantées par la présence d'électrons.

L'une des premières tentatives pour atteindre l'état de plasma "ultra-froid" eut lieu à Orsay dans les années 1970 et consista à ioniser de l'hélium superfluide à la température d'environ 4 K [Delpach and Gauthier, 1972] en lui appliquant une décharge électrique. Malheureusement, ce plasma, dit cryogénique, n'est pas à l'équilibre thermodynamique et des recombinaisons à trois corps, où deux électrons et un ion collisionnent formant un atome de Rydberg, chauffent l'électron restant. Il peut sembler naturel de partir de températures plus froides et de systèmes plus dilués, comme ceux obtenus par les MOT, pour espérer obtenir des plasmas encore plus froids. De façon surprenante, ni les plasmiciens ni les physiciens des atomes froids ne semblèrent s'intéresser au sujet. En effet, avant 1998 l'ionisation des atomes froids était même considérée comme nocive car elle perturbait les mesures des sections efficaces d'ionisa-

tion [Maragò et al., 1998, Fuso et al., 2000].

5.1.2 Photoionisation d'atomes froids

Le premier plasma ultra-froid ne fut donc réalisé qu'en 1999 aux Etats-Unis (laboratoire NIST à Gaithersburg) en photoionisant des atomes de xénon métastables refroidis par laser [Killian et al., 1999]. Certains électrons quittent la zone d'ionisation jusqu'à ce que l'énergie potentielle de charge d'espace, créée par les ions restants, devienne égale à l'énergie cinétique moyenne des électrons. Les ions réalisent alors un piège pour les électrons. Ce premier article ouvrit le domaine des plasmas ultra-froids. Depuis, une dizaine de groupes de par le monde étudient ces plasmas en partant d'atomes différents (Rb, Cs, Sr, Ca, ...) [Killian et al., 2003]. Je renvoie pour cela à la revue récente [Killian et al., 2007]. Xénon, par le groupe de Steve Rolston (Maryland) [Killian et al., 1999, Fletcher et al., 2006]. Rubidium par les groupes de Thomas Gallagher (Virginie) [Robinson et al., 2000], Georg Raithel (Michigan) [Dutta et al., 2001], Michael Noël (Bryn Mawr, Pennsylvanie) [Gallagher et al., 2003], Duncan Tate (Colby, Maine) [Li et al., 2004], Phil Gould (Connecticut) [Farooqi et al., 2003, Gould, 2003] ou Vredembregt (Amsterdam) [Claessens et al., 2007]). Cesium par notre groupe [Robinson et al., 2000]. Strontium par le groupe de Thomas Killian (Rice, Houston) [Killian et al., 2003]). Calcium par le groupe de Scott Bergeson (Brigham Young, Utah) [Cummings et al., 2005a, Cummings et al., 2005b]).

Suite au premier article du NIST, les plasmas ultra-froids semblaient alors des candidats idéaux pour réaliser des plasmas corrélés. En choisissant la longueur d'onde du laser il semblait à priori possible de choisir la température électronique du plasma. À cause de la très faible masse m_e de l'électron comparée à celle m_i de l'ion, la différence entre l'énergie du photon et l'énergie d'ionisation de l'atome est presque entièrement transférée aux électrons sous forme d'énergie cinétique. Ainsi en ionisant "au seuil" avec presque aucune énergie cinétique les paramètres semblaient être ceux d'un piège magnéto-optique standard, juste après l'ionisation laser, $n_e \sim n_i \sim 10^{16} \text{ m}^{-3}$ et $T_e \sim T_i \sim 100 \mu\text{K}$ ce qui correspond à des plasmas très fortement corrélés. Ces idées étaient néanmoins assez naïves, car basées sur la méconnaissance des travaux historiques d'Orsay [Delpech and Gauthier, 1972], que j'ai moi-même découvert récemment (lors du Colloque Delcroix en 2006). Néanmoins, les études de ces plasmas ultra-froids, même si elles ne permettent pas encore d'atteindre le régime fortement corrélé, ont permis de développer de nouvelles techniques de diagnostics de ces plasmas et de découvrir des phénomènes inconnus ou négligeables dans d'autres conditions de température et de densité.

5.1.3 Diagnostiquer les plasmas ultra-froids

Outre la mesure du nombre d'électrons et d'ions par des techniques de temps de vol, la première technique de diagnostic des plasmas ultra-froids fut mise en œuvre en 1999 par l'équipe du NIST. Elle permet de déterminer la densité électronique n_e en excitant les électrons du plasma grâce à un petit champ électrique radio-fréquence externe (voir aussi le travail de [Bergeson and Spencer, 2003]). Lorsque cette radio-fréquence atteint la valeur de la pulsation plasma $\omega_e = \sqrt{n_e e^2 / (m_e \epsilon_0)}$, le mouvement des électrons est fortement amplifié et des électrons sont chauffés et éjectés du plasma. En mesurant, en fonction de la radio-fréquence, le nombre de ces électrons sur un détecteur placé autour du plasma on peut connaître ω_e et donc n_e . Ce type d'expérience est l'exemple même de l'utilisation possible d'un plasma ultra-froid comme système simple pour l'étude des effets collectifs, des instabilités ou des fluctuations d'un plasma

induits par un champ extérieur comme le prouve aussi l'amélioration de cette technique réalisée en 2006 par le groupe de Steve Rolston [Fletcher et al., 2006].

En 2004 une technique de diagnostic performante apparut dans l'équipe de Thomas Killian [Simien et al., 2004] : la spectroscopie d'absorption. Un faisceau laser de longueur d'onde correspondant à la transition de l'ion et traversant le plasma donne, sur une caméra CCD, l'image de la densité n_i des ions. Cette technique convient aux ions (béryllium, strontium, ...) ayant encore un électron de valence, et donc une transition d'excitation de l'ion dans le domaine visible. Malheureusement, elle ne convient pas aux ions alcalins (rubidium ou césium par exemple) ou de gaz rare (xénon). L'élargissement en fréquence, lié à l'effet Doppler créé par le mouvement des ions, permet de déduire la température ionique T_i du plasma. En étudiant la taille du nuage en fonction du temps on en déduit la vitesse d'expansion radiale $\sim \sqrt{k_B T_e / m_i}$ des ions due à la pression des électrons. La spectroscopie d'absorption permet donc d'avoir accès aux paramètres n_i , T_i et de manière un peu indirecte à T_e et ceci à n'importe quel instant de l'évolution du plasma. Ces études démontrèrent de façon évidente que les ions, bien que créés originellement à très basse température ($T_i \sim 100 \mu\text{K}$), sont créés dans l'état de désordre spatial préexistant dans le nuage d'atomes refroidis par laser. Ainsi et de façon très similaire aux électrons initiaux, ces ions se mettent en mouvement pour rechercher un état plus ordonné en atteignant finalement une température $T_i \sim 1 \text{ K}$ en un temps de l'ordre de grandeur de la centaine de nanoseconde. Ceci rend là aussi impossible l'observation du régime corrélé [Pohl et al., 2004c, Pohl et al., 2004b, Simien et al., 2004]. Mais la possibilité d'utiliser un laser externe pour agir sur les ions en les refroidissant par exemple, ou même en les piégeant en réseau permettrait selon des simulations du groupe de Dresde d'atteindre enfin ce régime [Pohl et al., 2004a].

5.1.4 Réchauffement initial et modélisation

L'observation au NIST [Kulin et al., 2000] d'une expansion rapide du nuage lié à un chauffage rapide des électrons élevant leur température à $T_e \sim 10 \text{ K}$ montra que cela éloignait le système du régime corrélé, comme lors des expériences historiques d'Orsay. Ce résultat fut interprété comme provenant de plusieurs effets. Le moins important est un effet d'abaissement du continuum [Hahn, 2002, Mazevet et al., 2002] reflétant le fait que les interactions coulombiennes abaissent le seuil d'ionisation d'un atome dans le plasma et qu'un électron que l'on croyait juste sous le seuil d'ionisation se retrouve ionisé. Un effet plus important, proche du "paradoxe de Langmuir" dans les plasmas de décharges [Tkachev and Yakovlenko, 2001a] ou, comme je l'ai ensuite montré, du phénomène de "relaxation violente" dans les amas d'étoiles [Comparat et al., 2005, Murillo, 2007], provient du désordre spatial initial des électrons créés amenant instantanément un accroissement de leur énergie cinétique lorsqu'ils s'approchent des ions voisins [Kuzmin and O'Neil, 2002b]. Mais, comme pour les plasmas cryogéniques, l'effet dominant est la recombinaison à trois corps qui fut rapidement observée via la formation d'atomes de Rydberg [Killian et al., 2001]. Finalement la pression du gaz d'électrons amène enfin à l'expansion quasiment-autosimilaire (conservant la forme gaussienne) du plasma et à sa dilution au cours des quelques dizaines de microsecondes de vie de celui-ci [Kulin et al., 2000]. Le nuage s'étend ainsi sous l'effet de la pression des électrons.

Au cours de ces années de nombreuses modélisations furent entreprises. Le groupe de O'Neil [Kuzmin and O'Neil, 2002b, Kuzmin and O'Neil, 2002a] utilisa des codes à N -corps dérivés des codes astrophysiques. Le groupe de Dresde (Thomas Pohl, Thomas Pattard et Jan Michael

Rost) utilisait plusieurs méthodes qui vont d'une dynamique moléculaire [Pohl et al., 2004b] à des équations de taux [Pohl et al., 2003]. Des méthodes Monte-Carlo furent développées par Francis Robicheaux [Robicheaux and Hanson, 2002, Robicheaux and Hanson, 2003]. Elles permettent d'incorporer plus facilement les recombinaisons à trois corps et les aspects radiatifs.

En dehors du fait qu'elles permettent de modéliser les expériences, les théories furent prédictives. La question d'une onde de choc ionique lors de l'expansion du plasma fut par exemple débattue, mais on s'aperçut de façon théorique, avant la vérification expérimentale, que celle-ci était moins forte si l'on prenait en compte les corrélations électroniques [Robicheaux and Hanson, 2003, Pohl et al., 2004b, Killian et al., 2007]. Des codes de plus en plus puissants, et souvent inspirés des codes astrophysiques, sont développés comme en témoigne le "tree code" développé très récemment à Los Alamos [Jeon et al., 2008].

5.1.5 Ionisation des atomes de Rydberg

La physique entourant les plasmas ultra-froids fut enrichie en l'an 2000 grâce à l'observation, par l'équipe du laboratoire Aimé Cotton (j'étais alors en post-doc aux Etats-Unis) et par celle de Thomas Gallagher du phénomène inverse de la recombinaison à trois corps : l'ionisation "spontanée" d'un gaz de Rydberg dense et froid [Robinson et al., 2000]. Ce genre d'ionisation fut étudiée, avec des atomes en jet, dès 1982 par le groupe de Serge Haroche [Vitrant et al., 1982]. Cette "autoionisation" peut sembler paradoxale car l'énergie cinétique pour ioniser ces atomes ne semble pas facilement disponible dans ces échantillons froids. Le démarrage du processus est en effet complexe et plusieurs phénomènes entrent en jeu. Un atome de Rydberg peut être ionisé en absorbant le rayonnement infrarouge du corps noir provenant des parois de l'enceinte qui sont à température ambiante. Une autre voie d'ionisation possible est d'ioniser l'atome par collision avec un proche voisin grâce à la vitesse importante créée par les forces attractives entre atomes.

Cette ionisation (Penning) fut observée par [Walz-Flannigan et al., 2004] et par nous-mêmes [Li et al., 2004]. Le rôle des forces dipolaires entre atomes froids dans la formation du plasma a été mis en évidence par [Li et al., 2005] mais des études plus récentes ont montré un résultat surprenant : même si les forces sont répulsives, comme dans le cas d'atomes $Rb(ns)$ [Amthor et al., 2007b], une ionisation est toujours présente. L'effet du corps noir couplé à un effet radiatif collectif ou couplé à une dynamique spatiale fut mentionné car cela permettrait de transformer une situation répulsive en une situation attractive [Reinhard et al., 2008, Amthor et al., 2007a]. La compréhension de ces phénomènes est actuellement un de nos sujets d'étude avec un article en préparation avec Thomas Gallagher que je vais décrire dans la section suivante [Viteau et al., 2008]. Les collisions entre les électrons piégés et les atomes de Rydberg peuvent aussi modifier l'état de l'atome en changeant son nombre quantique principal et/ou en changeant le moment angulaire de rotation de son électron comme observé en 2001 par le groupe de Georg Raithel [Dutta et al., 2001]. Les atomes de Rydberg dont l'énergie de liaison est inférieure à $\sim 4k_B T_e$, i.e. à quelques fois l'énergie cinétique moyenne d'un électron libre du plasma, sont ionisés [Mansbach and Keck, 1969, Robicheaux and Hanson, 2003]. Les atomes de Rydberg plus liés, quant à eux, voient leur nombre quantique principal n diminuer rapidement ; ils vont rapidement se désexciter par émission spontanée dans leur état fondamental et ils deviennent alors spectateurs de l'évolution ultérieure du système. Ces prédictions [Tkachev and Yakovlenko, 2001b, Robicheaux and Hanson, 2003] furent confirmées qualitativement par des expériences [Killian et al., 2001, Li et al., 2004, Walz-Flannigan et al., 2004].

Ces études nous ont suggéré, en 2004, l'idée d'ajouter des atomes de Rydberg, ayant une énergie de liaison inférieure à $4k_B T_e$, à un plasma ultra-froid afin de refroidir celui-ci lors du processus dominant d'ionisation [Vanhaecke et al., 2005]. La mesure de T_e fut donc un enjeu important afin de savoir si le refroidissement est efficace ou non [Gupta et al., 2007]. Il fut montré, conjointement par le groupe de S. Rolston [Roberts et al., 2004] (voir aussi leur travail récent [Fletcher et al., 2007, Dumin, 2008]) et par notre groupe, que d'une façon un peu similaire au processus d'évaporation dans les condensats de Bose-Einstein, le nombre d'électrons éjectés par un pulse électrique calibré donne des informations sur leur température. De plus la théorie que je développai [Comparat et al., 2005], en analogie avec l'évolution des amas globulaires stellaires [Lyman Spitzer, 1987], permet de montrer analytiquement que la distribution d'équilibre électronique est une maxwellienne abaissée appelée distribution de Kramers (1940)-Michie (1963)-King (1965), ce qui nous permet aussi d'estimer la température électronique de notre échantillon. Nous avons ainsi collaboré avec le groupe théorique de Dresde [Pohl et al., 2006] et cette collaboration confirma définitivement que l'ajout d'atomes de Rydberg permet un refroidissement des électrons du plasma. Malheureusement cet effet est temporaire car le processus de recombinaison à trois corps vient toujours réchauffer l'échantillon.

5.2 Ionisation des atomes Rydberg

Comme indiqué précédemment l'ionisation spontanée d'un gaz de Rydberg vers un plasma ultra-froid [Robinson et al., 2000] est complexe et fut étudié en détail en 2004 par notre groupe d'une part, en collaboration avec les groupes de Duncan Tate et de Thomas Gallaher, et par le groupe de Raithel d'autre part [Walz-Flannigan et al., 2004]. Je vais donc commencer la description détaillée de mes travaux de recherche par ces études.

Notre étude porta essentiellement sur les dépendances en fonction du nombre quantique principal n de la rapidité de l'ionisation du gaz de Rydberg et sur l'effet d'un champ électrique extérieur sur la formation du plasma [Li et al., 2004]. Le moyen utilisé est d'étudier la densité initiale d'atomes de Rydberg pour qu'un plasma se forme après un temps donné. Il se dégage clairement la présence d'un seuil à partir duquel le nombre d'ions évolue beaucoup plus rapidement sous l'effet d'un piégeage des électrons qui ionisent alors l'ensemble des atomes par collisions. Le nombre d'atomes au seuil varie expérimentalement en n^{-3} . La présence d'atomes excités à 300K permet d'expliquer une partie des données mais la dépendance principale provient d'autres phénomènes comme cela fut confirmé en utilisant la sélectivité en vitesse lié à l'effet Doppler afin de n'effectuer qu'une excitation spécifique des atomes du MOT.

Afin d'expliquer nos données nous avons dû faire intervenir les collisions froides Rydberg-Rydberg [Li et al., 2005]. En utilisant le fait que le taux d'ionisation est proportionnel à la section efficace d'ionisation, qui varie comme la "taille" des atomes au carré i.e. en n^4 , il est possible de retrouver un seuil variant en n^{-3} comme observé expérimentalement. Plus précisément pour obtenir ce résultat il faut aussi invoquer les simulations de Francis Robicheaux (voir [Robicheaux, 2005]) indiquant que l'énergie cinétique de l'électron E_e après collision ionisante est de l'ordre de la moitié de l'énergie de liaison, i.e. varie en n^{-2} . Sans détailler toutes les étapes (voir [Li et al., 2004]), notons qu'il faut aussi utiliser le fait que le nombre N_{ion} d'ions au seuil est déterminé par la condition $N_{\text{ion}} e^2 / l \sim E_e$ pour avoir une charge d'espace suffisante pour piéger les électrons dans l'échantillon de dimension l .

Les collisions entre atomes de Rydberg permettent donc d'expliquer l'évolution en fonction de n . Il reste alors à élucider le phénomène physique à l'origine des collisions entre atomes de

Rydberg. Nous avons déjà abordé ce point lors de notre discussion concernant les forces entre atomes de Rydberg. Nous avons donc repris cette étude en 2006 suite à nos mesures de l'effet des ions sur le phénomène de blocage dipolaire. Comme indiqué précédemment les études du groupe de Matthias Weidemüller, au voisinage de $n = 48$ dans le cas du rubidium, montrèrent une formation du plasma beaucoup plus lente lorsque les atomes de Rydberg sont excités dans un état ns plutôt que dans un état nd [Amthor et al., 2007b]. L'interprétation naturelle la plus simple est due au fait que deux atomes dans des états ns se repoussent alors que deux atomes dans des états nd s'attirent. Mais le taux d'ionisation non nul, et supérieur au taux d'ionisation dû au seul corps noir pour l'état ns est plus problématique. Des effets dynamiques à plusieurs corps furent suggérés [Amthor et al., 2007a]. Afin de clarifier cette discussion nous avons été amenés à étudier un système plus simple. Au lieu de changer de moment angulaire nous avons choisi de changer de nombre quantique principal n car tous les phénomènes atomiques varient alors faiblement (lorsque n passe de 39 à 45). Seul des effets accidentels tels que des effets moléculaires ou collectifs seront modifiés lorsque n varie. L'aspect le plus évident est le changement de signe du décalage d'énergie entre les niveaux des états $|ns, (n+1)s\rangle = |ss'\rangle$ et $|np_{3/2}, np_{3/2}\rangle = |pp\rangle$ qui de négatif pour $n < 42$, devient positif et faible pour $n > 42$ (en champ électrique nul). Ainsi l'interaction entre deux atomes np est donc fortement attractive pour $n > 42$ mais répulsive pour $n < 42$ comme indiqué sur la figure 5.2.

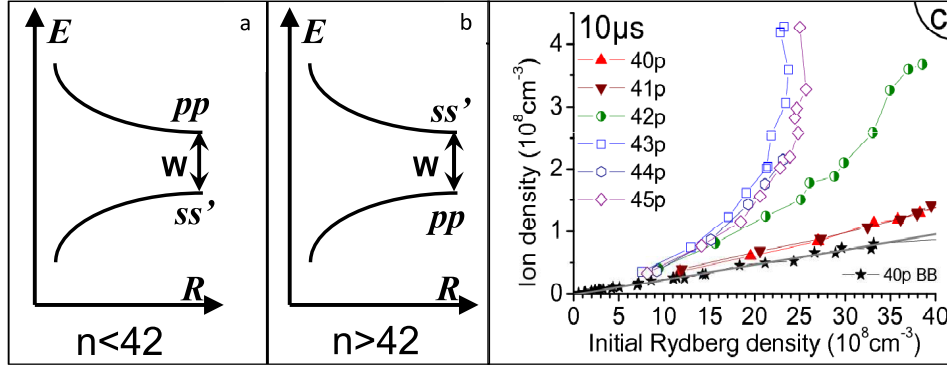


FIG. 5.2 – a) Schéma des courbes moléculaires pour $n < 42$, la courbe de potentiel d'atomes pp est répulsive. b) Schéma des courbes moléculaires pour $n > 42$ la courbe de potentiel d'atomes pp est attractive. c) Densité d'ions en fonction de la densité d'atomes de Rydberg initialement excités, pour différents n , pour un délai égal à $10 \mu\text{s}$ entre excitation des atomes np et détection.

Expérimentalement, nos résultats visibles sur la figure 5.2 c) montrent effectivement des comportements très différents d'ionisation pour $n < 42$ et pour $n > 42$. 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 expérimentales étant proches de celles utilisées pour la démonstration du blocage dipolaire. Pour $n > 42$ (cas attractif), le nombre d'ions varie quadratiquement en fonction du nombre d'atomes de Rydberg initialement excités. La variation quadratique dénote bien la présence de collisions binaires froides entre atomes de Rydberg. Lorsque le seuil permettant de piéger les électrons est atteint, la variation du nombre d'ions devient très brusque car une ionisation par avalanche se produit alors dans le plasma ultra-froid. Pour $n < 42$ (cas répulsif), la variation linéaire du nombre d'ions, en fonction du nombre de Rydberg initiaux, est

principalement due à des processus tels que l'ionisation par le rayonnement du corps noir ou les collisions avec le gaz résiduel donnant des taux d'ionisation proportionnels aux nombres d'atomes de Rydberg. Il semble néanmoins, pour notre cas comme pour le cas du rubidium $\text{Rb}(ns)$, que le taux d'ionisation soit le double de celui attendu par l'ionisation du corps noir (2000 s^{-1} contre 1000 s^{-1}). Nous avons observé par ailleurs une désexcitation très rapide de l'état $42p$ vers l'état $41s$. Cet effet intéressant, qui semble être un effet radiatif collectif lors de l'absorption du rayonnement du corps noir ressemble très fortement à une désexcitation super-radiante mais il ne semble cependant pas suffisant pour pouvoir expliquer le taux de 2000 s^{-1} . L'explication pourrait provenir d'un phénomène nouveau : l'ionisation des atomes de Rydberg np lors de leur collision avec des ions qui les attirent. La description de l'ensemble de ces effets vient d'être soumis à publication [Viteau et al., 2008].

Cette manifestation claire (voir figure 5.2 c) des forces dipolaires peut laisser espérer un bon contrôle expérimental des collisions entre atomes de Rydberg. Pour les expériences de blocage dipolaire on peut penser à la possibilité de se placer dans des conditions où les taux d'ionisation sont plus faibles. Pour les expériences de plasma froid on peut penser étudier l'effet sur la température du plasma des différentes configurations collisionnelles.

5.3 Refroidissement du plasma par collisions avec les atomes de Rydberg : PRA 71 013416 (2005)

Un des aspects les plus intéressants de la physique des plasmas concerne l'évolution de leur température au cours du temps. Comme indiqué lors de la présentation du contexte scientifique, un des buts est d'avoir un plasma le plus froid possible afin d'atteindre le régime corrélé. Mon idée pour abaisser la température électronique fut d'utiliser les électrons des atomes de Rydberg, qui ont une énergie inférieure à celle des électrons libres du plasma, pour refroidir celui-ci lors de l'ionisation des atomes de Rydberg. Afin de savoir si les atomes de Rydberg agissent comme un "glaçon" dans le plasma, il a fallu utiliser deux lasers pulsés différents, l'un pour créer le plasma et l'autre pour créer les atomes de Rydberg [Vanhaecke et al., 2005]. A l'époque nous ne disposions que d'un unique laser Nd :YAG de pompe et une ligne à retard optique fut la seule possibilité pour ajouter des atomes de Rydberg à un plasma formé $\sim 20\text{ ns}$ auparavant. Il ne nous fut donc pas possible d'effectuer l'étude d'un ajout à différents moments de l'évolution du plasma. Cette étude temporelle fut donc réalisée l'année suivante de façon théorique en collaboration avec le groupe de Dresde [Pohl et al., 2006]. Les résultats ne dépendent pas fortement de cet aspect temporel. Le résultat, expérimental et théorique, le plus important est celui décrit en figure 5.3. Il montre comme attendu une ionisation des atomes de Rydberg par le plasma d'autant plus efficace que les atomes de Rydberg sont peu liés (n grand). Nous observâmes aussi que plus le plasma est important, plus l'ionisation est efficace ce qui s'explique par le réservoir d'énergie plus important qui permet d'ioniser plus d'atomes.

Afin de déterminer si la température du plasma baissait suite à notre ajout d'atomes, il nous fallut trouver une méthode de détermination de la température du plasma qui n'existait pas encore à cette époque. Nous avons tenté de mesurer la température de l'échantillon en mesurant le champ électrique nécessaire pour extraire tous les électrons du plasma. Celui-ci renseigne à la fois sur le nombre N_e d'électrons et N_i d'ions qu'il fallait pour les piéger. En un mot, la température T_e est déterminée en écrivant de deux façons la profondeur de la charge d'espace du plasma. La première est calculée en supposant une forme sphérique gaussienne (largeur σ)

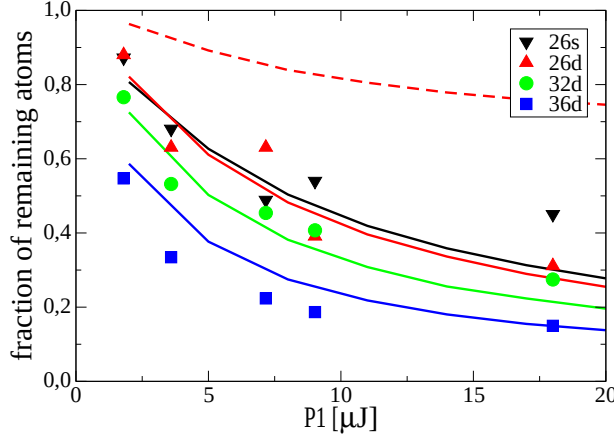


FIG. 5.3 – Efficacité, après $1\mu\text{s}$ d'évolution commune, de l'ionisation d'atomes de Rydberg plongés dans un plasma ultra-froid immédiatement après sa création (par le laser de puissance P_1) [Pohl et al., 2006]. La densité du plasma est modifiée par l'intensité laser indiquée. Les symboles sont les résultats expérimentaux et les lignes les résultats théoriques. La ligne en tireté représente l'évolution théorique prédite pour $n = 20$.

pour les ions et les électrons. On trouve alors une profondeur de $\sqrt{2}q_e(N_i - N_e)/(\sqrt{\pi}4\pi\epsilon_0\sigma)$. Le deuxième calcul provient de la modélisation (voir section 5.4) que j'ai effectuée de l'évolution du plasma en utilisant une équation de Fokker-Planck similaire à celle utilisée dans les amas globulaires stellaires, qui permet, par analogie avec les théories d'évaporation dans les BEC, de noter $\eta k_B T_e$ cette profondeur de puits. La valeur η est inconnue et dépend du temps d'évolution du plasma mais $4 < \eta < 12$ est un choix raisonnable [Robicheaux and Hanson, 2003]. Ce choix, ajouté au fait que les données expérimentales indiquent que $N_i - N_e \propto \eta k_B T_e$ ne varie presque pas lors d'un ajout d'atomes de Rydberg, nous a permis de conclure que la température n'était pas fortement affectée par l'ajout d'atomes de Rydberg. Il nous fut à l'époque difficile d'être plus précis. Mais ce résultat fut confirmé par les simulations du groupe de Dresde.

En conclusion, il ne semble donc malheureusement pas que cette méthode puisse, à elle seule, être suffisamment efficace pour refroidir un plasma de façon à atteindre le régime fortement corrélé. L'idée d'utiliser les atomes de Rydberg comme perturbateur ou sonde du plasma reste cependant intéressante, par exemple pour mesurer la température ou les champs électriques du plasma.

5.4 Modélisation, analogie avec les amas globulaires stellaires : Monthly Notices of the Royal Astronomical Society 361 1227 (2005)

La physique des plasmas est à la frontière de nombreuses disciplines (physique atomique et moléculaire, fluides, statistiques, chimie, astrophysique, électromagnétisme, ...) et s'est toujours enrichie de leurs approches variées et complémentaires. C'est dans cette optique que j'ai mené une étude utilisant l'analogie, surprenante au premier abord, avec le système formé par un amas d'étoiles. La principale force (coulombienne) intervenant dans le plasma entre deux particules varie en effet comme l'inverse du carré de la distance entre particules tout comme la force newtonienne de la gravitation. Bien qu'il m'ait fallu tâtonner plusieurs mois pour la découvrir, l'analogie entre l'évolution des amas globulaires stellaires et les plasmas est en fait assez ancienne. L'analogie est déjà visible sur le titre "Fokker-Planck Equation for an Inverse-Square Force" de l'article original [Rosenbluth et al., 1957] décrivant l'équation cinétique de Poisson-(Landau)-Fokker-Planck pour la dynamique de la densité dans l'espace des phases $f(\vec{r}, \vec{v}, t)$ des électrons ou des étoiles. Dans les années 60, Ilya Prigogine dénommait les amas globulaires des plasmas gravitationnels. La théorie des galaxies vues comme plasmas gravitationnels est ainsi maintenant bien développée [Lyman Spitzer, 1987, Binney and Tremaine, 1987, Bertin, 1999].

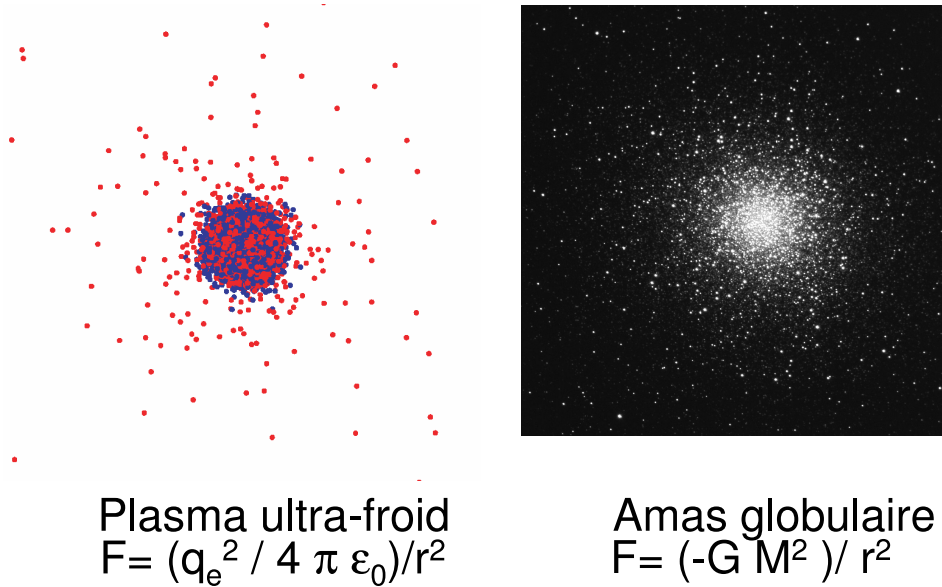


FIG. 5.4 – Analogie entre la dynamique d'un plasma ultra-froid (modélisé par Lee Collins de San Diego à gauche) et d'un amas stellaire (image de l'amas d'Hercule à droite). Les deux systèmes présentent un même nombre de particules, une symétrie sphérique et le même type de forces. Les systèmes binaires, étoiles ou atomes de Rydberg, sont soumis aux mêmes lois (taux de changement d'énergie de liaison par exemple) vis-à-vis des collisions avec leurs partenaires.

La figure 5.4 présente visuellement cette analogie dans le cas d'un plasma ultra-froid. Le potentiel total, vu par les électrons ou les étoiles, est globalement attractif dans les deux systèmes.

Cela est évident pour les étoiles ; pour les électrons la présence des ions assure un confinement globalement attractif à l'ensemble malgré la présence de deux types de charge avec des interactions attractives et répulsives. Les équations (Fokker-Planck) d'évolution des électrons du plasma ou des étoiles de l'amas sont formellement identiques, moyennant le changement de constante de gravitation ($G = 6,67 \times 10^{-11} \text{m}^3 \text{kg}^{-1} \text{s}^{-2} \leftrightarrow -e_2/m_e^2 \approx -2,78 \times 10^{32} \text{m}^3 \text{kg}^{-1} \text{s}^{-2}$).

L'analogie que j'avais découverte entre l'évolution des amas globulaires stellaires et les plasmas rendit possible d'utiliser l'important travail réalisé sur les amas globulaires pour étudier la dynamique collisionnelle des électrons de notre plasma. Notre système électronique réalise en un certain sens un amas globulaire idéal en laboratoire. Il vérifie en effet bien mieux que les amas réels, des hypothèses de sphéricité, de présence d'une seule classe de masse, de particules de durée de vie infinie (pas d'évolution stellaire) souvent utilisées pour déduire les équations d'évolutions des amas stellaires.

En utilisant la moyenne orbitale et l'hypothèse d'un bain thermique pour calculer l'intégrale de collision, l'équation de Fokker-Planck devient l'équation dite de Kramer (1940), qu'il obtint pour la première fois dans le cadre de l'étude du mouvement brownien [Mel'nikov, 1991] :

$$\frac{df}{dt} \approx \frac{\Gamma_e n_e(r)}{2v} \frac{\partial}{\partial E} \left[\frac{f}{k_B T_e} + \frac{\partial f}{\partial E} \right].$$

où k_B est la constante de Boltzman et E est l'énergie d'un électron. À l'équilibre, la distribution vérifie $\frac{df}{dt} = 0$, c'est donc une maxwellienne abaissée appelée distribution de Kramers (1940)-Michie (1963)-King (1965) :

$$f \propto (e^{-E/k_B T_e} - e^{-E_\infty/k_B T_e})$$

où E_∞ est l'énergie potentielle à l'infini. La continuité de cette distribution au travers de la frontière, contrairement à la maxwellienne tronquée que l'on obtient dans les distributions atomiques dans les théories d'évaporation d'atomes neutres piégés, provient de la faiblesse des interactions coulombiennes qui agissent en moyenne à très longue portée (en $1/R$) comparée aux interactions Van der Waals à courte portée (en $1/R^6$) dans le cas des atomes.

En intégrant divers moments de l'équation de Fokker-Planck, sur les vitesses, il est possible d'obtenir un système d'équations dite gazeuses ou hydrodynamiques [Comparat et al., 2005]. Mes premiers contacts avec des astrophysiciens, notamment lors du colloque PARYS que j'ai co-organisé, avec Pierre Pillet, à Gif/Yvette en mars 2005, furent intéressants et auraient pu déboucher sur l'utilisation d'un de leurs codes de calcul de ces équations pour nos plasmas ultra-froids. Mais l'investissement en temps était trop important et j'ai abandonné le projet.

Sans passer par des codes numériques l'analogie peut toutefois être poussée assez loin. Par exemple la recombinaison à trois corps forme des systèmes binaires : étoiles binaires dans un amas ou atomes de Rydberg dans un plasma, à un taux identique dans les deux systèmes : $n_e n_i G^5 (k_B T_e / m_e)^{-9/2}$ où n_e, m_e désignent la densité et la masse des étoiles ou des électrons et n_i désigne la densité d'ions ou, aussi la densité des étoiles dans le cas des amas globulaires. De même, dans les deux cas, un système binaire dont l'énergie de liaison est supérieure à l'énergie cinétique d'une particule libre du système (électron ou étoile) sera rendu de plus en plus lié lors des collisions. Cette loi s'appelle la loi de Heggie et fut à la base de nos réflexions sur les effets "glaçon" des atomes de Rydberg dans les plasmas.

Notons enfin que l'étude théorique de l'expansion des plasmas dans le vide est très importante dans d'autres domaines de la physique. Par exemple l'évolution des plasmas produits par l'ionisation d'une cible solide par un laser très intense est basée sur les mêmes équations que celles régissant les plasmas ultra-froids, et les résultats montrent évidemment aussi une

évolution autosimilaire. En m'inspirant de l'article de [Kaplan et al., 2003] sur les plasmas non neutres, il me fut possible de dériver une équation analytique donnant l'évolution d'un plasma à symétrie sphérique sous explosion coulombienne. Il suffit en fait d'intégrer l'équation de Newton multipliée par $\frac{dr}{dt}$ pour trouver la trajectoire $r(r_i, t)$ d'un ion partant au point initial r_i via l'équation implicite :

$$\frac{t}{r_i^{3/2}} \sqrt{2 \frac{q_i^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{N_i(r_i) - N_e(r_i)}{m_i}} = \sqrt{\frac{r(t)}{r_i} \left(\frac{r(t)}{r_i} - 1 \right)} + \ln \left(\sqrt{\frac{r(t)}{r_i}} + \sqrt{\frac{r(t)}{r_i} - 1} \right)$$

Cette équation montre au départ une évolution autosimilaire suivie d'une onde de choc de densité ionique en périphérie. Notons tout de même que ne prenant pas en compte les effets de corrélation entre ions cette équation surestime cette onde de choc.

Une conclusion de mes travaux est que les analogies (mouvement brownien, expansion des plasmas laser dans le vide, amas globulaires, ...) montrent que le système des plasmas ultra-froids paraît être un système modèle pour l'étude d'autres types de plasmas moins simple à étudier.

5.5 Évolution future des recherches

5.5.1 Plasma moléculaire

Nous avons la volonté constante de relier les deux aspects de nos expériences : molécules froides par photoassociation et atomes de Rydberg. Disposant depuis peu d'un échantillon de molécules froides dans un seul niveau vibrationnel, il devient envisageable de les ioniser juste au seuil d'ionisation pour former ainsi un plasma moléculaire ultra-froid. Au cours de la rédaction de mon manuscrit, cette idée fut réalisée, par le groupe de E. Grant (Vancouver), qui vient très récemment de former le premier plasma ultra-froid moléculaire. Le plasma est formé en excitant un jet supersonique de NO dans des états de Rydberg qui s'ionisent spontanément sans se dissocier [Morrison et al., 2008].

De nombreuses questions restent cependant ouvertes. Je pense, par exemple qu'il est possible que le processus de recombinaison à trois corps soit très différent dans ce plasma que dans un plasma atomique. En effet les molécules de Rydberg ainsi formées seront sans doute instables et prédisocieront rapidement empêchant une cascade radiative et donc un chauffage de l'échantillon. Il est ainsi possible qu'un plasma moléculaire soit plus stable qu'un plasma atomique et que l'observation du régime corrélé y soit plus aisé.

5.5.2 Plasma piégé ou refroidi par laser

L'observation d'un plasma corrélé est depuis toujours la quête des chercheurs étudiant les plasmas ultra-froids. On pourrait même envisager des états de dégénérescence quantique en approchant les températures de Fermi. Afin d'atteindre ces buts, les recherches actuelles s'orientent vers le contrôle de la recombinaison à trois corps et de l'effet de chauffage induit par le désordre initial qui ont empêché jusqu'à présent l'observation du régime corrélé dans les plasmas ultra-froids.

Des prédictions théoriques [Pohl et al., 2004c] du groupe de Dresde montrent par exemple qu'en ionisant un gaz d'atomes parfaitement ordonnés, comme issu d'une transition de Mott

[Greiner et al., 2002], il est possible d'atteindre un régime ionique corrélé. Le même groupe a aussi prédit [Pohl et al., 2004a] qu'un refroidissement laser des ions du plasma permet d'effectuer une mélasse optique ralentissant l'expansion du plasma et permettrait d'atteindre un régime ionique corrélé. Le piégeage des plasmas ultra-froids est en effet un enjeu important. Il est utile de noter qu'en ne piégeant qu'un type de particule (ion ou électron) l'autre est quasiment automatiquement piégé par la charge d'espace. Le groupe de G. Raithel vient par exemple très récemment de réaliser le piégeage d'un plasma mais dans un piège de type Penning où les effets de champ magnétique sont très importants [Choi et al., 2008].

Pour ma part, il me semble que la possibilité d'utiliser un laser externe pour agir sur les ions en les refroidissant par exemple, est extrêmement attractive et, comme mentionné précédemment, nous réfléchissons à l'opportunité de débiter une expérience avec des ions Ytterbium qui pourrait permettre de refroidir un gaz de Rydberg ou même un plasma.

Il reste néanmoins à éviter la recombinaison à trois corps. L'utilisation d'un plasma moléculaire pourrait être intéressant. Une autre idée pourrait être d'ioniser les atomes de Rydberg formés lors de cette recombinaison, soit en utilisant un rayonnement micro-onde [Fletcher et al., 2007], soit un laser à CO_2 [Gabbanini, 2006]. La difficulté est évidemment de bien contrôler le processus pour ne pas simultanément trop chauffer les électrons du plasma.

Bibliographie

- [Amthor et al., 2007a] Amthor, T., Reetz-Lamour, M., Giese, C., and Weidemüller, M. (2007a). Modeling many-particle mechanical effects of an interacting Rydberg gas. *Phys. Rev. A*, 76(5) :054702–+.
- [Amthor et al., 2007b] Amthor, T., Reetz-Lamour, M., Westermann, S., Denskat, J., and Weidemüller, M. (2007b). Mechanical Effect of van der Waals Interactions Observed in Real Time in an Ultracold Rydberg Gas. *Physical Review Letters*, 98(2) :023004–+.
- [Bergeson and Spencer, 2003] Bergeson, S. D. and Spencer, R. L. (2003). Neutral plasma oscillations at zero temperature. *Phys. Rev. E*, 67 :126414.
- [Bertin, 1999] Bertin, G. (1999). Gravitational plasmas and galactic dynamics . *Plasma Physics and Controlled Fusion*, 41 :A285–A292.
- [Binney and Tremaine, 1987] Binney, J. and Tremaine, S. (1987). *Galactic Dynamics*. Princeton Series in Astrophysics.
- [Bonitz et al., 2005] Bonitz, M., Filinov, V. S., Fortov, V. E., Levashov, P. R., and Fehske, H. (2005). Crystallization in Two-Component Coulomb Systems. *Physical Review Letters*, 95(23) :235006–+.
- [Bonitz et al., 2008] Bonitz, M., Ludwig, P., Baumgartner, H., Henning, C., Filinov, A., Block, D., Arp, O., Piel, A., Käding, S., Ivanov, Y., Melzer, A., Fehske, H., and Filinov, V. (2008). Classical and quantum Coulomb crystals. *Physics of Plasmas*, 15(5) :055704–+.
- [Choi et al., 2008] Choi, J.-H., Knuffman, B., Zhang, X. H., Povilus, A. P., and Raithel, G. (2008). Trapping and Evolution Dynamics of Ultracold Two-Component Plasmas. *Physical Review Letters*, 100(17) :175002–+.
- [Claessens et al., 2007] Claessens, B. J., Reijnders, M. P., Taban, G., Luiten, O. J., and Vredenburg, E. J. D. (2007). Cold electron and ion beams generated from trapped atoms. *Physics of Plasmas*, 14 :3101–+.
- [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. *MNRAS*, 361 :1227–1242.
- [Cummings et al., 2005a] Cummings, E. A., Daily, J. E., Durfee, D. S., and Bergeson, S. D. (2005a). Fluorescence Measurements Of Expanding Strongly Coupled Neutral Plasmas. *Physical Review Letters*, 95(23) :235001–+.
- [Cummings et al., 2005b] Cummings, E. A., Daily, J. E., Durfee, D. S., and Bergeson, S. D. (2005b). Ultracold neutral plasma expansion in two dimensions. *Physics of Plasmas*, 12 :3501–+.
- [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.

- [Dubin and O'Neil, 1999] Dubin, D. H. E. and O'Neil, T. M. (1999). Trapped nonneutral plasmas, liquids, and crystals (the thermal equilibrium states). *Rev. Mod. Phys.*, 71(1) :87.
- [Dumin, 2008] Dumin, Y. V. (2008). Comment on 'Using Three-Body Recombination to Extract Electron Temperatures of Ultracold Plasmas'. *ArXiv e-prints*, 803.
- [Dutta et al., 2001] Dutta, S. K., Feldbaum, D., Walz-Flannigan, A., Guest, J. R., and Raitel, G. (2001). High-angular-momentum states in cold rydberg gases. *Phys. Rev. Lett.*, 86(18) :3993.
- [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. *Physical Review Letters*, 91(18) :183002–+.
- [Fletcher et al., 2006] Fletcher, R. S., Zhang, X. L., and Rolston, S. L. (2006). Observation of Collective Modes of Ultracold Plasmas. *Physical Review Letters*, 96(10) :105003–+.
- [Fletcher et al., 2007] Fletcher, R. S., Zhang, X. L., and Rolston, S. L. (2007). Using Three-Body Recombination to Extract Electron Temperatures of Ultracold Plasmas. *Physical Review Letters*, 99(14) :145001–+.
- [Fuso et al., 2000] Fuso, F., Ciampini, D., Arimondo, E., and Gabbanini, C. (2000). Ion processes in the photoionization of laser cooled alkali atoms. *Optics Communications*, 173 :223–232.
- [Gabbanini, 2006] Gabbanini, C. (2006). Assessments of lifetimes and photoionization cross-sections at 10.6 μm of nd Rydberg states of Rb measured in a magneto-optical trap. *Spectrochimica Acta*, 61 :196–199.
- [Gallagher et al., 2003] Gallagher, T. F., Pillet, P., Robinson, M. P., Laburthe-Tolra, B., and Noel, M. W. (2003). Back and forth between Rydberg atoms and ultracold plasmas. *Journal of the Optical Society of America B Optical Physics*, 20 :1091–1097.
- [Gould, 2003] Gould, P. (2003). Ultracold Rydberg Gases and Plasmas. *APS Meeting Abstracts*, pages 1002–+.
- [Greiner et al., 2002] Greiner, M., Mandel, O., Esslinger, T., Hansch, T., and Bloch, I. (2002). Quantum phase transition from a superfluid to a Mott insulator in a gas of ultracold atoms. *NATURE*, 415(6867) :39–44.
- [Gupta et al., 2007] Gupta, P., Laha, S., Simien, C. E., Gao, H., Castro, J., Killian, T. C., and Pohl, T. (2007). Electron-Temperature Evolution in Expanding Ultracold Neutral Plasmas. *Physical Review Letters*, 99(7) :075005–+.
- [Hahn, 2002] Hahn, Y. (2002). Threshold lowering effects on an expanding cold plasma. *Phys. Lett. A*, 293 :266.
- [Ichimaru, 1982] Ichimaru, S. (1982). Strongly coupled plasmas : high-density classical plasmas and degenerate electron liquids. *Rev. Mod. Phys.*, 54(4) :1017–1059.
- [Jeon et al., 2008] Jeon, B., Kress, J. D., Collins, L. A., and Grønbech-Jensen, N. (2008). Parallel TREE code for two-component ultracold plasma analysis. *Computer Physics Communications*, 178 :272–279.
- [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.

- [Killian et al., 2003] Killian, T. C., Ashoka, V. S., Gupta, P., Laha, S., Nagel, S. B., Simien, C. E., Kulin, S., Rolston, S. L., and Bergeson, S. D. (2003). Ultracold neutral plasmas : recent experiments and new prospect. *J. Phys. A : Math. Gen.*, 36 :6077.
- [Killian et al., 2003] Killian, T. C., Ashoka, V. S., Gupta, P., Laha, S., Nagel, S. B., Simien, C. E., Kulin, S., Rolston, S. L., and Bergeson, S. D. (2003). Ultracold neutral plasmas : recent experiments and new prospects. *Journal of Physics A Mathematical General*, 36 :6077–6085.
- [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.
- [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.
- [Killian et al., 2007] Killian, T. C., Pattard, T., Pohl, T., and Rost, J. M. (2007). Ultracold neutral plasmas. *Phys. Rep.*, 449 :77–130.
- [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.
- [Li et al., 2004] Li, W., M.W. Noel, a. R., Tanner, P., Gallagher, T., 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 :042713.
- [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. *Physical Review Letters*, 94(17) :173001–+.
- [Lyman Spitzer, 1987] Lyman Spitzer, J. (1987). *Dynamical evolution of globular clusters*. Princeton University Press, Princeton, New Jersey.
- [Mansbach and Keck, 1969] Mansbach, P. and Keck, J. (1969). Monte carlo trajectory calculations of atomic excitation and ionization by thermal electrons. *Phys. Rev.*, 181 :275.
- [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–+.
- [Mazevet et al., 2002] Mazevet, S., Collins, L. A., and Kress, J. D. (2002). Evolution of ultracold neutral plasmas. *Phys. Rev. Lett.*, 88(5) :055001.
- [Mel’nikov, 1991] Mel’nikov, V. I. (1991). The kramers problem : Fifty years of development. *Phys. Rep.*, 209(1-2) :1–71.

- [Morrison et al., 2008] Morrison, J. P., Rennick, C. J., Keller, J. S., and Grant, E. R. (2008). Evolution from a molecular Rydberg gas to an ultracold plasma in a seeded supersonic expansion of NO. *ArXiv e-prints*, 804.
- [Murillo, 2007] Murillo, M. S. (2007). Ultrafast dynamics of neutral, ultracold plasmas. *Physics of Plasmas*, 14 :5702–+.
- [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 et al., 2003] Pohl, T., Pattard, T., and Rost, J. M. (2003). Plasma formation from ultracold rydberg gases. *Phys. Rev. A*, 68 :010703.
- [Pohl et al., 2004a] Pohl, T., Pattard, T., and Rost, J. M. (2004a). Coulomb Crystallization in Expanding Laser-Cooled Neutral Plasmas. *Physical Review Letters*, 92(15) :155003–+.
- [Pohl et al., 2004b] Pohl, T., Pattard, T., and Rost, J. M. (2004b). Kinetic modeling and molecular dynamics simulation of ultracold neutral plasmas including ionic correlations. *Phys. Rev. A*, 70(3) :033416–+.
- [Pohl et al., 2004c] Pohl, T., Pattard, T., and Rost, J. M. (2004c). LETTER TO THE EDITOR : On the possibility of 'correlation cooling' of ultracold neutral plasmas. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 37 :L183–L191.
- [Reinhard et al., 2008] Reinhard, A., Cubel Liebisch, T., Younge, K. C., Berman, P. R., and Raithel, G. (2008). Rydberg-Rydberg Collisions : Resonant Enhancement of State Mixing and Penning Ionization. *Physical Review Letters*, 100(12) :123007–+.
- [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, 2003] Robicheaux, F. and Hanson, D. (2003). Simulated expansion of an ultracold, neutral plasma. *Phys. plasmas*, 10(6) :2217.
- [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.
- [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. *Physical Review Letters*, 85 :4466–4469.
- [Rosenbluth et al., 1957] Rosenbluth, M. N., MacDonald, W. M., and Judd, D. L. (1957). Fokker-planck equation for an inverse-square force. *Phys. Rev.*, 107(1).
- [Simien et al., 2004] Simien, C., Chen, Y., Gupta, P., Laha, S., Martinez, Y., Mickelson, P., Nagel, S., and Killian, T. (2004). Using absorption imaging to study ion dynamics in an ultracold neutral plasma. *Phys. Rev. Lett.*, 92(14) :143001.
- [Tkachev and Yakovlenko, 2001a] Tkachev, A. N. and Yakovlenko, S. I. (2001a). Anomalous slowdown of relaxation in an ultracold plasma. *Quantum Electron.*, 73(2) :66.
- [Tkachev and Yakovlenko, 2001b] Tkachev, A. N. and Yakovlenko, S. I. (2001b). Relaxation of rydberg states in an ultracold plasmas. *Quantum Electron.*, 31(12) :1084.
- [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–+.

- [Viteau et al., 2008] Viteau, M., Chotia, A., Comparat, D., Tate, D. A., Gallagher, T. F., and Pillet, P. (2008). Ionization in a frozen Rydberg gas with attractive or repulsive potentials. *ArXiv e-prints*, 806.
- [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.
- [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.
- [Wigner, 1934] Wigner, E. (1934). On the Interaction of Electrons in Metals. *Physical Review*, 46 :1002–1011.
- [Williams et al., 1991] Williams, F. I. B., Wright, P. A., Clark, R. G., Andrei, E. Y., Deville, G., Glattli, D. C., Probst, O., Etienne, B., Dorin, C., Foxon, C. T., and Harris, J. J. (1991). Conduction threshold and pinning frequency of magnetically induced Wigner solid. *Physical Review Letters*, 66 :3285–3288.

Chapitre 6

Application à la production d'un faisceau d'ions ou d'électrons

Nous avons, en 2007, développé en partenariat avec le Laboratoire de Physique des Solides (LPS), spécialiste de la spectrométrie de perte d'énergie d'électrons (EELS), et la société Orsay Physics (pour laquelle j'effectue une consultance scientifique), leader mondial dans la fabrication des colonnes de faisceaux d'ions focalisés (Focussed Ion Beam, FIB), un projet visant à utiliser des Gaz ULtra-Froids en vue de la production d'une Source TRès intense d'Electrons et d'ions Accélérés Monocinétiques. Ce projet (GULFSTREAM) a été favorablement évalué par le Réseau thématique de recherche avancée (RTRA : fondation de coopération scientifique "Digiteo-Triangle de la physique") et je suis actuellement en train d'étudier la meilleure solution technologique afin de faire démarrer le montage expérimental en juillet 2008 pour la venue d'Andréa Fioretti, payé par le RTRA, pour une année.

Le but de ce projet que je vais décrire rapidement ci-dessous, est d'étudier et d'utiliser des plasmas et des gaz de Rydberg ultra-froids afin de réaliser une source d'ions ou d'électrons monocinétiques très brillante. Les sources, MOTES (Magneto-Optical-Trap Electron Source) et MOTIS (Magneto-Optical-Trap Ion Source), provenant de l'extraction des charges de ces systèmes froids sont en effet potentiellement plus monocinétiques, plus brillantes et moins divergentes que les sources existantes.

6.1 Introduction et contexte international

Ce projet recouvre les applications FIB, de microscopie électronique et d'extraction de charge des plasmas ultra-froids. Bien que non spécialiste des deux premiers points, il est impossible de ne pas donner ici quelques enjeux du projet. On trouvera bien entendu de nombreuses références sur le site web du groupe "European Focused Ion Beam Users Group" ou dans le "Que sais-je ?" de Christian Colliex sur "La microscopie électronique".

Un enjeu majeur du projet est de développer, en collaboration avec la société Orsay Physics, un prototype de machine FIB mieux adaptée à la demande du marché des années à venir. Je vais donc commencer par décrire la partie du projet consacrée à la réalisation d'un faisceau d'ions.

6.1.1 FIB (Focussed Ion Beam)

Dans le domaine de la micro-électronique, le nombre de transistors par unité de surface de circuit intégré double tous les deux ans. Outre des machines de fabrication extrêmement sophistiquées et coûteuses, cette évolution suppose le développement d'instruments de contrôle et d'analyse de résolution extrême. Concevoir et industrialiser des faisceaux de particules focalisés à l'échelle de quelques nanomètres, permettant notamment l'élaboration ou la modification de nanostructures, est évidemment un enjeu de taille pour le futur. La technique FIB est pour cela un outil intéressant. Les colonnes FIB consistent en un faisceau d'ions dont le diamètre est ajustable de quelques microns à quelques nanomètres. Cette technologie est incontournable pour le nano-usinage, l'édition des circuits et l'analyse de défaillances. Son utilisation s'impose de plus en plus en nano-assemblage, et émerge progressivement en biologie et en biotechnologie. Elle constitue un outil important d'analyse de conception et de défaillance, et une aide importante au lancement et à la production de technologies intégrées. La technique FIB n'est pas toujours utilisée comme moyen de contrôle, mais comme outil d'élaboration de nano-objets et de nano-systèmes. Les faisceaux FIB doivent cependant repousser leurs limites actuelles qui sont surtout liées à la faible variété d'ions disponibles, malgré les sources d'alliages. Ils font en général appel aux sources à métal liquide (LMIS en anglais) de gallium qui est un élément contaminant des semi-conducteurs. Ceci limite l'intégration de machines FIB "in-line", i.e. dans les chaînes de micro et nano-fabrication, ce qui permettrait dans certains cas des gains de productivité appréciables.

Des faisceaux constitués d'ions non réactifs permettraient aussi de minimiser la contamination des éléments usinés lors de l'analyse ou de l'élaboration de nanostructures. D'où l'intérêt d'élaborer des sources plus flexibles, capables en particulier de délivrer des ions de gaz rares. [Tondare, 2005, Kuo et al., 2008, Ullmann et al., 2007]. La recherche de nouvelles sources continues d'ions monocinétiques non contaminants, à laquelle je participe, est donc un enjeu important à la fois pour l'industrie et pour les laboratoires de recherche. Paradoxalement, on rencontre aussi la limite opposée, i.e. celle utilisant des ions très réactifs qui s'avère être aussi un cas intéressant. Les FIB actuels produisent difficilement des faisceaux d'éléments très réactifs, tels que les ions césium, complexes à produire de manière stable avec des LMIS. Les faisceaux fins et intenses de césium ouvriraient des applications dans le domaine de la microanalyse ionique secondaire à haute résolution. Pour ce genre d'applications, les sources de gaz de césium refroidis par laser (MOTIS) conviendraient parfaitement, ce qui permettrait de repousser encore les limites spatiales de la microanalyse par spectrométrie de masse d'ions secondaires (SIMS, en anglais). Un système FIB associant une source très brillante d'ions, émis à partir d'un plasma ultra-froid, à une optique ionique focalisatrice, permettrait ainsi des applications analytiques en biologie, via l'imagerie nanométrique couplée à l'analyse de structures sub-cellulaires. Enfin, malgré les propriétés intéressantes des FIB de dernière génération, les propriétés théoriques des MOTIS semblent supérieures aux LMIS, surtout pour les petits faisceaux, d'où la possibilité d'effectuer des interventions d'une taille donnée avec des énergies plus faibles. Ceci limiterait les défauts cristallins induits par les ions. Cette faible énergie est également recherchée pour les applications d'analyse SIMS. En outre, un tel système serait capable de délivrer des faisceaux encore plus fins à énergie égale.

6.1.2 La microscopie électronique

La seconde partie du projet concerne la réalisation d'un faisceau d'électrons pour la microscopie électronique. La microscopie électronique (en transmission), consiste à placer un échantillon suffisamment mince sous un faisceau d'électrons. Sa résolution peut atteindre l'échelle nanométrique, et la nature de l'interaction électron-matière permet de coupler les études structurales ou morphologiques à des études de composition chimique. La spectrométrie de perte d'énergie d'électrons (EELS, en anglais) permet par exemple d'étudier les structures électroniques ou les défauts des surfaces, les phénomènes d'adsorption (physisorption) ou d'absorption (chimisorption) d'atomes et de molécules ainsi que d'étudier des alliages. Malheureusement les sources actuelles (canon à émission thermoélectronique ou à émission de champ) ne donnent pas un faisceau très cohérent qui entraîne de plus une forte aberration chromatique. L'étude de phénomènes plus fins (moins énergétiques) impose l'utilisation d'un monochromateur au détriment d'une réduction drastique du signal. A titre d'exemple, la meilleure précision est actuellement de 10 meV dans la source cryogénique développée à Heidelberg au TSR [Orlov et al., 2004] et de l'ordre de quelques meV dans les sources (photoionisation de jet d'atomes) développées dans le groupe de H. Hotop [Bömmels et al., 2001, Klar et al., 1994]. La création d'une source très monocinétique d'électrons est ainsi un enjeu absolument essentiel du domaine. Elle faciliterait grandement l'étude de phénomènes comme les modes de vibration (phonons), l'identification des espèces adsorbées ou absorbées, la détermination des sites et géométries de physisorption ou de chimisorption, etc.

La microscopie électronique résolue en temps est un sujet encore pratiquement vierge qu'il serait intéressant d'aborder. L'un des "Graal" de la chimie serait de réaliser des dispositifs d'imagerie électronique avec une résolution temporelle sub-picoseconde qui permettraient d'observer les séquences des configurations atomiques lors de la formation ou de la brisure de liaisons chimiques [Armstrong et al., 2007]. Ceci explique les études autour des sources provenant par exemple d'une cavité RF accélératrice [Bluem, 2003] déclenchée par un laser femtoseconde [Fill et al., 2006, Barwick et al., 2007, Ganter et al., 2008, Anderson et al., 2007].

La recherche de nouvelles sources d'électrons monocinétiques continues ou pulsées est donc un enjeu important. Associer une source très brillante d'électrons émis à partir d'un plasma ultra-froid (MOTES) permettrait ainsi d'étudier les sujets présentés ci-dessus auxquels s'ajoute des applications vers d'autres domaines. Une grande précision sur la détermination de l'énergie initiale de la source d'électrons produite couplée à un microscope à balayage, pourrait permettre d'atteindre simultanément des résolutions spatiales nanométriques, temporelles sub-picosecondes et énergétique proche du μeV . En plus de la microscopie électronique les applications sont nombreuses, et souvent complémentaires avec celles envisagées avec des sources issues de lasers pulsés, comme l'injection de lasers à électrons libres ou la réalisation de sources compactes de rayon X en utilisant la diffusion Compton de lumière laser par les électrons. Cette dernière application semble être celle poursuivie par le groupe de Robert Scholten et Keith Nugent de l'université de Melbourne. Finalement, de part son principe même, un paquet d'électrons extrait à partir d'un MOT aurait une émittance thermique d'un ou plusieurs ordres de grandeur plus petite que les photo-cathodes classiques ce qui est d'un grand intérêt, par exemple pour les accélérateurs de particules.

6.1.3 L'extraction des charges d'un plasma ultra-froid

Un plasma ultra-froid possède une température électronique et ionique de l'ordre du Kelvin à comparer à la valeur typique d'au moins 1000 K pour les sources habituelles d'électrons (canon thermoélectronique, canon à émission de champ, photocathode, nanotubes de carbones) ou d'ions (source à métal liquide). Extraire, comme nous le faisons déjà lors de nos expériences, à l'aide d'un champ électrique, les particules chargées, électrons ou ions, d'un plasma ultra-froid pourrait donc s'avérer un tournant décisif dans le domaine des sources d'électrons ou d'ions. De telles sources monocinétiques, pouvant être ultra-brèves et pulsées ou bien continues seraient très versatiles, initieraient un vaste champ de recherche, et ouvriraient la voie à de nombreuses applications en physique, en chimie et en biologie [Armstrong et al., 2007].

La première proposition, en 2003, d'utilisation des gaz d'atomes refroidis par laser comme nouvelles source de particules chargées provient d'un groupe russe qui proposa simplement de ioniser un jet d'atomes collimaté par laser pour former un faisceau d'ions [Freinkman et al., 2003, Freinkman et al., 2004]. La proposition suivante, en 2005, provient de l'équipe de E. J. D. Vredenbregt et O. J. Luiten de Eindhoven (Pays-Bas) qui semble être très engagée dans le projet. Leur projet initial décrit dans l'article [Claessens et al., 2005], et comparé aux sources existantes [Luiten et al., 2007], suggère d'utiliser des plasmas ultra-froids pour faire une source monocinétique d'électrons (MOTES). Leur projet initial semblait viser l'extraction très violente (champ de 1 MV/cm en 1 ns) d'une grosse bouffée de particules afin d'injecter un accélérateur de particules ou bien un laser à électrons libres. Le même groupe a ensuite publié une étude expérimentale, en utilisant des galettes micro-canaux suivies d'un écran phosphore, de l'extraction peu violente (champ de 1 kV/cm en 1 μ s) d'une bouffée de 10^5 particules [Claessens et al., 2007]. Des effets coulombiens énormes apparaissent et semblent un peu moins importants pour les ions que pour les électrons. Ces effets semblaient être indépendants du fait que le plasma soit créé par ionisation laser ou par autoionisation des atomes de Rydberg. À peu près simultanément le groupe de J. J. McClelland au NIST proposa l'utilisation des plasmas-ultra froids pour la réalisation de faisceau d'ions [Hanssen et al., 2006a, Hanssen et al., 2006b]. La dénomination MOTIS (Magneto-Optical-Trap Ion Source) provient par ailleurs de cette référence. Plus récemment, en 2007, une approche utilisant un jet atomique excité par des lasers ultra-courts dans des états de Rydberg fut proposée afin d'atteindre le régime de dégénérescence quantique pour le faisceau d'électrons [Zolotarev et al., 2007]; mais le flux serait inférieur au picoampère alors qu'il faudrait s'approcher du nanoampère pour des applications. La faiblesse du flux provient évidemment de la difficulté de s'affranchir des problèmes d'explosion coulombienne avec une densité élevée de particules [Bömmels et al., 2001, van der Geer et al., 2007].

6.2 Description de l'expérience

Une première étude de faisabilité de notre expérience se fera en utilisant un nouveau montage. Cette étude sera effectuée au laboratoire Aimé Cotton avec Andréa Fioretti et de Leila Kime qui débutera, sous ma direction, une thèse CIFRE en septembre 2008. Au bout de quelques mois l'expérience sera transférée à Orsay Physics. Le premier objectif concerne la réalisation, en 2-3 années, d'un prototype de faisceau d'ions de césium focalisé utile pour de la microanalyse SIMS et à plus long terme de réaliser une source d'ion de gaz rare non contaminant. Le second objectif est d'arriver à démontrer la faisabilité d'une source monocinétique d'électrons pour la spectroscopie par perte d'énergie d'électrons associée à la microscopie électronique.

Les limites ultimes de ces sources sont directement reliées aux caractéristiques des gaz froids dont elles sont issues. L'amélioration des caractéristiques du plasma froid est un autre enjeu important des trois années que couvre ce projet. Ainsi, l'utilisation de réseau optique d'atomes froids est envisagée. Une fois excités dans un état de Rydberg ou bien ionisés, ces atomes en réseau pourraient permettre de s'affranchir des collisions ou du désordre initial pour permettre la réalisation d'une source d'électrons ou d'ions encore bien plus brillante.

6.3 Évolution future des recherches

Pour des raisons de secret industriel je ne délivrerai pas toutes mes réflexions en cours sur ces projets. Mais, l'approche consistera à faire appel à un plasma froid, dans un premier temps de césium, dont la physique et la technologie sont bien connues, pour développer une colonne FIB prototype utilisant ce type de source. Un faisceau de basse énergie très focalisé de césium pourrait avoir des applications intéressantes dans une réalisation d'un microanalyseur ionique secondaire (SIMS) basse énergie. On travaillera ensuite sur la maîtrise d'un plasma ultra-froid de gaz rare avec des applications de FIB non contaminantes.

La génération du plasma froid sera l'objet des premières études, l'extraction des ions et des électrons sera ensuite étudiée en veillant à ne pas créer trop de chromatisme pendant le processus d'extraction. La réalisation de l'optique de transfert sera ensuite réalisée afin de conserver au faisceau l'ensemble de ses qualités. Une optique de focalisation fortement réductrice devrait ensuite conduire à des sondes d'une finesse remarquable (de l'ordre du nanomètre). Une intégration complète dans une colonne FIB commerciale ainsi que dans un microscope électronique sera alors envisagée.

Bibliographie

- [Anderson et al., 2007] Anderson, S. G., Gibson, D. J., Hartemann, F. V., Jacob, J. S., Tremaine, A. M., Lim, J. K., Frigola, P., Rosenzweig, J. B., and Travish, G. (2007). Production of Femtosecond Pulses and Micron Beam Spots for High Brightness Electron Beam Applications. *International Journal of Modern Physics A*, 22 :3726–3735.
- [Armstrong et al., 2007] Armstrong, M. R., Reed, B. W., Torralva, B. R., and Browning, N. D. (2007). Prospects for electron imaging with ultrafast time resolution. *Applied Physics Letters*, 90 :4101–+.
- [Barwick et al., 2007] Barwick, B., Corder, C., Strohaber, J., Chandler-Smith, N., Uiterwaal, C., and Batelaan, H. (2007). Laser-induced ultrafast electron emission from a field emission tip. *New Journal of Physics*, 9 :142–+.
- [Bluem, 2003] Bluem, H. (2003). Very-High-Brightness Picosecond Electron Source. In Duggan, J. L. and Morgan, I. L., editors, *Application of Accelerators in Research and Industry*, volume 680 of *American Institute of Physics Conference Series*, pages 1026–1029.
- [Bömmels et al., 2001] Bömmels, J., Leber, E., Gopalan, A., Weber, J. M., Barsotti, S., Ruf, M.-W., and Hotop, H. (2001). Energy broadening due to photoion space charge in a high resolution laser photoelectron source. *Review of Scientific Instruments*, 72 :4098–4105.
- [Claessens et al., 2007] Claessens, B. J., Reijnders, M. P., Taban, G., Luiten, O. J., and Vredenburg, E. J. D. (2007). Cold electron and ion beams generated from trapped atoms. *Physics of Plasmas*, 14 :3101–+.
- [Claessens et al., 2005] Claessens, B. J., van der Geer, S. B., Taban, G., Vredenburg, E. J., and Luiten, O. J. (2005). Ultracold Electron Source. *Physical Review Letters*, 95(16) :164801–+.
- [Fill et al., 2006] Fill, E., Veisz, L., Apolonski, A., and Krausz, F. (2006). Sub-fs electron pulses for ultrafast electron diffraction. *New Journal of Physics*, 8 :272–+.
- [Freinkman et al., 2004] Freinkman, B. G., Eletsii, A. V., and Zaitsev, S. I. (2004). A proposed laser source of ions for nanotechnology. *Microelectron. Eng.*, 73-74(1) :139–143.
- [Freinkman et al., 2003] Freinkman, B. G., Eletsii, A. V., and Zaitsev, S. I. (2003). Laser Ion Beam Formation for Nanotechnologies. *Soviet Journal of Experimental and Theoretical Physics Letters*, 78 :255–258.
- [Ganter et al., 2008] Ganter, R., Bakker, R., Gough, C., Leemann, S. C., Paraliiev, M., Pedrozzi, M., Le Pimpec, F., Schlott, V., Rivkin, L., and Wrulich, A. (2008). Laser-Photofield Emission from Needle Cathodes for Low-Emittance Electron Beams. *Physical Review Letters*, 100(6) :064801–+.
- [Hanssen et al., 2006a] Hanssen, J. L., Dakin, E. A., McClelland, J. J., and Jacka, M. (2006a). Using laser-cooled atoms as a focused ion beam source. *Journal of Vacuum Science and Technology B : Microelectronics and Nanometer Structures*, vol. 24, issue 6, p. 2907, 24 :2907–+.

- [Hanssen et al., 2006b] Hanssen, J. L., McClelland, J. J., Dakin, E. A., and Jacka, M. (2006b). Laser-cooled atoms as a focused ion-beam source. *Phys. Rev. A*, 74(6) :063416–+.
- [Klar et al., 1994] Klar, D., Ruf, M.-W., and Hotop, H. (1994). A tunable laser-atomic beam photoelectron source with sub-milli-electron-volt resolution : design, operation and application to threshold electron attachment studies . *Measurement Science and Technology*, 5 :1248–1261.
- [Kuo et al., 2008] Kuo, H.-S., Hwang, I.-S., Fu, T.-Y., Lu, Y.-H., Lin, C.-Y., and Tsong, T. T. (2008). Gas field ion source from an Ir/W<111> single-atom tip. *Applied Physics Letters*, 92 :3106–+.
- [Luiten et al., 2007] Luiten, O. J., Claessens, B. J., van der Geer, S. B., Reijnders, M. P., Taban, G., and Vredenbregt, E. J. D. (2007). Ultracold Electron Sources. *International Journal of Modern Physics A*, 22 :3882–3897.
- [Orlov et al., 2004] Orlov, D. A., Weigel, U., Schwalm, D., Terekhov, A. S., and Wolf, A. (2004). Ultra-cold electron source with a GaAs-photocathode. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 532 :418–421.
- [Tondare, 2005] Tondare, V. N. (2005). Quest for high brightness, monochromatic noble gas ion sources. *Journal of Vacuum Science Technology*, 23 :1498–1508.
- [Ullmann et al., 2007] Ullmann, F., Grossmann, F., Ovsyannikov, V. P., Gierak, J., Bourhis, E., Ferré, J., Jamet, J. P., Mougin, A., and Zschornack, G. (2007). Production of noble gas ion beams in a focused ion beam machine using an electron beam ion trap. *Journal of Vacuum Science and Technology B : Microelectronics and Nanometer Structures*, vol. 25, issue 6, p. 2162, 25 :2162–+.
- [van der Geer et al., 2007] van der Geer, S. B., Reijnders, M. P., de Loos, M. J., Vredenbregt, E. J. D., Mutsaers, P. H. A., and Luiten, O. J. (2007). Simulated performance of an ultracold ion source. *Journal of Applied Physics*, 102 :4312–+.
- [Zolotarev et al., 2007] Zolotarev, M., Commins, E. D., and Sannibale, F. (2007). Proposal for a Quantum-Degenerate Electron Source. *Physical Review Letters*, 98(18) :184801–+.

Chapitre 7

Application à la formation d'antihydrogène

7.1 Introduction et contexte international

7.1.1 Expérience avec l'anti-matière

L'une des questions fondamentales de la physique actuelle concerne l'action de la gravité sur les particules élémentaires. Du point de vue théorique, obtenir une théorie quantique de la gravitation est évidemment un des enjeux importants de la physique théorique depuis près d'un siècle, i.e. depuis qu'en 1928 Paul Dirac suggéra l'existence d'anti-électrons, découverts quatre ans plus tard par Carl David Anderson et portant le nom de positrons.

Une des façons d'aborder le problème est d'étudier d'un point de vue expérimental l'effet de la gravité sur des particules de matière et d'anti-matière. L'hypothèse d'une "anti-gravité", qui se traduirait par une élévation et non une chute d'un atome d'anti-matière soumis à la seule force de la gravité terrestre, est parfois mentionnée. Plusieurs arguments quantitatifs, effet des particules d'antimatière virtuelle dans la matière [Schiff, 1958] ou effet gravitationnel sur les horloges formées par les périodes cyclotrons des antiprotons piégés en piège de Malmberg-Penning [Hughes and Holzschelter, 1991, Walz et al., 1995, Greaves and Surko, 1997], suggèrent néanmoins que la gravité agisse de façon similaire, dans un rapport de $\sim 1 \pm 10^{-6}$, sur la matière ou sur l'antimatière. Il faut toutefois noter que ces arguments dépendent du fait que la gravité soit ou non médiée par un graviton. Une mesure expérimentale de l'effet de la gravité sur l'antimatière serait donc un test très important de ces théories et plus précisément du principe d'équivalence ou autrement dit de l'universalité de la chute libre.

L'étude de l'antimatière permet aussi d'aborder le problème, complètement indépendant de l'étude de l'effet de la gravité mais tout aussi fascinant, qu'est la symétrie matière anti-matière au travers de la symétrie CPT (conjugaison de Charge, Parité, renversement du Temps). Cette symétrie CPT est vérifiée par toute théorie quantique, avec des hamiltoniens hermitiens, des champs, locale et invariante de Lorentz (théorème CPT). Il semble que les candidats théoriques les plus simples pour une violation CPT soient donc basés sur des termes violant explicitement l'invariance de Lorentz ; comme étudié par le groupe de Kostelecký (Indiana) [Colladay and Kostelecký, 1997, Colladay and Kostelecký, 1998, Bluhm et al., 1999, Kostelecký, 2004, Lehnert, 2006]. Les violations de l'invariante de Lorentz n'ont jamais été observées sur la matière. Mais là aussi des effets d'annulation subtile de certains termes dans les hamiltoniens

pourraient rendre les effets plus importants sur l'antimatière que sur la matière. De nombreux tests comparant des électrons et des positrons (des leptons) ou des protons et des anti-protons (des baryons) piégés ou encore via l'étude des masses de K^0 et de $\bar{K}^0$ (des mésons) montrent qu'une violation de CPT si elle existe est sans doute très faible (de l'ordre de 10^{-14}). L'étude de la violation CPT, et plus particulièrement une comparaison à terme de la spectroscopie de la transition $1s \rightarrow 2s$ de l'hydrogène et de l'antihydrogène, est toutefois mise en avant dans les expériences existantes d'étude de l'antimatière [Bluhm et al., 1999].

7.1.2 Formation d'un jet d'anti-hydrogènes

La première formation de quelques atomes d'anti-matière (antihydrogène) fut faite dans le jet Low Energy Antiproton Ring (LEAR) en 1995 au CERN [Baur et al., 1996] puis dans l'accélérateur du FERMILAB en 1998 [Blanford et al., 1998]. L'annonce, en 2002, par deux équipes du CERN, ATRAP (Antihydrogen Trap dirigée par G. Gabrielse) [Gabrielse et al., 2002a] et ATHENA (AnTiHydrogEN Apparatus dirigée par A. Rotondi) [Amoretti et al., 2002], de la formation d'antihydrogène, au repos dans l'enceinte expérimentale, fut finalement un résultat important. Depuis, de nouvelles découvertes s'effectuent, je ne mentionnerai que la première production de protonium (proton-antiproton) par collision des antiprotons avec l'ion H_2^+ naturellement présent dans l'enceinte à vide [Zurlo et al., 2006]).

Sans décrire en détail les expériences (voir les articles de revues [Charlton et al., 1994, Holzscheiter and Charlton, 1999, Holzscheiter et al., 2004, Gabrielse, 2005]), indiquons rapidement la procédure amenant à la formation d'atomes d'antihydrogène. Le CERN est le seul endroit au monde mettant à disposition des expérimentateurs des antiprotons de basse énergie (formés à quelques GeV ils sont ralentis par refroidissement stochastique et par des électrons à 200 MeV). Il suffit alors de refroidir ces antiprotons, par exemple au travers d'un modérateur, puis de les piéger, avec des électrons, dans des pièges de (Malmberg-)Penning cryogéniques pour disposer d'antiprotons à 4 K. Le refroidissement des électrons se fait par équilibre thermique radiatif. Après avoir éliminé les électrons et en ajoutant des positrons (provenant d'une source de ^{22}Na , refroidi par gaz tampon de néon) on dispose alors d'un (anti-)plasma ultra-froid. Les processus de recombinaison à trois corps [Robicheaux, 2004], ou de recombinaisons radiatives, forment alors des atomes d'antihydrogène dans des états de Rydberg. Les techniques de détections sont basées sur l'observation d'une coïncidence d'une annihilation de positron et d'antiproton. L'équipe ATRAP utilisant de plus une ionisation par champ électrique pulsé.

Les études menées par la suite montrèrent un taux de formation relativement faible (10^6 antihydrogène par an). Les atomes sont formés dans des nombres quantiques élevés $n > 30$ [Gabrielse et al., 2002b] et, à cause de la rotation du plasma de positron dans le piège de Penning, les atomes formés le sont à de très hautes températures ($T > 100$ K) [Gabrielse et al., 2004, Madsen et al., 2005]. Cette dernière observation réduisit fortement les espoirs de piégeage des atomes d'antihydrogène dans ces dispositifs. Ainsi, depuis 2004, de nouvelles stratégies sont en place afin d'améliorer, notamment ce dernier point. Si quelques études théoriques se concentrent sur le refroidissement des antihydrogènes avec des collisions avec un gaz tampon d'H, d'He ou de Li [Jonsell et al., 2004, Zygelman et al., 2004, Sinha and Ghosh, 2005a, Sinha and Ghosh, 2005b, Cohen, 2006, Sharipov et al., 2007, Jonsell, 2008, Armour et al., 2008] elles souffrent évidemment de processus de réarrangement rédhibitoire.

7.1.3 Efficacité et piégeage

Les expériences se focalisèrent aussi sur l'augmentation du taux de production. Ceci passe par de nouveaux processus de formation ou par un meilleur ralentissement des antiprotons comme à l'aide d'un "Radio-frequency Linear Accelerators (RFQD)" qui focalise, accélère et "bunch" à la fois le jet [Staples, 1992]. Un RFQF fut utilisé en 2005 par l'équipe ASACUSA (Atomic Spectroscopy and Collisions Using Slow Antiprotons, dirigée par R. Hayano) qui étudie principalement l'hélium antiprotonique ($\bar{p}\text{He}^+$) [Kuroda et al., 2005]. Afin d'augmenter le taux de formation des antihydrogènes, un nouveau mécanisme de formation a été essayé sans succès par ATHENA en utilisant une stimulation de la recombinaison en antihydrogène par laser CO_2 [Amoretti et al., 2006a]. Une toute nouvelle méthode, plus performante, fut utilisée en 2004 par ATRAP qui réussit à former [Storry et al., 2004] des antihydrogènes par le processus d'échange de charge prédit par E. A. Hessels (de Toronto) en 1998 [Hessels et al., 1998]. Le principe est l'échange d'excitation Rydberg entre des atomes de césium, excités par laser, et des positrons. Il se forme alors du positronium (une paire e^+e^-) excité qui en collisionnant avec les antiprotons forme un d'atome d'antihydrogène. Outre le gain sur le taux de formation, le résultat important concerne le fait que la température des atomes d'antihydrogène est celle des antiprotons (~ 4 K). Mais, ces atomes d'antihydrogène sont toujours dans des états de Rydberg de nombres quantiques assez mal définis $n = 20 - 50$ et $l = 0 - 40$.

Afin de piéger les anti-atomes il faut des pièges capables de stocker à la fois des anti-protons, des positrons et des atomes. De nombreux projets existent, ils utilisent des pièges mixtes comme le système octupole électrique + quadrupole magnétique + piège de Paul chez ASACUSA. ATRAP superpose actuellement un piège de type Ioffe-Pritchard (pour les atomes) au piège de Penning pour les ions. Une stabilité suffisante de ce piège hybride fut longtemps discutée (voir [Fajans et al., 2008]) mais semble à présent acquise comme le démontrent les expériences de plasma piégé [Andresen et al., 2008, Choi et al., 2008, Andresen et al., 2007]. La production (mais non le piégeage) d'antihydrogène, dans ce type de piège vient très récemment d'être démontrée par ATRAP [Gabrielse et al., 2008]. Enfin la production d'antihydrogène dans un piège de 1 Tesla seulement vient d'être démontrée par le groupe ALPHA (Antihydrogen Laser PHysics Apparatus, dirigée par Jeffrey Hangst) [ALPHA Collaboration : M. C. Fujiwara et al., 2008] [Andresen et al., 2008]. ALPHA émana d'ATHENA au cours de l'année 2005 et quelques membres d'ATHENA cherchèrent un autre projet.

7.1.4 Proposition d'utiliser un jet d'anti-hydrogène

Je fus ainsi contacté par Michael Doser lors de sa participation au colloque PARYS que je co-organisais sur les plasmas ultra-froids. Une nouvelle équipe se forma et prit le nom d'AEGIS (Antimatter Experiment : Gravity, Interferometry, Spectroscopy, dirigée par Gemma Testera). Le groupe chercha dès le début à se démarquer des autres en envisageant une expérience capable de rapidement amener une mesure physique pertinente. Comme il nous sembla que la violation CPT, ou plus précisément la brisure de l'invariance de Lorentz, a plus de chance, à moyen terme, d'être observée sur la matière que par comparaison avec l'antimatière, l'équipe se tourna vers une mesure de la gravité. De plus l'idée n'est pas, comme dans les autres groupes, de piéger, tout au moins à court terme, les atomes mais de les extraire de la zone de formation pour pouvoir les étudier dans des environnements moins contraints (sans le champ magnétique de plusieurs Tesla des pièges de Penning notamment).

Le projet fut déposé en juin 2007 au CERN, et est donc accessible (SPSC-P-334 ; CERN-SPSC-2007-017).

Mentionnons enfin le dépôt récent au CERN (SPSC-I-237 ; CERN-SPSC-2007-038) d'une pré-demande de programme de Recherche coordonné par le CEA-DAPNIA qui consiste à produire des ions d'antihydrogène $\bar{H}^+$ en utilisant une cible d'atomes de positronium soumise au bombardement d'antiprotons. Le piégeage des ions étant bien plus facile que celui des atomes le projet permettrait d'étudier plus facilement ces antiparticules.

7.2 L'expérience AEGIS : NIMB 266 351 (2008)

Le but d'AEGIS est de former, en utilisant des états de Rydberg intermédiaires, un jet d'anti-atomes afin de mesurer pour la première fois l'effet de la gravité sur de l'antimatière. Le projet a pour but de mesurer la gravité à une précision de 1 % avec seulement 10^5 atomes d'antihydrogène et donc en moins d'un mois d'expérience.

Les expériences de formation d'antihydrogène, bien que souvent le fait de personnes originaires de la physique des particules, sont bel et bien des expériences de physique atomique qui intéressent de plus en plus de groupe de physique atomique. Le projet AEGIS regroupe par exemple les groupes de Frédéric Merkt, de Guglielmo M. Tino, de Markus Oberthaler, et (pour la discussion initiale sur l'interféromètre) de Jacques Vigué. Pour ma part, tout comme le groupe de Frédéric Merkt, je me suis particulièrement investi dans les domaines concernant l'étude des états de Rydberg, le transport des atomes, le piégeage et le refroidissement laser des antihydrogènes.

Les étapes de l'expérience sont :

Les grandes étapes du projet en plus de la production des positrons de leur accumulation ainsi que celle des antiprotons sont résumées sur la figure 7.1.

- La production de positronium (Ps) par bombardement d'un matériel nanoporeux par les positrons.

Ce processus peut être extrêmement efficace (la moitié des positrons peut s'appareiller avec des électrons pour former le positronium). Il est très étudié à 300 K [Mills and Wilson, 1982, Uedono et al., 1994, Vallery et al., 2003, Gidley et al., 1999] mais il demande à être caractérisé aux températures cryogéniques.

- L'excitation du Ps dans des états de Rydberg directement par laser (et non par impact avec le Cs comme dans l'expérience d'ATRAP).

Le processus d'excitation du Ps dans des états de Rydberg directement par laser peut évidemment être extrêmement efficace. La difficulté principale est liée à la faible masse du positronium convertissant une faible température en vitesse importante créant un effet Doppler et surtout un effet Stark dynamique (au travers du champ de un Telsa du piège de Penning pour les anti-protons). Suite à de nombreuses discussions entre nous, le schéma finalement retenu par le groupe de Milan est donc une excitation large bande réalisée en deux étapes : une excitation vers $n = 3$ (longueur d'onde 205 nm provenant d'un colorant triplé en fréquence) puis vers $n \sim 30 - 40$ (longueur d'onde 1670 nm provenant d'un générateur paramétrique amplifié). Un article, que le groupe de Milan m'a suggéré de co-signer, viens d'être soumis à publication [Castelli et al., 2008].

- L'échange de charge : $Ps(nl) + \bar{p} \rightarrow \bar{H}(n'l')$

Le processus d'échange de charge entre atomes de Rydberg fut particulièrement étudié par le groupe de K. MacAdam [MacAdam and Horsdal-Pedersen, 2003]. La section efficace de

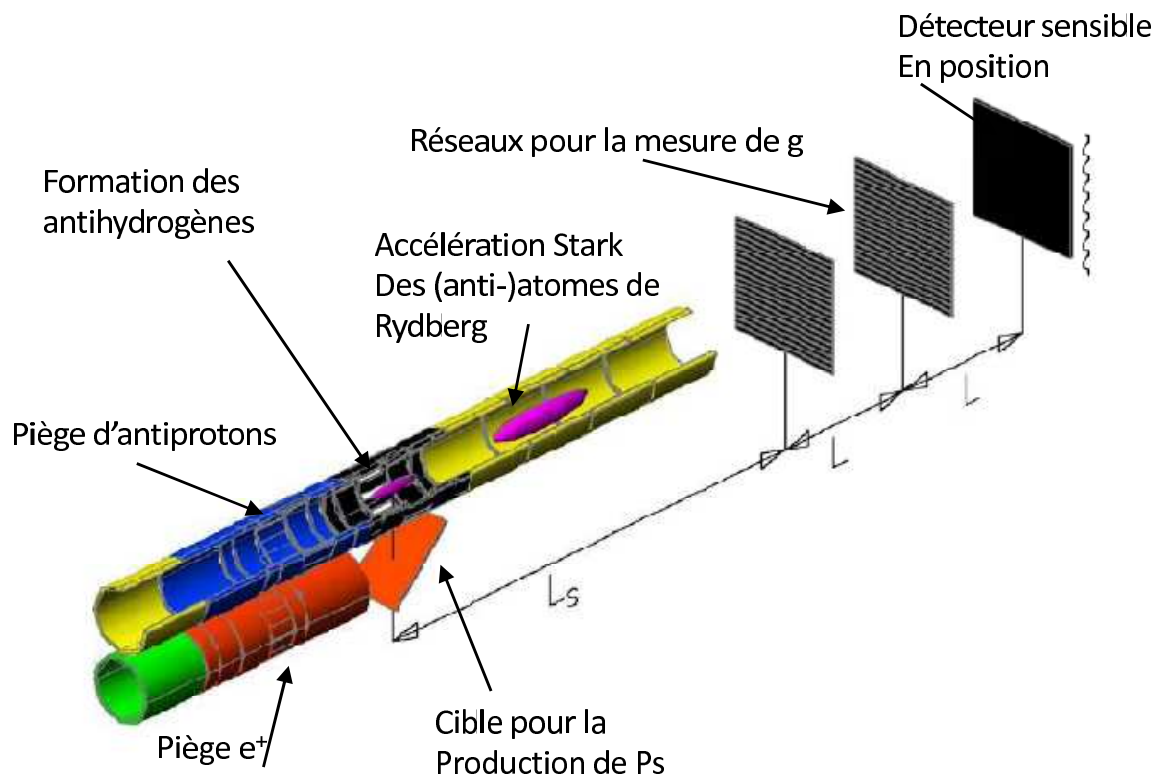


FIG. 7.1 – Méthode de production d’antihydrogène proposée dans AEGIS [Testera et al., 2008]. Les $\text{Ps}(e^+ - e^-)$, formés par impact des positrons (e^+) sur la cible, sont excités par laser dans des états de Rydberg. Par transfert d’excitation lors de leurs collisions avec les antiprotons, des atomes de Rydberg d’antihydrogène sont formés. Un champ électrique variable les accélère, par effet Stark, vers les réseaux qui permettent de mesurer leur chute sous l’effet de la gravité.

ce processus varie proportionnellement à n^4 ce qui permet donc d’avoir des rendements de conversion importants. Il faut néanmoins s’assurer que la vitesse du projectile Ps soit inférieure à la vitesse de l’électron de Rydberg sur son orbite, ce qui demande des Ps à faible température (inférieure à des dizaines de Kelvin). Afin d’éviter des effets parasites (comme l’ionisation par effet Stark dynamique des Ps) nous pensons travailler avec $n \sim \sqrt{2n'} \sim 30$.

- Formation d’un jet d’antihydrogène par accélération Stark des atomes de Rydberg. Cette technique d’accélération n’est possible que dans notre expérience qui forme à un instant bien défini les atomes d’antihydrogène. L’utilisation de champs électriques variables temporellement pour accélérer ou décélérer des atomes de Rydberg est aussi un point où je me suis investi. En effet comme précédemment indiqué j’avais participé au projet de Nicolas Vanhaecke de décélérateur Stark par un gradient de champ électrique variable temporellement [Vanhaecke et al., 2005]. Notons que le groupe de Frédéric Merkt, fut le premier à utiliser cette technique sur l’argon et l’hydrogène [Vliegen et al., 2004, Vliegen and Merkt, 2006]. Cette partie du projet est coordonnée, et simulée, par le groupe italien de Gemma Testera auquel le groupe de F. Merkt et moi-même avons apporté nos connaissances. Je suis actuellement en contact avec eux pour effectuer une simulation

prenant en compte l'effet important du champ magnétique en plus du champ électrique d'accélération appliqué sur les électrodes du piège de Penning. Pour des orientations arbitraires des champs il faut effectuer un calcul quantique complet des niveaux d'énergie, nous nous inspirons, pour l'instant, de la technique développée dans l'article [Main et al., 1998]. En résumé nous pensons raisonnable de former, chaque 2 minutes (période de délivrance des 10^4 antiprotons par le CERN), un jet d'une centaine d'antihydrogène, avec des nombres quantiques recouvrant $n = 20 - 40, l = 0 - 40, m_l = 0 - 40$. Les antiprotons non convertis en antihydrogène seront recyclés pour améliorer le rendement du processus. La vitesse longitudinale du jet d'antihydrogène ainsi réalisé peut être variée en variant les champs utilisés pour son accélération. Mais, même avec un champ électrique d'accélération fixe cette vitesse n'est pas unique mais dépend de n, l, m_l et varie entre 200 et 700 m/s. La vitesse $v_\perp$ transverse du jet n'est pas trop affectée par cette phase d'accélération et est donc essentiellement liée à la température initiale $T_{\bar{p}}$ des antiprotons. En utilisant des techniques cryogéniques de pointe nous espérons atteindre $T_{\bar{p}} \sim 100$ mK et donc $v_\perp \sim 40$ m/s.

– Désexcitation des atomes de Rydberg.

Même si des propositions existent pour faire des mesures de gravité avec des états de Rydberg (de positronium) [Mills and Leventhal, 2002] nous pensons, pour des questions de durée de vie ou de contrôle nécessaire des champs électriques et magnétiques qu'il est préférable d'attendre la désexcitation des atomes, vers les états $1s$ ou $2s$, avant d'effectuer une mesure de gravité.

Cette étape de désexcitation des atomes de Rydberg est un point crucial de toute expérience d'antihydrogène, de nombreux articles étudient ce phénomène pour des atomes piégés en piège magnétique ou non [Zygelman, 2005, Topçu and Robicheaux, 2006, Flannery and Vrincea, 2005b, Horbatsch et al., 2005a]. Des études par les groupes de F. Robicheaux ou de T. Pohl prédisent même un refroidissement translationnel par perte d'énergie magnétique lors de la cascade radiative [Pohl et al., 2006, Taylor et al., 2006]. Des expériences de désexcitation stimulée par des lasers à électrons libres ont aussi été tentées, à Amsterdam par L. Noordam, mais sans grand succès [Wetzels et al., 2006]. Sans tout dévoiler, je mentionnerai juste que l'utilisation d'une zone non cryogénique à température T pourrait par exemple accélérer notablement la désexcitation des atomes de Rydberg. J'ai en effet simulé, ce qui pourraient donner lieu à une publication et même être testées en laboratoire, l'effet de la cascade radiative induite par le corps noir. En utilisant le fait que les transitions les plus favorables sont, sauf pour les l faibles ($l \lesssim 5$), les transitions $n, l \rightarrow n - 1, l - 1$ et $n, l \rightarrow n + 1, l + 1$, il est possible d'estimer la marche au hasard que subit le nombre quantique n . La moitié des atomes voient leur nombre quantique principal n croître, alors que l'autre moitié le voit décroître et l'évolution de nombre $\bar{n}$, ainsi notée pour signifier le choix d'une équirépartition des nombres quantiques l, m_l au départ, peut être estimée par

$$-\frac{d\bar{n}}{dt} \sim \frac{1}{2(\bar{n}(t=0) - \bar{n})} 5 \times 10^6 (\text{s}^{-1}) \frac{T(\text{K})}{300 \text{ K}} \bar{n}^{-2} + 10^{10} (\text{s}^{-1}) \bar{n}^{-5}.$$

Le dernier terme prenant en compte l'émission spontanée. En résolvant cette équation très simple, on montre que le temps de désexcitation passe de plus d'une milliseconde pour $T < 4$ K à 0.1 ms pour $T \sim 300$ K, ce qui permettrait une désexcitation du jet d'antihydrogène sur une distance de quelques centimètres seulement.

- Détermination de la gravité par un déflectromètre de Moiré.

De nombreuses techniques de type interférométriques existent pour mesurer la gravité, mais l'absence de séparatrice laser pour atomes d'hydrogène ou d'antihydrogène rend cette approche impossible à l'heure actuelle. Le principe retenu est basé sur l'expérience réalisée par Markus Oberthaler (membre d'AEGIS) lors de son passage dans le groupe de A. Zeilinger [Oberthaler et al., 1996] en utilisant un déflectromètre de Moiré. Pour réussir à mesurer la chute de quelque dizaines de microns seulement due à la gravité, le principe est très simple : à un mètre de distance des fentes d'environ $10\text{ }\mu\text{m}$ permettent de diaphragmer le faisceau et un détecteur situé plus loin mesure alors cette chute. Un réseau de fentes permet d'optimiser le processus.

7.3 Évolution future des recherches

L'expérience AEGIS a déjà été évaluée par le CERN qui lui a donné le feu vert pour démarrer l'expérience. Néanmoins, cette expérience ne pouvant valablement commencer qu'avec la certitude que le décélérateur d'antiprotons (AD) continue de fonctionner au delà de son contrat actuel jusqu'en 2010, une validation complète du renouvellement du contrat AD pour réellement commencer l'expérience est donc indispensable et ne sera connu qu'en fin de l'année 2008. En attendant la réponse de cette validation, je présente ci-dessous les aspects auxquels je réfléchis actuellement.

7.3.1 Effets sur les atomes de Rydberg

L'évolution future des recherches se poursuit donc, dans l'immédiat, avec des modélisations, comme celles que je mène avec le groupe de Gemma Testera sur l'effet du champ électrique et magnétique sur le transport des atomes de Rydberg.

J'ai aussi commencé à réfléchir sur les possibilités à long terme de refroidir et de piéger les atomes d'antihydrogène dans un piège magnétique. Il faut pour cela être capable d'accumuler les atomes provenant des formations successives. Une excitation laser suivie d'une désexcitation spontanée permettrait sans doute de réaliser cette étape en utilisant des états sensibles de façon différente aux champs électriques de transport et magnétiques de piégeage. Cette idée est assez similaire à ce qui est envisagé pour les molécules de NH dans le groupe de G. Meijer [van de Meerakker et al., 2001].

7.3.2 Refroidissement maximum du nuage d'antiprotons : bunching

Un point important concerne le refroidissement maximum du nuage d'antiprotons. En effet la précision de la mesure de la gravité est liée à la température du jet d'antihydrogène qui est la même que celle du nuage d'antiprotons piégé. J'ai collaboré avec Alban Kellerbauer concernant un possible refroidissement sympathique avec des ions Os^+ eux-mêmes refroidis par laser. En cela j'ai repris le calcul des sections efficaces d'ionisation de l'article [Kellerbauer and Walz, 2006], et le résultat rend encore plus optimiste la réalisation de ce projet en cours à Heidelberg. Le refroidissement des antiprotons est possible en utilisant soit : un gaz tampon, un refroidissement résistif, radiatif, stochastique [Lagomarsino et al., 1991], sympathique, adiabatique [Li et al., 1993, Pattanayak et al., 2005], évaporatif, ou par effet de

bunching ou d'asymétrie du potentiel [Kabantsev et al., 2003] Il semble par exemple possible de modifier les champs électriques du piège de Penning pour refroidir le nuage en transférant la dispersion en vitesse en une dispersion en position, soit par des phénomènes de bunching soit par refroidissement adiabatique [Dubin and O'neil, 1999, Cromptoets et al., 2002, Pattanayak et al., 2005, Aoki et al., 2006b]. Malheureusement, la théorie du transport de chaleur dans les plasmas d'antiprotons non neutres plongés dans un plasma d'électrons magnétisé est très complexe et pas totalement établie [Hyatt et al., 1987, Driscoll et al., 1988, Beck et al., 1992, Glinsky et al., 1992, Beck et al., 1996, Amoretti et al., 2004, Amoretti et al., 2006b] voir toutefois l'article de revue [Driscoll et al., 2002]. Une expérience semble donc indispensable pour comprendre ce mécanisme et espérer réaliser un réel refroidissement.

7.3.3 Refroidissement maximum du nuage d'antiproton : évaporation ?

Une autre méthode possible est le refroidissement évaporatif. Il n'existe, à ma connaissance, aucune théorie du refroidissement évaporatif en piège de Penning. Même si des refroidissements par évaporation ont été observés et des embryons de théorie ont été développés pour les EBIT (electron beam ion trap) [Penetrante et al., 1991, Kinugawa et al., 2001].

J'ai donc développé une théorie du refroidissement évaporatif en piège de Penning que je décris très rapidement ici. Notons tout de suite que les valeurs expérimentales attendent rendent illusoire l'utilisation du refroidissement évaporatif pour atteindre des températures sub-cryogéniques.

Les techniques de refroidissement évaporatif pourraient être de plusieurs sortes selon que l'on affecte la rotation plasma, la rotation cyclotron ou que l'on cherche à heurter les électrodes. Des expériences très proches de celle développée pour connaître T_e dans les plasmas ultra-froids, i.e. une expulsion pulsée des particules chargées ont été effectuées [Eggleston et al., 1992, Aoki et al., 2006a] et pourraient être étendues pour effectuer un refroidissement évaporatif. Les théories de refroidissement évaporatif pour les gaz d'atomes neutres sont nombreuses. J'en ai moi-même développée une très simple (décrite plus loin) lors de mon étude de la formation d'un condensat de Bose-Einstein [Comparat et al., 2006]. Mais, il n'est pas évident de les transférer aux pièges de Penning car le potentiel de piégeage est fortement affecté par le nombre de particules chargées présentes créant une charge d'espace. Le problème principal, pour rendre le processus efficace, est que le champ moyen (charge d'espace) plus le potentiel de piégeage $E_p \sim \frac{1}{2}m\omega\langle z^2 \rangle$ est en général bien supérieur à l'énergie cinétique $E_c \sim \frac{1}{2}m\langle v^2 \rangle$ (avec des notations que j'espère évidentes). Ainsi, lorsqu'on enlève les particules les plus énergétiques le nouvel équilibre thermique s'établit en répartissant l'énergie entre les énergies potentielles et cinétiques, ne modifiant donc que très peu cette dernière. Un petit piège ($N = 10^4$) peu dense (diamètre $d = 5$ mm) pourrait éventuellement amener à un rapport plus favorable entre $E_p \sim \frac{e^2}{d}N \sim k_B \times 30$ K et E_c en utilisant des paramètres de piégeage très inhabituels avec de très faibles champs électriques (0.1 V/cm) et magnétiques (10 mT). Ces paramètres sont toutefois les mêmes que ceux obtenues à la fin d'un éventuel refroidissement adiabatique [Li et al., 1993].

Malgré ce résultat décevant je présente ici rapidement la théorie que j'ai développée mais que je n'ai pas encore soumise pour publication. Le problème complexe de l'équilibre thermodynamique, i.e. des équations donnant la densité, la taille ou la fréquence de rotation dans le laboratoire du plasma, en fonction des paramètres du piège est abordé dans les articles [Li et al., 1991, Dubin and O'neil, 1999]. Ma théorie est basée sur le calcul de l'énergie du

plasma $E \sim \frac{1}{2}Nm\omega_2 L^2 + \frac{3}{2}Nk_B T$ [Li et al., 1991, Dubin and O'neil, 1999], où L est le moment angulaire.

L'énergie du plasma est tronquée expérimentalement (évaporation forcée) à $E_t = \eta k_B T$ avec $\eta \sim 10$. Il faut donc noter qu'à cause de la troncation, l'équilibre n'est sans doute pas celui décrit dans les articles précédemment mentionnés mais l'équilibre que j'ai découvert, lors de mes études sur les plasmas ultra-froids, qu'est l'équilibre de Kramer-Michie-King. Les équations d'évolution du nombre d'atomes $dN \approx - \int_{E(\vec{r}, \vec{p}) > E_t} f(\vec{r}, \vec{p}, t) d^3\vec{r} d^3\vec{p}$, et de l'énergie $dE \sim -E_t e^{-\eta} \eta^d / 6$, après un temps $dt \sim 1/\gamma$, où γ est le taux de thermalisation, sont assez semblables aux équations pour les atomes froids [Eggleston et al., 1992] :

$$\frac{dN}{N} = -dt \frac{\gamma}{3} e^{-\eta} (\eta^2/2 + \eta + 1) \quad (7.3.1)$$

$$\frac{dE}{E} = -\frac{\eta}{3} \frac{dN}{N} \quad (7.3.2)$$

Une différence importante avec les théories de refroidissement d'atomes froids est dans l'évaluation du taux de thermalisation γ qui dépend du rapport du rayon cyclotron à la distance de plus faible approche. De plus plusieurs temps de thermalisation existent : un temps local atteint en quelques temps de collision $t_{\text{Spitzer}} \sim 10^{-3}$ s, un temps global en ~ 10 s et un temps d'expansion (permettant une modification du moment angulaire L) en $\sim 10^3$ s [Aoki et al., 2006a]. Il faudrait donc affiner la théorie des collisions ion-électron dans les plasmas magnétisés pour aller plus loin [Nersisyan, 2006, Geller and Weisheit, 1997, Koryagin, 2000, Driscoll et al., 2002, Toepffer, 2002, Nersisyan et al., 2003]. Mentionnons que, contrairement au cas des atomes froids [Nersisyan, 2006, Coppa and Ricci, 2002], des effets paradoxaux peuvent apparaître si l'on traite le problème par des équations cinétiques de Fokker-Planck. Je pense notamment au paradoxe dit de Hénon (1960), découvert dans le cas des amas globulaires stellaires mais qui, je pense, s'applique aussi aux plasmas. Le paradoxe s'énonce ainsi : lorsque E s'approche de E_t la trajectoire de la particule passe de moins en moins de temps au centre du plasma, elle rencontre de moins en moins de collisions et ses changements d'énergies tendent vers 0 lorsque E s'approche de E_t ce qui implique que la particule ne s'échappe jamais. Pour résoudre ce paradoxe il faut tenir compte des événements rares que sont les collisions fortes à très faible paramètre d'impact qui ne sont pas traitées dans l'équation de Fokker-Planck-Vlasov.

En améliorant ces équations [Comparat et al., 2005], on trouve, comme pour les étoiles des amas [Lyman Spitzer, 1987], un taux de relaxation de l'ordre de $\gamma \sim 1/(100t_{\text{Spitzer}})$. Néanmoins, à cause du très fort champ magnétique présent il est peu probable que ce taux de relaxation soit très précis et une expérience semble donc indispensable pour mesurer celui-ci.

7.3.4 Refroidissement laser

Le projet le plus ambitieux concerne la production de lumière laser pour manipuler les atomes d'anti-hydrogène. Ce projet pourrait permettre de refroidir le jet d'anti-hydrogène, pour éventuellement le piéger et même aller vers la condensation de Bose-Einstein des atomes d'anti-hydrogène. Celle-ci fut envisagée dès 2003 pour des applications de stockage d'énergie en vue de vol spatiaux [Nieto et al., 2003] !.

Louis Cabaret du laboratoire Aimé Cotton est le principal investigateur du projet "Source laser quasi-continue de très haute intensité, à la longueur d'onde de Lyman- α , pour refroidir des atomes d'anti-hydrogène en vue de tests de gravité". Outre Louis Cabaret, Cyril Drag (pour la

partie OPO) et moi-même (pour le refroidissement laser) du laboratoire Aimé Cotton et Patrick Juncar et Mark Plimmer de l'INM/Cnam (L'Institut National de Métrologie du Conservatoire national des arts et métiers), pour la partie de stabilisation en fréquence des lasers utilisés, sont parties prenantes du projet.

Le refroidissement par laser d'atomes d'antihydrogène piégées, a été réalisé par le groupe de J. Walraven [Setija et al., 1993] et plus récemment par celui de T. Pfau [Schmidt et al., 2003]. En appliquant un laser pulsé sur des atomes d'hydrogène piégés magnétiquement la température de 8 mK fut atteinte [Setija et al., 1993]. Plusieurs propositions pour refroidir plus efficacement des atomes d'(anti-)hydrogène par laser ont été suggérées [Allegrini and Arimondo, 1993] en utilisant des lasers pulsés nanosecondes [Zehnlé and Garreau, 2001, Zehnlé and Garreau, 2003] ou femtosecondes [Kielpinski, 2006, Blinov et al., 2006]. Jusqu'à présent aucune d'entre elles n'est suffisamment efficace pour réaliser le refroidissement d'un jet de particules comme cela serait utile dans l'expérience AEGIS. Le problème principal est la grande difficulté de réaliser la longueur d'onde de 121,57 nm (Lyman- α) nécessaire au refroidissement des atomes sur la transition $1s \rightarrow 2p$. En effet, la façon la plus efficace de réaliser la longueur d'onde Lyman- α est par le biais d'un mélange non-linéaire à quatre-ondes, i.e. en réalisant la somme des fréquences (257 nm + 399 nm + 545 nm) de trois faisceaux laser dans une vapeur de mercure. Même s'il est sans doute possible d'optimiser le processus par chauffage local de la vapeur [Chénais et al., 2007], par transparence induite [Dorman and Marangos, 1998] ou encore par passage adiabatique [Oberst et al., 2006], il n'est pas assez efficace si l'on utilise des lasers continus. À ce jour la source continue la plus puissante délivre seulement 20 nW et fut réalisée dans le groupe de T. Hänsch [Eikema et al., 2001, Walz et al., 2003]. En utilisant des lasers pulsés (10 ns durée d'impulsion) on améliore le rendement du mélange à quatre-ondes et l'efficacité est telle qu'il est possible de saturer la transition laser. Mais, dans ce cas, la durée de l'impulsion est trop courte pour avoir le temps de transférer suffisamment d'impulsions de photons afin de refroidir efficacement des atomes.

En connaissant l'intensité de saturation (7 W/cm^2) de la transition, il est facile de voir qu'afin de refroidir transversalement le jet d'atomes qui sera produit dans AEGIS il faut une puissance de quelques milli-Watt et être de plus capable de l'appliquer durant au moins 100 μs .

Le but du projet mené par Louis Cabaret est très ambitieux car, afin d'atteindre cet objectif, il s'agit d'augmenter de près de 6 ordres de grandeurs les intensités lasers précédemment disponibles.

L'idée est d'utiliser un type de laser intermédiaire entre un laser continu et un laser pulsé : le laser quasi-continu [Cabaret et al., 2000]. Le fonctionnement de ce laser a été démontré depuis quelques années au laboratoire Aimé Cotton sur un système Yb :YAG doublé en fréquence (longueur d'onde 510 – 520 nm) : sa durée d'impulsion est de 200 – 400 μs avec un taux de répétition de 10 – 20 Hz, une stabilité en fréquence de quelques dizaines de MHz, et surtout une forte intensité, directement liée à la puissance de pompe, de 50 W durant l'impulsion. Le projet est donc basé sur trois lasers quasi-continus avec chacun une puissance 100 fois supérieure à celle utilisée dans le groupe de T. Hänsch. Ainsi un gain de 10^6 dans la puissance finale peut être attendu après le mélange de fréquence, ce qui permettrait d'atteindre exactement les objectifs décrits ci-dessus.

Le développement d'une source quasi-continue, qui regroupe les avantages d'une source continue (faible finesse spectrale et long temps d'interaction) avec celle d'une source pulsée (forte intensité) ouvrira sans doute beaucoup d'autres domaines de recherche. On peut mentionner, comme pour l'hydrogène, la manipulation optique, voire interférométrique, d'atomes comme le

carbone, le silicium ou l'oxygène, qu'il est quasiment impossible de réaliser à l'heure actuelle. On peut finalement mentionner que la durée d'impulsion de la source laser quasi-continue $\sim 100 \mu\text{s}$ est semblable à celle des jets supersoniques pulsés ou à la durée de vie des atomes de Rydberg. Une telle source pourrait donc s'avérer l'outil idéal pour la manipulation de ces systèmes.

La réussite de ce projet ambitieux, ouvrant vers beaucoup de domaines, mais coûteux (plus d'un million d'euros), est évidemment entièrement liée à son financement (une demande à l'ANR est envisagée).

7.3.5 Projets à long terme

A plus long terme des mesures CPT pourraient être envisagées. J'ai étudié les violations de l'invariance de Lorentz dans l'équation de Dirac [Shore, 2005] afin de savoir comment utiliser une spectroscopie Rydberg pour effectuer des mesures de violation CPT. Il semble difficile d'obtenir une précision à moyen terme meilleure que 10 kHz sur une transition à deux photons $2s \rightarrow nd$ ($2s \rightarrow 3p$ à 656 nm plus $3p \rightarrow nd$ à 820 nm). Ce genre de mesure ne donnerait qu'une précision relative de 10^{-10} . Afin d'obtenir de meilleures précisions il faut trouver des mesures qui seraient plus sensibles aux termes violant l'invariance CPT. Les propriétés collisionnelles, comme la valeur de la longueur de diffusion, sont très sensibles aux détails des potentiels moléculaires (voir le chapitre qui suit!). Une spectroscopie de photoassociation, ou même l'étude des propriétés collisionnelles sur la matière, ou sur l'anti-matière, pourrait donner des mesures de violation CPT, avec une précision relative de 10^{-14} [Müller et al., 2004] qui deviennent alors concurrentes des autres mesures existantes [Lehnert, 2006].

Bibliographie

- [Allegrini and Arimondo, 1993] Allegrini, M. and Arimondo, E. (1993). Pulsed laser cooling of hydrogen atoms. *Physics Letters A*, 172 :271–276.
- [ALPHA Collaboration : M. C. Fujiwara et al., 2008] ALPHA Collaboration : M. C. Fujiwara, Andresen, G. B., Bertsche, W., Bowe, P. D., Bray, C. C., Butler, E., Cesar, C. L., Chapman, S., Charlton, M., Fajans, J., Funakoshi, R., Gill, D. R., Hangst, J. S., Hardy, W. N., Hayano, R. S., Hayden, M. E., Humphries, A. J., Hydomako, R., Jenkins, M. J., Jorgensen, L. V., Kurchaninov, L., Lai, W., Lambo, R., Madsen, N., Nolan, P., Olchanski, K., Olin, A., Povilus, A., Pusa, P., Robicheaux, F., Sarid, E., Seif El Nasr, S., Silveira, D. M., Storey, J. W., Thompson, R. I., van der Werf, D. P., Wasilenko, L., Wurtele, J. S., and Yamazaki, Y. (2008). Particle Physics Aspects of Antihydrogen Studies with ALPHA at CERN. *ArXiv e-prints*, 805.
- [Amoretti et al., 2002] Amoretti, M., Amsler, C., Bonomi, G., Bouchta, A., Bowe, P., Carraro, C., Cesar, C. L., Charlton, M., Collier, M. J. T., Doser, M., Filippini, V., Fine, K. S., Fontana, A., Fujiwara, M. C., Funakoshi, R., Genova, P., Hangst, J. S., Hayano, R. S., Holzscheiter, M. H., Jørgensen, L. V., Lagomarsino, V., Landua, R., Lindelöf, D., Rizzini, E. L., Macri, M., Madsen, N., Manuzio, G., Marchesotti, M., Montagna, P., Pruys, H., Regenfus, C., Riedler, P., Rochet, J., Rotondi, A., Rouleau, G., Testera, G., Variola, A., Watson, T. L., and van der Werf, D. P. (2002). Production and detection of cold antihydrogen atoms. *Nature*, 419 :456–459.
- [Amoretti et al., 2004] Amoretti, M., Amsler, C., Bonomi, G., Bouchta, A., Bowe, P. D., Carraro, C., Charlton, M., Collier, M. J. T., Doser, M., Filippini, V., Fine, K. S., Fontana, A., Fujiwara, M. C., Funakoshi, R., Genova, P., Glauser, A., Grögler, D., Hangst, J., Hayano, R. S., Higaki, H., Holzscheiter, M. H., Joffrain, W., Jørgensen, L. V., Lagomarsino, V., Landua, R., Lenz Cesar, C., Lindelöf, D., Lodi-Rizzini, E., Macri, M., Madsen, N., Manuzio, D., Manuzio, G., Marchesotti, M., Montagna, P., Pruys, H., Regenfus, C., Riedler, P., Rochet, J., Rotondi, A., Rouleau, G., Testera, G., P. van der Werf, D., Variola, A., Watson, T. L., Yamazaki, T., and Yamazaki, Y. (2004). The ATHENA antihydrogen apparatus. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 518 :679–711.
- [Amoretti et al., 2006a] Amoretti, M., Amsler, C., Bonomi, G., Bowe, P. D., Canali, C., Carraro, C., Cesar, C. L., Charlton, M., Ejlsing, A. M., Fontana, A., Fujiwara, M. C., Funakoshi, R., Genova, P., Hangst, J. S., Hayano, R. S., Jørgensen, L. V., Kellerbauer, A., Lagomarsino, V., Lodi Rizzini, E., Macrì, M., Madsen, N., Manuzio, G., Mitchard, D., Montagna, P., Posada, L. G. C., Pruys, H., Regenfus, C., Rotondi, A., Telle, H. H., Testera, G., van der Werf, D. P., Variola, A., Venturelli, L., Yamazaki, Y., and Zurlo, N. (2006a). Search for Laser-Induced Formation of Antihydrogen Atoms. *Physical Review Letters*, 97(21) :213401–+.

- [Amoretti et al., 2006b] Amoretti, M., Canali, C., Carraro, C., Lagomarsino, V., Odino, A., Testera, G., and Zavatarelli, S. (2006b). Centrifugal separation of ions and an oppositely charged non-neutral plasma. *Physics of Plasmas*, 13 :2308–+.
- [Andresen et al., 2007] Andresen, G., Bertsche, W., Boston, A., Bowe, P. D., Cesar, C. L., Chapman, S., Charlton, M., Chartier, M., Deutsch, A., Fajans, J., Fujiwara, M. C., Funakoshi, R., Gill, D. R., Gomberoff, K., Hangst, J. S., Hayano, R. S., Hydomako, R., Jenkins, M. J., Jørgensen, L. V., Kurchaninov, L., Madsen, N., Nolan, P., Olchanski, K., Olin, A., Povilus, A., Robicheaux, F., Sarid, E., Silveira, D. M., Storey, J. W., Telle, H. H., Thompson, R. I., van der Werf, D. P., Wurtele, J. S., and Yamazaki, Y. (2007). Antimatter Plasmas in a Multipole Trap for Antihydrogen. *Physical Review Letters*, 98(2) :023402–+.
- [Andresen et al., 2008] Andresen, G. B., Bertsche, W., Boston, A., Bowe, P. D., Cesar, C. L., Chapman, S., Charlton, M., Chartier, M., Deutsch, A., Fajans, J., Fujiwara, M. C., Funakoshi, R., Gill, D. R., Gomberoff, K., Hangst, J. S., Hayano, R. S., Hydomako, R., Jenkins, M. J., Jørgensen, L. V., Kurchaninov, L., Madsen, N., Nolan, P., Olchanski, K., Olin, A., Page, R. D., Povilus, A., Robicheaux, F., Sarid, E., Silveira, D. M., Storey, J. W., Thompson, R. I., van der Werf, D. P., Wurtele, J. S., and Yamazaki, Y. (2008). FAST TRACK COMMUNICATION : Production of antihydrogen at reduced magnetic field for anti-atom trapping. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 41 :1001–+.
- [Aoki et al., 2006a] Aoki, J., Kiwamoto, Y., and Kawai, Y. (2006a). Determination of equilibrium density distribution and temperature of a pure electron plasma confined in a Penning trap. *Physics of Plasmas*, 13 :2109–+.
- [Aoki et al., 2006b] Aoki, T., Kato, T., Tanami, Y., and Nakamatsu, H. (2006b). δ -kick cooling using the Ioffe-Pritchard potential. *Phys. Rev. A*, 73(6) :063603–+.
- [Armour et al., 2008] Armour, E. A. G., Todd, A. C., Jonsell, S., Liu, Y., Gregory, M. R., and Plummer, M. (2008). The interaction of antihydrogen with simple atoms and molecules. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 266 :363–368.
- [Baur et al., 1996] Baur, G., Boero, G., Brauksiepe, S., Buzzo, A., Eyrich, W., Geyer, R., Grzonka, D., Hauke, J., Kilian, K., Lo Vetere, M., Macri, M., Moosburger, M., Nellen, R., Oelert, W., Passaggio, S., Pozzo, A., Röhrich, K., Sachs, K., Schepers, G., Sefzick, T., Simon, R. S., Stratmann, R., Stinzinger, F., and Wolke, M. (1996). Production of antihydrogen. *Physics Letters B*, 368 :251–258.
- [Beck et al., 1992] Beck, B. R., Fajans, J., and Malmberg, J. H. (1992). Measurement of collisional anisotropic temperature relaxation in a strongly magnetized pure electron plasma. *Physical Review Letters*, 68 :317–320.
- [Beck et al., 1996] Beck, B. R., Fajans, J., and Malmberg, J. H. (1996). Temperature and anisotropic-temperature relaxation measurements in cold, pure-electron plasmas. *Physics of Plasmas*, 3 :1250–1258.
- [Blanford et al., 1998] Blanford, G., Christian, D. C., Gollwitzer, K., Mandelkern, M., Munger, C. T., Schultz, J., and Zioulas, G. (1998). Observation of Atomic Antihydrogen. *Physical Review Letters*, 80 :3037–3040.
- [Blinov et al., 2006] Blinov, B. B., Kohn, Jr., R. N., Madsen, M. J., Maunz, P., Moehring, D. L., and Monroe, C. (2006). Broadband laser cooling of trapped atoms with ultrafast pulses. *Journal of the Optical Society of America B Optical Physics*, 23 :1170–1173.

- [Bluhm et al., 1999] Bluhm, R., Kostelecký, V. A., and Russell, N. (1999). CPT and Lorentz Tests in Hydrogen and Antihydrogen. *Physical Review Letters*, 82 :2254–2257.
- [Cabaret et al., 2000] Cabaret, L., Philip, J., and Camus, P. (2000). Transient frequency shift in a single-mode quasi-continuous diode-pumped Nd :YAG laser. *IEEE J. of Quantum Electronics*, 36 :323–1332.
- [Castelli et al., 2008] Castelli, F., Boscolo, I., Cialdi, S., Giammarchi, M. G., Villa, F., and Comparat, D. (2008). Efficient positronium excitation by two laser pulses for antihydrogen production. *ArXiv e-prints*, 804.
- [Charlton et al., 1994] Charlton, M., Eades, J., Horváth, D., Hughes, R. J., and Zimmermann, C. (1994). Antihydrogen physics. *Phys. Rep.*, 241 :65–117.
- [Chénais et al., 2007] Chénais, S., Forget, S., Philippet, L., and Castex, M.-C. (2007). Enhanced generation of vacuum-ultraviolet radiation by four-wave mixing in mercury using pulsed laser vaporization. *Applied Physics B : Lasers and Optics*, 89 :223–229.
- [Choi et al., 2008] Choi, J.-H., Knuffman, B., Zhang, X. H., Povilus, A. P., and Raithel, G. (2008). Trapping and Evolution Dynamics of Ultracold Two-Component Plasmas. *Physical Review Letters*, 100(17) :175002–+.
- [Cohen, 2006] Cohen, J. S. (2006). Reactive collisions of atomic antihydrogen with H, He⁺ and He. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 39 :1517–1536.
- [Colladay and Kostelecký, 1997] Colladay, D. and Kostelecký, V. A. (1997). CPT violation and the standard model. *Phys. Rev. D*, 55 :6760–6774.
- [Colladay and Kostelecký, 1998] Colladay, D. and Kostelecký, V. A. (1998). Lorentz-violating extension of the standard model. *Phys. Rev. D*, 58(11) :116002–+.
- [Comparat et al., 2006] Comparat, D., Fioretti, A., Stern, G., Dimova, E., Tolra, B. L., and Pillet, P. (2006). Optimized production of large Bose-Einstein condensates. *Physical Review A*, 73(4) :043410–+.
- [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. *MNRAS*, 361 :1227–1242.
- [Coppa and Ricci, 2002] Coppa, G. G. and Ricci, P. (2002). Noncollisional kinetic model for non-neutral plasmas in a Penning trap : General properties and stationary solutions. *Phys. Rev. E*, 66(4) :046409–+.
- [Crompvoets et al., 2002] Crompvoets, F. M., Jongma, R. T., Bethlem, H. L., van Roij, A. J., and Meijer, G. (2002). Longitudinal Focusing and Cooling of a Molecular Beam. *Physical Review Letters*, 89(9) :093004–+.
- [Dorman and Marangos, 1998] Dorman, C. and Marangos, J. P. (1998). Resonant sum-difference frequency mixing enhanced by electromagnetically induced transparency in krypton. *Phys. Rev. A*, 58 :4121–4132.
- [Driscoll et al., 2002] Driscoll, C. F., Anderegg, F., Dubin, D. H. E., Jin, D.-Z., Kriesel, J. M., Hollmann, E. M., and O’Neil, T. M. (2002). Shear reduction of collisional transport : Experiments and theory. *Physics of Plasmas*, 9 :1905–+.
- [Driscoll et al., 1988] Driscoll, C. F., Malmberg, J. H., and Fine, K. S. (1988). Observation of transport to thermal equilibrium in pure electron plasma. *Physical Review Letters*, 60 :1290–1293.

- [Dubin and O'neil, 1999] Dubin, D. H. and O'neil, T. M. (1999). Trapped nonneutral plasmas, liquids, and crystals (the thermal equilibrium states). *Reviews of Modern Physics*, 71 :87–172.
- [Eggleston et al., 1992] Eggleston, D. L., Driscoll, C. F., Beck, B. R., Hyatt, A. W., and Malmberg, J. H. (1992). Parallel energy analyzer for pure electron plasma devices. *Physics of Fluids B*, 4 :3432–3439.
- [Eikema et al., 2001] Eikema, K. S., Walz, J., and Hänsch, T. W. (2001). Continuous Coherent Lyman- α Excitation of Atomic Hydrogen. *Physical Review Letters*, 86 :5679–5682.
- [Fajans et al., 2008] Fajans, J., Madsen, N., and Robicheaux, F. (2008). Critical loss radius in a Penning trap subject to multipole fields. *Physics of Plasmas*, 15 :2108–+.
- [Flannery and Vrinceanu, 2003] Flannery, M. R. and Vrinceanu, D. (2003). Quantal and classical radiative cascade in Rydberg plasmas. *Phys. Rev. A*, 68(3) :030502–+.
- [Gabrielse, 2005] Gabrielse, G. (2005). Atoms made entirely of antimatter : Two methods produce slow antihydrogen. *ADVANCES IN ATOMIC, MOLECULAR, AND OPTICAL PHYSICS*, 50 :155.
- [Gabrielse et al., 2002a] Gabrielse, G., Bowden, N. S., Oxley, P., Speck, A., Storry, C. H., Tan, J. N., Wessels, M., Grzonka, D., Oelert, W., Schepers, G., Sefzick, T., Walz, J., Pittner, H., Hänsch, T. W., and Hessels, E. A. (2002a). Background-Free Observation of Cold Antihydrogen with Field-Ionization Analysis of Its States. *Physical Review Letters*, 89(21) :213401–+.
- [Gabrielse et al., 2002b] Gabrielse, G., Bowden, N. S., Oxley, P., Speck, A., Storry, C. H., Tan, J. N., Wessels, M., Grzonka, D., Oelert, W., Schepers, G., Sefzick, T., Walz, J., Pittner, H., Hänsch, T. W., and Hessels, E. A. (2002b). Driven Production of Cold Antihydrogen and the First Measured Distribution of Antihydrogen States. *Physical Review Letters*, 89(23) :233401–+.
- [Gabrielse et al., 2008] Gabrielse, G., Larochelle, P., Le Sage, D., Levitt, B., Kolthammer, W. S., McConnell, R., Richerme, P., Wrubel, J., Speck, A., George, M. C., Grzonka, D., Oelert, W., Sefzick, T., Zhang, Z., Carew, A., Comeau, D., Hessels, E. A., Storry, C. H., Weel, M., and Walz, J. (2008). Antihydrogen Production within a Penning-Ioffe Trap. *Physical Review Letters*, 100(11) :113001–+.
- [Gabrielse et al., 2004] Gabrielse, G., Speck, A., Storry, C. H., Lesage, D., Guise, N., Grzonka, D., Oelert, W., Schepers, G., Sefzick, T., Pittner, H., Walz, J., Hänsch, T. W., Comeau, D., and Hessels, E. A. (2004). First Measurement of the Velocity of Slow Antihydrogen Atoms. *Physical Review Letters*, 93(7) :073401–+.
- [Geller and Weisheit, 1997] Geller, D. K. and Weisheit, J. C. (1997). Classical electron-ion scattering in strongly magnetized plasmas. I. A generalized Coulomb logarithm. *Physics of Plasmas*, 4 :4258–4271.
- [Gidley et al., 1999] Gidley, D. W., Frieze, W. E., Dull, T. L., Yee, A. F., Ryan, E. T., and Ho, H.-M. (1999). Positronium annihilation in mesoporous thin films. *Phys. Rev. B*, 60 :5157–+.
- [Glinsky et al., 1992] Glinsky, M. E., O'Neil, T. M., Rosenbluth, M. N., Tsuruta, K., and Ichimaru, S. (1992). Collisional equipartition rate for a magnetized pure electron plasma. *Physics of Fluids B*, 4 :1156–1166.
- [Greaves and Surko, 1997] Greaves, R. G. and Surko, C. M. (1997). Antimatter plasmas and antihydrogen. *Physics of Plasmas*, 4 :1528–1543.

- [Hessels et al., 1998] Hessels, E. A., Homan, D. M., and Cavagnero, M. J. (1998). Two-stage Rydberg charge exchange : An efficient method for production of antihydrogen. *Phys. Rev. A*, 57 :1668–1671.
- [Holzscheiter and Charlton, 1999] Holzscheiter, M. H. and Charlton, M. (1999). Ultra-low energy antihydrogen . *Reports of Progress in Physics*, 62 :1–60.
- [Holzscheiter et al., 2004] Holzscheiter, M. H., Charlton, M., and Nieto, M. M. (2004). The route to ultra-low energy antihydrogen. *Physics Reports*, 402 :1–2.
- [Horbatsch et al., 2005a] Horbatsch, M. W., Hessels, E. A., and Horbatsch, M. (2005a). Classical calculation of radiative lifetimes of atomic hydrogen in a homogeneous magnetic field. *Phys. Rev. A*, 72(3) :033405–+.
- [Horbatsch et al., 2005b] Horbatsch, M. W., Hessels, E. A., and Horbatsch, M. (2005b). Classical calculation of the lifetimes and branching ratios for radiative decays of hydrogenic atoms. *Phys. Rev. A*, 71(2) :020501–+.
- [Hughes and Holzscheiter, 1991] Hughes, R. J. and Holzscheiter, M. H. (1991). Constraints on the gravitational properties of antiprotons and positrons from cyclotron-frequency measurements. *Physical Review Letters*, 66 :854–857.
- [Hyatt et al., 1987] Hyatt, A. W., Driscoll, C. F., and Malmberg, J. H. (1987). Measurement of the anisotropic temperature relaxation rate in a pure electron plasma. *Physical Review Letters*, 59 :2975–2978.
- [Jonsell, 2008] Jonsell, S. (2008). Rearrangement in antihydrogen atom scattering. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 266 :369–373.
- [Jonsell et al., 2004] Jonsell, S., Saenz, A., Froelich, P., Zygelman, B., and Dalgarno, A. (2004). Hydrogen antihydrogen scattering in the Born Oppenheimer approximation. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 37 :1195–1202.
- [Kabantsev et al., 2003] Kabantsev, A. A., Yu, J. H., Lynch, R. B., and Driscoll, C. F. (2003). Trapped particles and asymmetry-induced transport. *Physics of Plasmas*, 10 :1628–+.
- [Kellerbauer and Walz, 2006] Kellerbauer, A. and Walz, J. (2006). A novel cooling scheme for antiprotons. *New Journal of Physics*, 8 :45–+.
- [Kielpinski, 2006] Kielpinski, D. (2006). Laser cooling of atoms and molecules with ultrafast pulses. *Phys. Rev. A*, 73(6) :063407–+.
- [Kinugawa et al., 2001] Kinugawa, T., Currell, F. J., and Ohtani, S. (2001). Pulsed Evaporative Cooling of Ion Cloud in an Electron Beam Ion Trap. *Physica Scripta Volume T*, 92 :102–104.
- [Koryagin, 2000] Koryagin, S. A. (2000). Electron-Ion Collision Integral in a Strong Magnetic Field. *Journal of Experimental and Theoretical Physics*, 90 :741–752.
- [Kostelecký, 2004] Kostelecký, V. A. (2004). Gravity, Lorentz violation, and the standard model. *Phys. Rev. D*, 69(10) :105009–+.
- [Kuroda et al., 2005] Kuroda, N., Torii, H. A., Franzen, K. Y., Wang, Z., Yoneda, S., Inoue, M., Hori, M., Juhász, B., Horváth, D., Higaki, H., Mohri, A., Eades, J., Komaki, K., and Yamazaki, Y. (2005). Confinement of a Large Number of Antiprotons and Production of an Ultraslow Antiproton Beam. *Physical Review Letters*, 94(2) :023401–+.
- [Lagomarsino et al., 1991] Lagomarsino, V., Manuzio, G., and Testera, G. (1991). Stochastic cooling of the radial motion in a Penning trap. *Phys. Rev. A*, 44 :5173–5177.

- [Lehnert, 2006] Lehnert, R. (2006). CPT- and Lorentz-symmetry breaking : a review. *ArXiv High Energy Physics - Phenomenology e-prints*.
- [Li et al., 1991] Li, G. Z., Poggiani, R., Testera, G., and Werth, G. (1991). Adiabatic cooling of ions in the Penning trap. *Zeitschrift fur Physik D Atoms Molecules Clusters*, 22 :375–+.
- [Li et al., 1993] Li, G.-Z., Poggiani, R., Testera, G., and Werth, G. (1993). Adiabatic cooling of antiprotons in a Penning trap. *Hyperfine Interactions*, 76 :281–284.
- [Lyman Spitzer, 1987] Lyman Spitzer, J. (1987). *Dynamical evolution of globular clusters*. Princeton University Press, Princeton, New Jersey.
- [MacAdam and Horsdal-Pedersen, 2003] MacAdam, K. B. and Horsdal-Pedersen, E. (2003). TOPICAL REVIEW : Charge transfer from coherent elliptic states. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 36 :167–+.
- [Madsen et al., 2005] Madsen, N., Amoretti, M., Amsler, C., Bonomi, G., Bowe, P. D., Carraro, C., Cesar, C. L., Charlton, M., Doser, M., Fontana, A., Fujiwara, M. C., Funakoshi, R., Genova, P., Hangst, J. S., Hayano, R. S., Jørgensen, L. V., Kellerbauer, A., Lagomarsino, V., Landua, R., Lodi-Rizzini, E., Macri, M., Mitchard, D., Montagna, P., Pruys, H., Regenfus, C., Rotondi, A., Testera, G., Variola, A., Venturelli, L., van der Werf, D. P., Yamazaki, Y., and Zurlo, N. (2005). Spatial Distribution of Cold Antihydrogen Formation. *Physical Review Letters*, 94(3) :033403–+.
- [Main et al., 1998] Main, J., Schwacke, M., and Wunner, G. (1998). Hydrogen atom in combined electric and magnetic fields with arbitrary mutual orientations. *Phys. Rev. A*, 57(2) :1149–1157.
- [Mills and Leventhal, 2002] Mills, A. P. and Leventhal, M. (2002). Can we measure the gravitational free fall of cold Rydberg state positronium? *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 192 :102–106.
- [Mills and Wilson, 1982] Mills, Jr., A. P. and Wilson, R. J. (1982). Transmission of 1 - 6-keV positrons through thin metal films. *Phys. Rev. A*, 26 :490–500.
- [Müller et al., 2004] Müller, H., Herrmann, S., Saenz, A., Peters, A., and Lämmerzahl, C. (2004). Tests of Lorentz invariance using hydrogen molecules. *Physical Review D*, 70(7) :076004–+.
- [Nersisyan, 2006] Nersisyan, H. B. (2006). Electron-ion binary collisions in the presence of a magnetic field. *ArXiv Physics e-prints*.
- [Nersisyan et al., 2003] Nersisyan, H. B., Zwicknagel, G., and Toepffer, C. (2003). Energy loss of ions in a magnetized plasma : Conformity between linear response and binary collision treatments. *Phys. Rev. E*, 67(2) :026411–+.
- [Nieto et al., 2003] Nieto, M. M., Holzscheiter, M. H., and Phillips, T. J. (2003). Dense anti-hydrogen : its production and storage to envision antimatter propulsion. *Journal of Optics B : Quantum and Semiclassical Optics*, 5 :547–+.
- [Oberst et al., 2006] Oberst, M., Klein, J., and Halfmann, T. (2006). Enhanced four-wave mixing in mercury isotopes, prepared by stark-chirped rapid adiabatic passage. *Optics Communications*, 264 :463–470.
- [Oberthaler et al., 1996] Oberthaler, M. K., Bernert, S., Rasel, E. M., Schmiedmayer, J., and Zeilinger, A. (1996). Inertial sensing with classical atomic beams. *Phys. Rev. A*, 54(4) :3165–3176.

- [Pattanayak et al., 2005] Pattanayak, A. K., Brooks, D. W., de La Fuente, A., Uricchio, L., Holby, E., Krawisz, D., and Silva, J. I. (2005). Coarse-grained entropy decrease and phase-space focusing in Hamiltonian dynamics. *Phys. Rev. A*, 72(1) :013406–+.
- [Penetrante et al., 1991] Penetrante, B. M., Bardsley, J. N., Levine, M. A., Knapp, D. A., and Marrs, R. E. (1991). Evaporative cooling of highly charged dysprosium ions in an enhanced electron-beam ion trap. *Phys. Rev. A*, 43 :4873–4882.
- [Pohl et al., 2006] Pohl, T., Sadeghpour, H. R., Nagata, Y., and Yamazaki, Y. (2006). Cooling by Spontaneous Decay of Highly Excited Antihydrogen Atoms in Magnetic Traps. *Physical Review Letters*, 97(21) :213001–+.
- [Robicheaux, 2004] Robicheaux, F. (2004). Simulations of antihydrogen formation. *Phys. Rev. A*, 70(2) :022510–+.
- [Schiff, 1958] Schiff, L. I. (1958). Sign of the Gravitational Mass of a Positron. *Physical Review Letters*, 1 :254–255.
- [Schmidt et al., 2003] Schmidt, P. O., Hensler, S., Werner, J., Binhammer, T., Görlitz, A., and Pfau, T. (2003). Doppler cooling of an optically dense cloud of magnetically trapped atoms. *Journal of the Optical Society of America B Optical Physics*, 20 :960–967.
- [Setija et al., 1993] Setija, I. D., Werij, H. G. C., Luiten, O. J., Reynolds, M. W., Hijmans, T. W., and Walraven, J. T. M. (1993). Optical cooling of atomic hydrogen in a magnetic trap. *Physical Review Letters*, 70 :2257–2260.
- [Sharipov et al., 2007] Sharipov, V., Labzowsky, L. N., and Plunien, G. (2007). Excited States of the Helium-Antihydrogen System. *Physical Review Letters*, 98(10) :103001–+.
- [Shore, 2005] Shore, G. M. (2005). Strong equivalence, Lorentz and CPT violation, antihydrogen spectroscopy and gamma-ray burst polarimetry. *Nuclear Physics B*, 717 :86–118.
- [Sinha and Ghosh, 2005a] Sinha, P. K. and Ghosh, A. S. (2005a). Hbar -He elastic scattering at low energies : Contribution of nonzero partial waves. *Phys. Rev. A*, 71(1) :012505–+.
- [Sinha and Ghosh, 2005b] Sinha, P. K. and Ghosh, A. S. (2005b). Hbar -Li scattering and enhanced Hbar cooling. *Phys. Rev. A*, 72(5) :052509–+.
- [Staples, 1992] Staples, J. W. (1992). RFQ's : An Introduction. *AIP Conf. Proc.*, 249 :1483–1532.
- [Storry et al., 2004] Storry, C. H., Speck, A., Sage, D. L., Guise, N., Gabrielse, G., Grzonka, D., Oelert, W., Schepers, G., Sefzick, T., Pittner, H., Herrmann, M., Walz, J., Hänsch, T. W., Comeau, D., and Hessels, E. A. (2004). First Laser-Controlled Antihydrogen Production. *Physical Review Letters*, 93(26) :263401–+.
- [Taylor et al., 2006] Taylor, C. L., Zhang, J., and Robicheaux, F. (2006). Cooling of Rydberg $\bar{\text{H}}$ during radiative cascade. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 39 :4945–4959.
- [Testera et al., 2008] Testera, G., Belov, A. S., Bonomi, G., Boscolo, I., Brambilla, N., Brusa, R. S., Byakov, V. M., Cabaret, L., Canali, C., Carraro, C., Castelli, F., Cialdi, S., de Combarieu, M., Comparat, D., Consolati, G., Djourellov, N., Doser, M., Drobychev, G., Dupasquier, A., Fabris, D., Ferragut, R., Ferrari, G., Fischer, A., Fontana, A., Forget, P., Formaro, L., Lunardon, M., Gervasini, A., Giammarchi, M. G., Gninenko, S. N., Gribakin, G., Heyne, R., Hogan, S. D., Kellerbauer, A., Krasnicky, D., Lagomarsino, V., Manuzio, G., Mariazzi, S., Matveev, V. A., Merkt, F., Moretto, S., Morhard, C., Nebbia, G., Nedelec, P., Oberthaler,

- M. K., Pari, P., Petracek, V., Prevedelli, M., Al-Qaradawi, I. Y., Quasso, F., Rohne, O., Pesente, S., Rotondi, A., Stapnes, S., Sillou, D., Stepanov, S. V., Stroke, H. H., Tino, G., Vairo, A., Viesti, G., Walters, H., Warring, U., Zavatarelli, S., Zenoni, A., and Zvezhinskij, D. S. (2008). Formation Of A Cold Antihydrogen Beam in AEGIS For Gravity Measurements. *ArXiv e-prints*, 805.
- [Toepffer, 2002] Toepffer, C. (2002). Scattering of magnetized electrons by ions. *Phys. Rev. A*, 66(2) :022714—+.
- [Topçu and Robicheaux, 2006] Topçu, T. and Robicheaux, F. (2006). Radiative cascade of highly excited hydrogen atoms in strong magnetic fields. *Phys. Rev. A*, 73(4) :043405—+.
- [Uedono et al., 1994] Uedono, A., Wei, L., Tanigawa, S., Suzuki, R., Ohgaki, H., Mikado, T., Kawano, T., and Ohji, Y. (1994). Positronium formation in SiO₂ films grown on Si substrates studied by monoenergetic positron beams. *Journal of Applied Physics*, 75 :3822–3828.
- [Vallery et al., 2003] Vallery, R. S., Zitzewitz, P. W., and Gidley, D. W. (2003). Resolution of the orthopositronium-lifetime puzzle. *Phys. Rev. Lett.*, 90(20) :203402.
- [van de Meerakker et al., 2001] van de Meerakker, S., Jongma, R., Bethlem, H., and Meijer, G. (2001). Accumulating NH radicals in a magnetic trap. *Phys. Rev. A*, 64 :041401.
- [Vanhaecke et al., 2005] Vanhaecke, N., Comparat, D., and Pillet, P. (2005). Rydberg decelerator using a travelling electric-field gradient. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 38 :409—+.
- [Vliegen and Merkt, 2006] Vliegen, E. and Merkt, F. (2006). LETTER TO THE EDITOR : Stark deceleration of hydrogen atoms. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 39 :L241–L247.
- [Vliegen et al., 2004] Vliegen, E., Wörner, H. J., Softley, T. P., and Merkt, F. (2004). Non-hydrogenic Effects in the Deceleration of Rydberg Atoms in Inhomogeneous Electric Fields. *Physical Review Letters*, 92(3) :033005—+.
- [Walz et al., 2003] Walz, J., Fendel, P., Herrmann, M., König, M., Pahl, A., Pittner, H., Schatz, B., and Hänsch, T. W. (2003). Towards laser spectroscopy of antihydrogen . *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 36 :649–654.
- [Walz et al., 1995] Walz, J., Ross, S. B., Zimmermann, C., Ricci, L., Prevedelli, M., and Hänsch, T. W. (1995). Combined Trap with the Potential for Antihydrogen Production. *Physical Review Letters*, 75 :3257–3260.
- [Wetzels et al., 2006] Wetzels, A., Gürtler, A., Noordam, L. D., and Robicheaux, F. (2006). Far-infrared Rydberg-Rydberg transitions in a magnetic field : Deexcitation of antihydrogen atoms. *Phys. Rev. A*, 73(6) :062507—+.
- [Zehnlé and Garreau, 2001] Zehnlé, V. and Garreau, J. C. (2001). Continuous-wave Doppler cooling of hydrogen atoms with two-photon transitions. *Phys. Rev. A*, 63(2) :021402—+.
- [Zehnlé and Garreau, 2003] Zehnlé, V. and Garreau, J. C. (2003). Doppler cooling to the recoil limit by means of sharp atomic transitions with controlled quenching. *Journal of the Optical Society of America B Optical Physics*, 20 :931–936.
- [Zurlo et al., 2006] Zurlo, N., Amoretti, M., Amsler, C., Bonomi, G., Carraro, C., Cesar, C. L., Charlton, M., Doser, M., Fontana, A., Funakoshi, R., Genova, P., Hayano, R. S., Jørgensen, L. V., Kellerbauer, A., Lagomarsino, V., Landua, R., Rizzini, E. L., Macrì, M., Madsen, N., Manuzio, G., Mitchard, D., Montagna, P., Posada, L. G., Pruys, H., Regenfus, C., Rotondi,

- A., Testera, G., der Werf, D. P. V., Variola, A., Venturelli, L., and Yamazaki, Y. (2006). Evidence For The Production Of Slow Antiprotonic Hydrogen In Vacuum. *Physical Review Letters*, 97(15) :153401–+.
- [Zygelman, 2005] Zygelman, B. (2005). Recombination and cascade of Rydberg antihydrogen. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 38 :387–+.
- [Zygelman et al., 2004] Zygelman, B., Saenz, A., Froelich, P., and Jonsell, S. (2004). Cold collisions of atomic hydrogen with antihydrogen atoms : An optical potential approach. *Phys. Rev. A*, 69(4) :042715–+.

Chapitre 8

Photoassociation et molécules froides

8.1 Introduction et contexte international

Les avancées importantes obtenues dans le domaine des atomes froids ne sont plus à présenter : études fondamentales des propriétés des gaz à basse température (effet bosonique type BEC, effet fermionique type BCS, effet des interactions comme dans d'un gaz dipolaire, effet de la dimensionalité du confinement, ...), manipulations contrôlées de ces gaz (piège magnétique, dipolaire, en réseau, interféromètre, ...), mesures de précision (horloge atomique, accéléromètre ou gravimètre), ... J'ai présenté précédemment la richesse qu'apporte le lien avec des domaines connexes comme la réalisation de faisceaux d'ions ou d'électrons froids ou la formation d'atomes d'antihydrogène froids.

Je voudrais m'attacher plus particulièrement à décrire un autre domaine connexe qui est celui des molécules froides et plus particulièrement de leur formation par photoassociation. Malgré la richesse du sujet, j'ai choisi de présenter ces deux thématiques dans un chapitre unique tant elles sont intimement imbriquées. J'ai toutefois essayé de séparer ce qui appartient plus spécifiquement à la technique de photoassociation et ce qui appartient plus spécifiquement à la physique des molécules froides.

L'introduction du domaine de la photoassociation fut faite au cours de ma thèse et je ne reprendrai ici que les éléments essentiels en ne détaillant que le sujet plus récent lié aux molécules froides.

8.1.1 La photoassociation : spectroscopie et collision

Photoassociation d'atomes froids

La réalisation de spectroscopie moléculaire à très haute résolution par photoassociation est une application intéressante des atomes froids basée sur une idée suggérée par H.R. Thorsheim, J. Weiner et P.S. Julienne en 1987 [Thorsheim et al., 1987]. Il s'agit d'une collision froide assistée par laser : deux atomes libres dans l'état fondamental absorbent, durant leur collision, de manière résonnante, un photon d'un faisceau laser, ils forment alors une molécule électroniquement excitée dans un état de rotation-vibration bien défini. Je renvoie à la récente revue du groupe du NIST [Jones et al., 2006] pour plus de détails.

La photoassociation d'atomes froids fut réalisée en 1993 par les équipes de Paul Lett au NIST sur le sodium [Lett et al., 1993] et de Dan Heinzen au Texas [Miller et al., 1993]. De très nombreuses équipes réalisèrent ensuite cette photoassociation d'atomes froids (voir la revue

[Stwalley and Wang, 1999]). En 1995, dans les groupes de R. Hulet sur le Li [McAlexander et al., 1995], P. Gould et W. Stwalley sur le K en 1996 [Wang et al., 1996] suivis par le nôtre sur le Cs en 1997 avec en bonus la formation de molécules froides (mon résultat principal de thèse). L'originalité de notre expérience de photoassociation fut dans le mode de détection, basé sur la photoionisation des molécules (à l'aide d'un laser à colorant pompé par un laser Nd :YAG fonctionnant en impulsion) et non plus basé sur les seules pertes d'atomes du piège.

La photoassociation fut en fait réalisée sur presque tous les atomes qui ont été refroidis par laser, dans les groupes de : J. Walraven sur H en 1999 [Mosk et al., 1999], M. Leduc et C. Cohen-Tannoudji sur He en 2003 [Léonard et al., 2003], E. Tiemann sur le Ca en 2003 [Degenhardt et al., 2003], Y. Takahashi sur le Yb en 2004 et 2006 (sur une autre transition) [Takasu et al., 2004, Tojo et al., 2006], T. Killian sur le Sr en 2005 [Mickelson et al., 2005, Yasuda et al., 2006]. La photoassociation a aussi été réalisée sur quelques couples d'atomes : en 2001 $^6\text{Li}^7\text{Li}$ par le groupe de Klaus Zimmermann, en 2004 KRb par les groupes de P. Gould et W. Stwalley et le groupe de V. Bagnato et L. Marcassa [Wang et al., 2004, Mancini et al., 2004] et RbCs par David DeMille [Kerman et al., 2004a, Kerman et al., 2004b], NaCs par le groupe de Nicolas Bigelow [Haimberger et al., 2004] et en 2006 LiCs dans le groupe de Matthias Weidemüller [Kraft et al., 2006]. Je mentionne ici le fait que l'attribution des spectres de photoassociation s'effectue souvent en utilisant une loi semi-classique, dit de LeRoy-Bernstein, décrivant la progression vibrationnelle en fonction de la forme asymptotique du potentiel. En 2004 j'ai publié une amélioration, détaillée ci-après, de cette loi qui permet d'augmenter grandement sa fiabilité [Comparat, 2004].

Application de la photoassociation

La réaction de photoassociation apporte des informations spectroscopiques originales, donnant des renseignements à la fois sur la structure des atomes et des molécules. Elle permet de déterminer de façon précise et sans règles de sélections, contrairement à la spectroscopie moléculaire classique, les parties asymptotiques des potentiels moléculaires. Elle permet par exemple de déterminer de façon précise les durées de vie radiatives atomiques [McAlexander et al., 1996, Amiot et al., 2002, Bouloufa et al., 2007] ou les paramètres collisionnels comme la longueur de diffusion [Drag et al., 2000]. En effet, les spectres de photoassociation sont un excellent moyen de sonder l'amplitude de la fonction d'onde radiale des deux atomes en collision en fonction de leur distance internucléaire. Les données expérimentales de photoassociation permettent ainsi d'appréhender les processus collisionnels à température ultra-froide qui ne sont souvent régis que par des processus de résonances ou des processus non classiques comme l'effet tunnel ou des effets d'interférences (voir l'article de revue [Weiner et al., 1999]).

Un des aspects les plus intéressants est que, pour des températures si basses, la dynamique collisionnelle est très lente et peut donc facilement être modifiée expérimentalement, par exemple en utilisant une interaction avec un faisceau laser sur un temps plus court que celui de la vibration moléculaire, de la collision, ou même de l'émission spontanée. De très nombreuses recherches concernant la photoassociation avec des impulsions lasers courtes ont ainsi vu le jour tant du point de vue expérimental que du point de vue théorique. En 1996 Dan Heinzen étudia le temps de passage tunnel d'une résonance de forme à l'aide d'une photoassociation microseconde [Boesten et al., 1996]. Depuis 1998 l'équipe de Phil Gould étudia [Gensemer and Gould, 1998] (ce que nous fîmes en 1999 [Fioretti et al., 1999]) puis contrôla [Wright et al., 2005, Wright et al., 2007] le flux collisionnel d'atomes, à l'aide d'impulsions tronquées dans le domaine nanoseconde. Le domaine picoseconde fut étudié de façon similaire

expérimentalement par le groupe de Paul Lett [Fatemi et al., 2001] en attendant le domaine attoseconde [Rivière et al., 2008]).

Photoassociation résolue en temps (femtoseconde)

Le domaine intermédiaire, femtoseconde est sans nul doute le domaine qui est à l'heure actuelle le plus étudié. Il est évident que cet engouement fait suite aux développements spectaculaires liés à l'apparition des lasers femtosecondes qui ont permis le développement d'une nouvelle discipline aux applications nombreuses, allant de la manipulation des états internes d'un atome [Weinacht et al., 1999] ou d'une molécule [Bardeen, 1997] à celle de la structure de macromolécules biologiques, en passant par l'étude de dynamiques de molécules, d'agrégats plus ou moins complexes, à la production d'impulsions THz, ... [Sharan and Goswami, 2002]. Un des domaines actuellement les plus actifs est le contrôle de systèmes par le biais de leur interaction avec une ou plusieurs impulsions femtosecondes mises en forme [Assion et al., 1998, Weiner, 2000]. Concernant l'apport des lasers femtosecondes à la photoassociation, je commencerai par mentionner l'expérience (méconnue) réalisée en 1995 par Marcos Dantus, de la photoassociation du mercure (à température ambiante) à l'aide d'un laser femtoseconde [Marvet and Dantus, 1995]. Il fallut attendre 2008 pour que le groupe de Matthias Weidemüller démontre une photoassociation avec des atomes froids en utilisant un laser femtoseconde [Salzmann et al., 2008].

En mariant les techniques de contrôle femtosecondes à la photoassociation, de nombreux travaux théoriques furent effectués, notamment au laboratoire Aimé Cotton autour de Françoise Masnou et dans les groupes de Christiane Koch ou de Ronnie Kosloff. Ces recherches ont plus récemment cherché à influencer le processus de photoassociation pour le rendre plus efficace notamment en vue de la formation de molécules froides [Koch et al., 2004, Koch et al., 2006]. Les premières expériences dans le groupe de Ian Walmsley à Oxford [Brown et al., 2006] ou dans celui de Matthias Weidemüller en collaboration avec Lüdger Wöste [Salzmann et al., 2006] ont montré qu'au lieu de former des molécules froides, celles-ci changeaient d'état après l'absorption de photons issus de ce laser ce qui amenait à une diminution du signal de molécules et non à une augmentation comme attendu ! En 2006, je choisis une approche différente consistant à utiliser le laser femtoseconde, non pas pour effectuer la photoassociation, mais pour manipuler l'état interne des molécules déjà formées. Le résultat fut, en 2008, la première réalisation efficace d'un échantillon de molécules sans vibration à l'aide d'un processus général de refroidissement de la vibration [Viteau et al., 2008]. Je reviendrai évidemment sur ce résultat important que nous venons d'obtenir, dans la partie consacrée aux molécules froides.

Comment augmenter l'efficacité de la photoassociation ?

Si la photoassociation est efficace même dans des MOT, i.e. à relativement haute température et basse densité (comparée aux BEC), elle ne peut, a priori, que sonder des parties longues distances des potentiels moléculaires. Notons toutefois qu'une expérience récente, dans le groupe de Matthias Weidemüller, a réussi à utiliser la photoassociation (pour former des molécules froides de LiCs) dans des parties courtes distances des potentiels moléculaires mais le rendement reste faible [Deiglmayr et al., 2008].

Afin de palier à cet inconvénient plusieurs méthodes ont vu le jour.

La plus simple, que nous avons mise à jour en 2001 [Dion et al., 2001], consiste à choisir des potentiels moléculaires qui, par leurs propriétés même, ont des couplages permettant d'étudier les distances internucléaires intermédiaires (typiquement entre 15 et 25 a_0).

Une autre méthode intéressante est la photoassociation, dite à deux couleurs, où le premier photon de photoassociation permet de créer des états à grande distance, qui sont ensuite couplés avec des états à plus petite distance, à l'aide d'un second laser. Cette technique a permis dès 1997 au groupe de Storrs (P. Gould), puis en 1999 à celui de Rochester (N. Bigelow), [Wang et al., 1997, Shaffer et al., 1999] de réaliser une spectroscopie à distance intermédiaire. Mais l'intérêt principal réside dans la possibilité d'avoir des informations spectroscopiques sur l'état fondamental en utilisant le second laser pour sonder les niveaux moléculaires proches de la limite de dissociation, ce qui permet par exemple d'extraire une valeur précise de la longueur de diffusion. Cette technique fut par exemple réalisée par D. Heizen en 1997 [Tsai et al., 1997] sur quelques niveaux.

Pour notre part ceci fut réalisé peu après le retour de mon stage post-doctoral en 2002, avec une étude détaillée des profils de raies de type profil de Fano [Lisdar et al., 2002]. Cette étude nous permit de préciser un travail réalisé en 2001 [Tolra et al., 2001] et qui concerne l'utilisation de ce processus stimulé pour former des molécules froides. Bien que cela soit détaillé dans la section "molécules froides" je mentionne ici que l'expérience pionnière, pour la formation de molécules par ce processus à deux photons, est celle du groupe du Texas de Dan Heizen dès 2000 effectuée dans un BEC [Wynar et al., 2000] (au début de mon post-doc [Verhaar et al., 2001]). Il est en fait très difficile de former efficacement des molécules par cette technique. En effet, à cause du fait que l'état final n'a pas de perte (durée de vie longue), les pertes se font donc via l'état intermédiaire par émission spontanée. Comme nous-mêmes, le groupe de R. Grimm a ensuite étudié l'effet du décalage laser et a confirmé ce fait [Winkler et al., 2005]. Cette technique à deux photons est par contre très efficace pour transférer des molécules déjà formées dans d'autres niveaux de vibration [Winkler et al., 2007].

Une technique consiste à améliorer le rendement de la photoassociation afin d'atteindre des distances internucléaires plus petites. En abaissant la température et en augmentant la densité il est possible d'augmenter le rendement de la photoassociation. De nombreuses études, que je ne détaille pas ici, hormis celle déjà mentionnée de D. Heizen [Wynar et al., 2000], ont été effectuées dans des condensats et ont montré que le taux de photoassociation est bien augmenté comparé au taux observé dans les pièges magnéto-optiques. Par exemple, le groupe du NIST compara un calcul naïf classique et un calcul quantique et montra que seul ce dernier permet de rendre compte du résultat expérimental [McKenzie et al., 2002]. Ces études font partie de nombreuses études cherchant à comprendre la dynamique ou le régime de photoassociation en champ fort [Gasenzer, 2004b, Gasenzer, 2004a, Gomez et al., 2007]. Afin d'augmenter le taux de photoassociation il suffit aussi d'augmenter la probabilité de présence des paires d'atomes à courtes distances. Cette modification peut se faire via une interaction laser, et est alors parfois appelée résonance de Feshbach optique. L'étude de telles résonances de Feshbach optique (ou par photoassociation) fut faite notamment par le groupe du NIST [Fatemi et al., 2000] puis dans celui d'Innsbruck [Thalhammer et al., 2005, Köhler et al., 2006], mais là aussi les pertes induites par laser ne permettent pas d'arriver à une modification substantielle des propriétés collisionnelles des atomes. L'utilisation des résonances de Feshbach induites par champ magnétique [Mies et al., 2000, Köhler et al., 2006] est particulièrement attrayante. En effet elles permettent d'augmenter notablement le taux de photoassociation comme observé par Dan Heizen en 1998 [Courteille et al., 1998] et plus récemment par R. Hulet en 2008 dans un condensat [Junker et al., 2008]. Cette technique, que je décrirai un peu plus en détail ci-après, nous a aussi permis en 2003 de sonder grâce à la photoassociation la dépendance radiale de la fonction d'onde de collision et aussi de modifier le taux de formation de molécules froides

[Laburthe Tolra et al., 2003].

Photoassociation vers l'état fondamental

Je voudrais mentionner pour finir l'extension des techniques de photoassociation à des transitions autres que dipolaires électriques avec des longueurs d'onde optiques. Je pense notamment à la photoassociation micro-onde ou radiofréquence directement vers des états électroniques fondamentaux. C'est en quelque sorte l'inverse d'un processus de photodissociation, utilisé pour transformer les molécules en atomes afin de détecter celles-ci (voir les travaux de S. Chu, W. Ketterle et R. Hulet [Chin et al., 2003, Mukaiyama et al., 2004, Partridge et al., 2005]). Le balayage d'un champ magnétique pour former des molécules froides, comme réalisé de façon cohérente dans un condensat, en 2002 par le groupe du JILA de C. Weiman [Donley et al., 2002, Thompson et al., 2005], peut ainsi être interprété comme une photoassociation magnétique [Góral et al., 2004, Julienne et al., 2004, Hanna et al., 2007, Lang et al., 2008]. Cette photoassociation R.F. ou micro-onde fut la première qui forma des molécules froides hétéro-nucléaires (KRb) stables [Ospelkaus et al., 2006]. Elle peut aussi s'avérer intéressante pour former des molécules directement dans l'état électronique fondamental [Kotochigova, 2007].

Mentionnons enfin la photoassociation Raman de paires d'atomes isolés dans des réseaux optiques réalisée en 2004 par le groupe de Immanuel Bloch [Rom et al., 2004] qui permet de former des molécules froides qui sont alors isolées l'une de l'autre et donc insensibles à de possibles collisions [Thalhammer et al., 2006].

8.1.2 Les molécules (ultra-)froides

Le domaine ouvert par les molécules froides (au sens de lentes dans le référentiel du laboratoire) est très vaste et je ne vais que l'esquisser ici en me focalisant quasi exclusivement sur les développements expérimentaux. Je renvoie en particulier aux articles de revues récents comme [Bethlem and Meijer, 2003, Doyle et al., 2004, Krems, 2005, Dulieu et al., 2006, Hutson and Soldan, 2006, Krems, 2008]. On pourra aussi se référer aux articles plus spécialisés concernant la formation de molécules froides à partir de photoassociation [Pillet et al., 2003, Dulieu and Masnou-Seeuws, 2003, Jones et al., 2006] ou ceux concernant la formation de molécules froides à partir d'atomes froids à l'aide de résonance de Feshbach [Köhler et al., 2006]. Je renvoie aussi évidemment au livre "Cold Molecules : Creation and Applications", publié par Francis & Taylor et qui devrait paraître très bientôt.

Je décrirai au fil des pages suivantes les applications des molécules froides, mais je mentionne tout de suite que ces recherches sont motivées par : l'étude des gaz quantiques moléculaires (condensat de Bose-Einstein, gaz de Fermi, gaz dipolaire), le contrôle cohérent de la formation de molécules, les liens avec la physique des spins [Pupillo et al., 2008], l'optique moléculaire ou la chimie ultra-froide, la réalisation d'un "laser à molécules", d'un interféromètre moléculaire, d'un ordinateur quantique avec des molécules polaires [DeMille, 2002]. L'étude des collisions froides (atome/molécule), la spectroscopie à très haute résolution, les applications métrologiques, la mesure des variations des constantes fondamentales [Flambaum, 2008, Flambaum and Dzuba, 2008], la mesure du dipôle de l'électron, des tests de physique fondamentale [Tarbutt et al., 2008], l'étude de la chiralité ...

En utilisant des molécules froides, de nombreuses études ont déjà pu voir le jour : mesures précises de transitions à quelques Hz près sur ND₃ [van Veldhoven et al., 2004] ou sur OH [Hudson et al., 2006a] (ce qui comparé à des mesures astrophysiques, i.e. provenant du passé,

a des implications sur la variation au cours du temps de la constante de structure fine), mesure de temps de vie radiatif (sur OH ou NH) [van de Meerakker et al., 2005b], mesure des effets du rayonnement du corps noir limitant la durée de vie de piégeage ou la précision des mesures [Vanhaecke and Dulieu, 2007].

Je voudrais aussi mentionner ici que la réalisation de molécules froides peut aussi amener (par dissociation) à la formation d'espèce atomique qu'il est difficile de refroidir par laser [Bucicov et al., 2008]. De façon symétrique les techniques utilisées pour les atomes sont souvent applicables aux molécules, que ce soit pour des propositions théorique comme le "Cavity cooling" [Maunz et al., 2004, Morigi et al., 2007, Lev et al., 2008], ou pour des résultats expérimentaux comme les collisions avec un rotor [Narevicius et al., 2007a] ou la barrière sélective en vitesse [Thorn et al., 2008, Price et al., 2008].

8.1.3 Molécules froides formées à partir d'atomes froids

Le nombre de degrés de liberté internes d'une molécule est beaucoup plus important que celui d'un atome, ce qui rend pour l'instant impossible le refroidissement laser de molécules [Bahns et al., 1996]. Le thème de recherche sur les molécules (ultra-)froides ($T < 1$ mK) n'a donc été lancé que tardivement par rapport au domaine des atomes froids. En partant d'atomes froids en collision il faut une interaction extérieure pour enlever de l'énergie à la paire d'atomes et la transformer en molécule. Cette interaction peut être par exemple électrique [Marinescu and You, 1998, Krems, 2006] ou magnétique (résonance de Feshbach), électromagnétique (photoassociation), ou être véhiculée par un troisième corps.

Photoassociation

La première mise en évidence de la formation de molécules froides utilisa l'interaction électromagnétique (laser) et eut lieu au cours de ma thèse à la fin de l'année 1997. Démontrée initialement pour le dimère de césium, cette technique de formation de molécules froides par photoassociation a été, comme mentionné précédemment, généralisée par d'autres groupes à la plupart des alcalins (par exemple Rb_2 en 2000 [Gabbanini et al., 2000] ou Na_2 en 2002 [Fatemi et al., 2002]), et plus récemment à des systèmes alcalins hétéro-nucléaires. La formation de molécules froides est encore à l'heure actuelle la motivation principale pour effectuer une spectroscopie de photoassociation. La méthode est efficace même dans les MOT, i.e. à relativement haute température et basse densité, avec un taux de formation de molécules froides typiquement de l'ordre du dixième du nombre d'atomes présents par seconde. Par contre pour des gaz plus froids et plus denses (comme les BEC) les collisions à trois corps ou les résonances de Feshbach peuvent s'avérer plus intéressantes pour former des molécules froides. En effet, comparées à la photoassociation, ces méthodes s'affranchissent de l'étape incontrôlée qu'est l'émission spontanée et le contrôle de l'état final est donc en général bien meilleur.

Magnéto-association ou collision à trois-corps

En 2002 le groupe de Carl Weiman a formé des molécules froides dans un condensat de Bose-Einstein d'atomes par magnéto-association au voisinage d'une résonance de Feshbach [Donley et al., 2002]. Finalement en 2003 un condensat de molécules a pu être réalisé dans un gaz de Fermi dégénéré : à l'aide d'un processus de collision à trois corps dans le groupe de Rudolf Grimm et dans celui de Wolfgang Ketterle sur le ^6Li [Jochim et al., 2003,

Zwierlein et al., 2003], et à l'aide d'une résonnance de Feshbach dans le groupe de D. Jin sur le potassium ^{40}K [Greiner et al., 2003]. La conversion réversible de ce condensat bosonique moléculaire (BEC) en paires fermioniques "appareillées" (possiblement du type BCS) a depuis engendré des très nombreux travaux sur cette frontière "BCS-BEC crossover" [Bourdel et al., 2004, Bartenstein et al., 2004]. Cette physique est trop riche pour être décrite ici et, malgré son importance actuelle, je renvoie le lecteur uniquement à l'article de revue [Bloch et al., 2007]. Les condensats moléculaires purent voir le jour car les molécules bosoniques issues de l'appariement d'atomes fermioniques discernables montrent une exceptionnelle stabilité liée au principe d'exclusion de Pauli inhibant les collisions proches. En comparaison, les mêmes études, mais menées sur des espèces bosoniques comme le sodium, dans le groupe de Wolfgang Ketterle [Xu et al., 2003] (qui avait débuté ces études dès 1998 [Inouye et al., 1998]), ou le césium dans le groupe Rudi Grimm [Herbig et al., 2003], ont démontré la trop faible stabilité des molécules formées pour réaliser un condensat de Bose-Einstein de molécules. Les travaux récents au JILA [Zirbel et al., 2008], permettent de clarifier ces effets, car ils montrent une stabilité des molécules vis à vis d'une collision avec un atome environnant si les trois particules impliquées dans la collision ne sont pas identiques. Cela est confirmé, même dans le cas bosonique, par l'article de D'Incao et Esry résumant l'ensemble de cette physique collisionnelle à trois corps [D'Incao and Esry, 2008].

Les molécules formées par collision entre trois atomes, ou entre un atome et une molécule, sont depuis un sujet d'étude très actif. Mentionnons en particulier les travaux sur les états de Thomas-Efimov (par exemple des états liés à trois corps alors qu'aucun état peu-lié à 2 corps n'existe) du groupe de Innsbruck [Kraemer et al., 2006] et leur interprétation controversée [Lee et al., 2007].

Les études collisionnelles précédentes portent sur les états moléculaires très proches de la limite de dissociation, i.e. avec des énergies de liaison de l'ordre du GHz. La photoassociation permet de former des états un peu plus fortement liés i.e. avec des énergies de liaison de l'ordre de plusieurs cm^{-1} (plusieurs centaines de GHz). Au cours de l'année 2005, nous avons étudié (simultanément avec le groupe de Matthias Weidemüller) les collisions inélastiques entre les molécules et les atomes et entre les molécules elles-mêmes à l'aide d'un piège réalisé avec un laser CO_2 [Zahzam et al., 2006, Staunum et al., 2006]. La conclusion, détaillée ci-après, fut que ces molécules ne sont pas suffisamment liées et subissent donc toujours une collision inélastique.

Pour assurer la stabilité d'un échantillon piégé de molécules froides, le plus simple est donc d'avoir ces molécules dans leur état fondamental d'énergie interne (souvent pas de vibration $v = 0$ et pas de rotation $J = 0$), comme cela fut prédit par de nombreuses études théoriques des groupes de J. M. Launay, J. Bohn, J. Hudson, A. Dalgarno, F. Gianturco, G. Quémener, N. Balakrishnan ou R. Krems [Forrey et al., 1999, Soldán et al., 2002, Quémener et al., 2007, Balakrishnan and Dalgarno, 2001, Bodo et al., 2002, Quémener et al., 2008]. La question de la structure hyperfine, créant une levée de dégénérescence typique d'une centaine de kHz qui peut amener à des collisions inélastiques, commence tout juste à être abordée [Aldegunde et al., 2008].

Vers $v=0$!

Ces résultats expliquent l'intense activité de ces dernières années pour former des molécules froides dans des niveaux sans rotation, ni vibration. Le problème principal étant celui de la vibration, la rotation étant elle souvent déjà "froide".

Dans cette quête, il faut distinguer trois cas : le premier, qui est le résultat que nous venons d'obtenir [Viteau et al., 2008], consiste à refroidir la vibration (i.e. amener tous les

autres niveaux $v > 0$ dans $v = 0$), le second consiste à transférer un unique niveau $v > 0$ dans $v = 0$, enfin la troisième possibilité consiste à utiliser des molécules qui sont déjà dans $v = 0$. La première possibilité, celle du refroidissement vibrationnel, est bien adaptée aux molécules formées par photoassociation qui sont dans plusieurs niveaux de vibration. Je l'étudierai en détail en section 8.5. Le second cas, celui du transfert, est idéal pour les molécules déjà présentes dans un unique niveau. Il existe un grand nombre de processus, optiques le plus souvent, pour transférer ce niveau vers $v = 0$. On peut penser au processus inverse de celui utilisé par exemple dans les travaux de E. Tiemann sur Na_2 passant de $v = 0$ à $v \sim 165$ [Elbs et al., 1999]). Le transfert Raman stimulé fut utilisé par D. DeMille sur RbCs passant d'un niveau vibrationnel élevé à $v = 0$ [Kerman et al., 2004b, Sage et al., 2005]. Le transfert cohérent fut étudié par le groupe de R. Grimm (Innsbruck) sur Rb_2 et par le groupe de D. Jin et J. Ye au JILA sur KRb . Ces deux groupes enlevèrent, mais ce sont les plus difficiles, quelques unités à $v \sim 200$ [Winkler et al., 2007, Ospelkaus et al., 2008]. Très récemment, le groupe de Hanns-Christoph Nägerl (Innsbruck) améliora, sur Cs_2 , la méthode en réussissant à enlever près de 1000 cm^{-1} d'énergie [Danzl et al., 2008]. Le troisième processus qui consiste à avoir des molécules directement dans $v = 0$ n'a jusqu'à présent été réalisé que dans le groupe de Storrs sur K_2 en 1999 [Nikolov et al., 1999, Nikolov et al., 2000] à l'aide d'une photoassociation à deux couleurs, et, très récemment avec en plus une résolution rotationnelle, i.e. en formant $J = 0$ (résultat non encore publié), par le groupe de Matthias Weidemüller sur LiCs en photoassociant à très courte distance internucléaire. Dans les deux cas le processus reste assez peu efficace avec un taux de formation de l'ordre de 1000 par seconde.

8.1.4 Molécules froides formées à partir de molécules

Si l'on cherche à avoir des molécules directement dans $v = 0$ le plus simple est de partir directement de molécules ! Ce domaine, plus proche de la chimie, est en fait très complémentaire du domaine des molécules ultra-froides formées à partir d'atomes, car il permet d'avoir des états $v = 0$ mais à des températures près de 1000 fois plus élevées que celles obtenues à partir d'atomes froids (domaine du milli-kelvin et non du micro-kelvin).

Abaisser encore cette température est un des défis que la communauté doit encore réaliser. Plusieurs propositions existent comme utiliser un refroidissement sympathique avec des atomes ou ions froids [Ostendorf et al., 2006, Ostendorf et al., 2008, Barletta et al., 2008] ou un refroidissement laser [Bahns et al., 1996, Ooi et al., 2003, di Rosa, 2004]. J'en reprendrai quelques uns dans la partie consacrée au refroidissement vibrationnel.

Le domaine, de la formation des molécules froides à partir de molécules, fut ouvert en 1998 avec de nouvelles techniques permettant de refroidir les molécules. La première d'entre-elles est due au groupe de J. Doyle à Harvard, qui utilisa un gaz cryogénique d'hélium pour refroidir des molécules de CaH [Weinstein et al., 1998]. Dans le cas particulier de CaH (ou NH [Hummon et al., 2008]) les collisions avec le gaz tampon d'hélium n'entraînent pas de retournement de spin et ces molécules sont donc piégées en très grand nombre (plusieurs milliards) par le champ magnétique de bobines supraconductrices. Cette expérience ouvrit ainsi le domaine du piégeage des molécules froides, qui a lui aussi une longue histoire [Balykin et al., 2000] que je résume rapidement ici : l'année 1998 vit aussi le premier piégeage de molécules froides formées à partir d'atomes froids (quelques molécules de Cs_2 formées par photoassociation dans le groupe de R. Knize à l'aide d'un laser à CO_2 [Takekoshi et al., 1998]). Le piégeage par des champs électrostatiques fut réalisé en 2000 avec de l'ammoniaque dans le groupe de G.

Meijer [Bethlem et al., 2000, Cromptvoets et al., 2001]. L'accumulation dans un piège (magnétique) fut réalisé dans notre groupe en 2002 et avec des molécules ultra-froides cette fois-ci [Vanhaecke et al., 2002]. Je reviendrai sur cette expérience, mais je mentionne aussi que 2002 fut l'année de la création d'un réseau européen sur les molécules froides (COMOL) dont Françoise Masnou du laboratoire Aimé Cotton fut coordonnatrice. A l'heure actuelle les recherches s'orientent vers la simplification et l'extension des dispositifs de piégeage [Hofferberth et al., 2006, Kleinert et al., 2007b, Kleinert et al., 2007a, Rieger et al., 2007].

Utilisation de jets supersoniques

En dehors de la technique de cryogénie, des techniques permettant de refroidir les molécules sont connues depuis très longtemps. La technique la plus utilisée est l'expansion supersonique d'un gaz moléculaire dans le vide (souvent avec un gaz rare porteur) [Campargue, 2001, Pauly, 2000]. Notons que le gaz porteur peut former des agrégats sur lesquels se collent les molécules qui sont alors refroidies et peuvent être étudiées spectroscopiquement [Even et al., 2000].

Si la brillance des jets supersoniques est très élevée ($\sim 10^{23}$ atomes/sr/s) et si la température translationnelle est très basse ~ 100 mK (la température rotationnelle 1 K et vibrationnelle 10 – 100 K sont en général un peu supérieures), les principales limites réduisant l'utilisation de jets supersoniques proviennent, d'une part des importantes capacités de pompage nécessaires pour les jets continus, et de la vitesse moyenne du jet dans le laboratoire qui est très élevée (variant d'environ 300 à 4000 m/s selon le gaz porteur et sa température). Le premier groupe à avoir réussi à réduire cette vitesse jusqu'à avoir des molécules (de CO) au repos dans l'enceinte expérimentale fut le groupe de G. Meijer alors à Nijmegen aux Pays-Bas [Bethlem et al., 1999] qui utilisa des champs électriques intenses pulsés. La méthode est tout à fait analogue, mais inverse, à un accélérateur linéaire de particules, convertissant l'énergie cinétique en énergie potentielle. Pour plus de détail je renvoie aux articles de revues [McCarthy et al., 2006, van de Meerakker and Meijer, 2007]. La difficulté principale est la stabilité du jet lors de la décélération qui n'est assurée qu'avec des molécules polaires dites chercheuses de champ faible, ce qui exclut les molécules dans leur état fondamental. En alternant les électrodes et les champs oscillants il est toutefois possible de contourner le problème [Bethlem et al., 2002, Bethlem et al., 2006] et de ralentir des molécules dans leur état fondamental. Cette alternance d'électrodes demande une précision du montage mécanique extrême qui n'a pas encore permis de ralentir totalement ces molécules. Des tests prometteurs sont tout de même en cours sur le benzonitrile (C_7H_5N) [Wohlfart et al., 2008] ou YbF [Tarbutt et al., 2004, Condylis et al., 2005, Tarbutt et al., 2008]. Cette technique de décélération peut être suivie d'un refroidissement jusqu'à des température sub-mK par bunching (manipulation de l'espace des phases) [Bochinski et al., 2003] suivi éventuellement d'un piégeage électrostatique [Bethlem et al., 2000, Cromptvoets et al., 2001, van Veldhoven et al., 2005]. Cette technique de décélération a ensuite été démontrée sur OH en 2005 par le groupe de G. Meijer à Berlin (avec typiquement 10^5 molécules piégées à une densité de 10^7 cm $^{-3}$ et des températures entre 50 et 500 mK) [van de Meerakker et al., 2005a]. En 2006, le groupe de J. Ye au JILA décéléra le formaldéhyde (H_2CO) [Hudson et al., 2006b] et piégea OH dans un piège mixte électrique et magnétique [Sawyer et al., 2007]. La molécule de NH fut décélérée par le groupe de Berlin [van de Meerakker et al., 2006] et piégé en 2007 [Hoekstra et al., 2007b]. Enfin en 2008 SO_2 fut décélérée dans l'équipe de C. Lisdar à Hannover [Bucicov et al., 2008], avec pour idée de dissocier au seuil cette molécule pour former des atomes d'oxygène froids.

Ces expériences, de décélération par effet Stark, sont délicates (et chères) à cause des forts

champs électriques à appliquer, nous avons donc proposé dans l'article [Vanhaecke et al., 2005] une expérience utilisant des molécules dans des états de Rydberg soumises à de plus faibles champs électriques, qu'il est donc possible d'optimiser au cours du temps, pour décélérer ces molécules. La difficulté est d'amener par excitation laser les molécules dans des états de Rydberg. Des expériences sur les atomes d'argon, d'hélium ou d'hydrogène, et des études sur H_2 , dans les groupes de F. Merkt à Zurich, de T. Softley à Oxford ou de H. Metcalf à Stony Brook ont démontré que cette méthode de décélération d'espèces Rydberg suivie éventuellement d'un piégeage est possible [Kritsun et al., 2004, Vliegen et al., 2004, Yamakita et al., 2007, Hogan and Merkt, 2008].

D'autres techniques partant de jets supersoniques ont aussi vu le jour. En 1999 le groupe du lauréat du prix Nobel de chimie D. Herschbach à Harvard contrôla (pour O_2 , CH_3F puis pour SF_6 [Gupta and Herschbach, 2001]) la vitesse du jet supersonique en faisant tourner de manière contrepropagante la buse de sortie [Gupta and Herschbach, 1999]. En 2003, un champ laser intense nanoseconde pulsé fut employé pour décélérer le benzène C_6H_6 jusqu'à 300 m/s (amélioré à 190 m/s en 2006 [Fulton et al., 2006]) par le groupe de P. Barker [Fulton et al., 2004]. Le groupe de D. Chandler à Livermore amena en 2003 un jet de NO à 15 m/s en effectuant une collision de manière inélastique (ce qui transmet un peu de rotation) avec un jet d'argon [Elioff et al., 2003]. Mentionnons aussi la formation de KBr à 13 K lors de processus de collisions similaires, mais entre K et HBr par H. Loesch à Bielefeld [Liu and Loesch, 2007]. Mentionnons enfin les recherches menées sur des macromolécules (perfluorinated) par le groupe de M. Arndt à Vienne [Deachapunya et al., 2008]. Notons aussi que l'utilisation de champs magnétiques pulsés peut avantageusement, dans le cas d'un moment magnétique permanent (par exemple lié à un électron non apparié : un radical), remplacer les champs électriques. Cette décélération magnétique vient récemment d'être démontrée sur des atomes (H) par le groupe de F. Merkt à Zurich [Hogan et al., 2007, Hogan et al., 2008] et (sur Ne) par le groupe de M. Raizen au Texas [Narevicius et al., 2007b, Narevicius et al., 2008]. N. Vanhaecke (qui était post-doc sur l'expérience du groupe de Zurich) réfléchi à l'heure actuelle à la possibilité d'implanter une expérience de ce genre au laboratoire Aimé Cotton.

Autres méthodes de formations de molécules froides

Notons finalement que des jets non supersoniques peuvent être utilisés. Il suffit alors, un peu à l'instar d'un MOT pour les atomes, de choisir les molécules les plus lentes de la distribution de Maxwell-Boltzmann. Cette approche fut démontrée, en utilisant un champ électrique, en 2003 sur H_2CO et ND_3 dans le groupe de G. Rempe à Garching [Rangwala et al., 2003]. Ce même groupe utilisa la technique pour piéger ces molécules en 2005 [Rieger et al., 2005] et appliqua la méthode aux molécules d'eau en 2006 [Rieger et al., 2006]. En 2008, le groupe de T. Softley, utilisa cette technique sur CH_3F [Willitsch et al., 2008]. Cette sélection en vitesse peut aussi s'effectuer par champ magnétique comme montré par le groupe de J. Doyle sur PbO et O_2 avec en plus un refroidissement cryogénique qui permet de refroidir la rotation [Maxwell et al., 2005, Patterson and Doyle, 2007]. Je mentionnerai finalement le refroidissement des ions atomiques et de leurs collisions thermalisantes avec des ions moléculaires dans les groupes de M. Drewsen [Mølhave and Drewsen, 2000], de S. Schiller [Blythe et al., 2005] ou de R. Wester [Mikosch et al., 2007].

En conclusion, les étapes de refroidissement des degrés de liberté de rotation et de vibration, pour les molécules formées à partir d'atomes, et de refroidissement du degré de liberté translationnel, pour les molécules ralenties, sont évidemment les futurs challenges que la communauté doit surmonter.

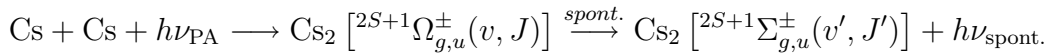
Parmi les nombreuses applications et directions de recherche mentionnées en introduction, figurent les objectifs à long terme que je poursuis, comme le condensat de Bose-Einstein moléculaire, le laser à molécules, la chimie ultra-froide ou l'étude des collisions froides (atome/molécule) à travers la formation par photoassociation, le piégeage et le refroidissement vibrationnel de molécules froides. Je vais à présent décrire quelques-uns de mes travaux les plus marquants.

8.2 Spectroscopie de photoassociation

Mes travaux concernant la spectroscopie de photoassociation ont essentiellement consisté en l'étude des potentiels moléculaires du césium, que ce soit dans l'étude de la partie longue distance des états excités [Comparat et al., 1999, Fioretti et al., 1999] ou des états fondamentaux [Lisdat et al., 2002, Vanhaecke et al., 2004], de couplages (tunnel, prédissociation, spin-orbite, ...) moléculaires [Vatasescu et al., 2000, Dion et al., 2001], ou de la modification par une résonance de Feshbach [Laburthe Tolra et al., 2003].

Ces études nous ont principalement permis de trouver des schémas de formation de molécules froides de plus en plus efficaces, et ont finalement permis la réalisation du refroidissement vibrationnel des molécules. La spectroscopie moléculaire par photoassociation est aussi un outil de diagnostic essentiel des expériences de molécules froides. L'interprétation des données s'effectue souvent en collaboration avec les théoriciens du laboratoire (O. Dulieu, A. Crubellier, F. Masnou, N. Bouloufa, ...).

Le processus de photoassociation (PA), puis de désexcitation spontanée formant des molécules froides, est le suivant (avec des notations spectroscopiques que je ne détaille pas ici) :



Les molécules froides que nous formons proviennent donc d'une désexcitation spontanée et sont donc formées dans plusieurs niveaux de vibration v' et dans quelques niveaux de rotation bas $J' = J \pm 1, 0$. En effet J reflète essentiellement l'onde partielle de collision ℓ (couplée éventuellement à d'autres moments angulaires faibles comme le spin), qui est faible vues les basses températures considérées.

8.2.1 Photoassociation à deux photons

Afin de former directement les molécules froides dans un seul niveau de vibration il est tentant de stimuler l'émission en faisant de la photoassociation Raman stimulée. Nous avons étudié ce processus de photoassociation à 2 photons en détail au cours de l'année 2002 [Lisdat et al., 2002]. Il permet de former seulement 1000 molécules froides par seconde, les mécanismes de réabsorption par la molécule formée ne permettant pas d'accumuler un plus grand nombre de molécules froides. Cette technique a par contre permis d'étudier les formes de raie (effet Autler - Townes, profil de Fano) et d'observer pour la première fois un effet de résonance noire sur une transition "deux atomes vers une molécule". Cette propriété a permis de réaliser une spectroscopie dite de frustration de polarisation de l'état fondamental de la molécule. Cette spectroscopie s'est révélée être un outil de diagnostic important pour la compréhension de la formation de molécules froides et pour la connaissance des phénomènes de collision. Nous avons réalisé la spectroscopie, de frustration de polarisation, à deux photons, d'une centaine des derniers niveaux liés des puits de potentiel fondamentaux de la molécule dimère de césium. L'interprétation des

spectres fut compliquée par la présence dominante de la structure hyperfine. Pour interpréter les données, Nicolas Vanhaecke a développé un programme en C++ basé sur un programme de Anne Crubellier à plusieurs voies couplées mais qui n'utilise uniquement que la partie asymptotique (principalement en C_n/R^n) des potentiels ; la partie interne étant introduite que par une condition de nullité des fonction d'onde sur une "ligne nodale" placée à la limite de la partie asymptotique. C'est une méthode simple et efficace, bien adaptée aux situations rencontrées dans nos expériences, où les phénomènes intéressants ont lieu à des distances interatomiques assez grandes. Bien souvent, les molécules vibrent en restant à grande distance interatomique et ressemblent à des paires d'atomes en interaction, dont la description se situe à la frontière entre physique moléculaire et physique atomique.

Nos résultats ont permis de déterminer pour la première fois l'amplitude de l'énergie d'échange et d'améliorer notre connaissance du coefficient de Van der Waals C_6 [Vanhaecke et al., 2004]. Les résultats obtenus fournissent un ensemble de paramètres aisément utilisables qui permettent, en principe, de calculer la fonction d'onde de n'importe quel état proche du seuil, lié ou continu, des potentiels fondamentaux $6s+6s$ de Cs_2 . Ce calcul peut être généralisé au cas où les atomes se trouvent en présence d'un champ magnétique.

8.2.2 Étude d'une résonance de Feshbach par photoassociation

Avec l'aide de ce programme, nous avons réalisé l'expérience de formation de molécules froides via la photoassociation au voisinage d'une résonance de Feshbach [Laburthe Tolra et al., 2003]. En jouant avec le champ magnétique, et en effectuant une photoassociation avec des atomes temporairement polarisés, nous montrons ainsi qu'il est possible de sonder la fonction d'onde de collision (voir la figure 8.1) et qu'il est possible de changer les taux de formation de molécules.

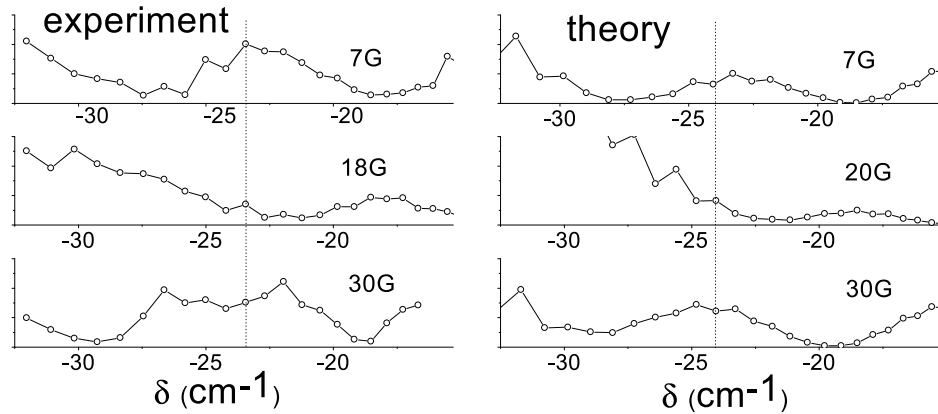


FIG. 8.1 – Taux de photoassociation en fonction du décalage du laser de photoassociation de la résonance $6s \rightarrow 6p_{3/2}$ du Cs pour différents champs magnétiques. Comparaison entre un spectre expérimental (à gauche) partant d'atomes polarisés dans $f = 4, m_f = 4$ et le calcul théorique (à droite) effectué par Anne Crubellier.

8.2.3 Amélioration de la loi de LeRoy-Bernstein J. Chem. Phys 120 1318 (2004)

Je profitai aussi de ces travaux de spectroscopie pour finir la rédaction d’une théorie, déjà présente dans ma thèse, dite de LeRoy-Bernstein [Leroy and Bernstein, 1970] améliorée et qui relie l’énergie E_v d’un état vibrationnel v (avec la valeur v_D non entière à la limite de dissociation) lorsque le potentiel a une forme asymptotique en $D + C_n/R^n$. L’amélioration prend en compte les autres termes en C_m/R^m mais surtout la partie non asymptotique [Comparat, 2004]. Dans son expression la plus simple, cela revient à ajouter un simple terme $\gamma(D - E_v)$ à la formule classique de LeRoy-Bernstein qui devient :

$$v_D - v \approx \sqrt{\frac{2\mu}{\pi}} \frac{(-C_n)^{1/n}}{\hbar(n-2)} \frac{\Gamma(1/2 + 1/n)}{\Gamma(1 + 1/n)} (D - E_v)^{\frac{n-2}{2n}} + \gamma(D - E_v) \quad (8.2.1)$$

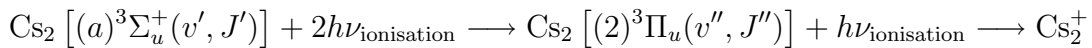
L’amélioration est sensible et permet d’utiliser cette formule pour extraire le coefficient C_n avec une précision de 1% environ contre 10-20% environ pour la théorie usuelle utilisant $\gamma = 0$. Ce travail a ensuite été repris au sein du laboratoire par le groupe de Laurence Pruvost [Jelassi et al., 2006b, Jelassi et al., 2006a].

8.2.4 Nouvelle spectroscopie

L’achat d’un lambdamètre de très grande précision en 2004 nous a permis de gagner plus d’un ordre de grandeur en précision absolue (15 MHz contre 150 MHz) par rapport à ce que nous avons pu réaliser en spectroscopie de photoassociation jusque-là et qui provenait d’une calibration basée sur les raies d’absorption de la molécule d’iode. En 2007 nous reprîmes alors la spectroscopie des états $0_g^-(6s + 6p_{3/2})$ qui permettent de déterminer la durée de vie de l’état atomique $6p_{3/2}$ qui est un paramètre important pour les mesures de violation de la parité effectuées avec l’atome de césium [Bouloufa et al., 2007]. Les données, que je ne présente pas ici sont en cours d’études par Nadia Bouloufa et devraient bientôt améliorer la valeur de la durée de vie de l’état atomique $6p_{3/2}$.

8.2.5 Détection de la photoassociation par ionisation

Je voudrais mentionner dans cette section ”spectroscopique” mes travaux liés à la détection des molécules froides. Les spectres d’ions moléculaires Cs_2^+ enregistrés en fonction de la longueur d’onde du photon d’ionisation (effectuée selon un processus résonnant à 2 photons) fournissent de nombreuses informations spectroscopiques sur des états moléculaires de Cs_2 difficilement accessibles par les méthodes usuelles de spectroscopie, comme par exemple les états triplets. Le processus est le suivant :



Dès 1998 nous avons essayé d’attribuer les raies présentes dans ces spectres. La complexité des spectres ne nous a permis que de comprendre globalement le processus sans être capables de déterminer précisément les niveaux vibrationnels observés [Dion et al., 2002]. En 2007, lorsque j’ai fait reprendre les expériences de photoassociation en vue de l’étude du refroidissement vibrationnel des molécules avec le laser femtoseconde, nous avons repris cette spectroscopie d’ionisation. Avec l’aide de Nadia Bouloufa et de Olivier Dulieu, nous commençons à connaître les états

v' formés suite aux étapes de photoassociation. Par exemple nous formons assez efficacement $v' = 12 - 16$ (voir figure 8.2) lors d'une photoassociation du niveau $v = 103$ du $0_g^-(6s + 6p_{3/2})$ [Vatasescu et al., 2000].

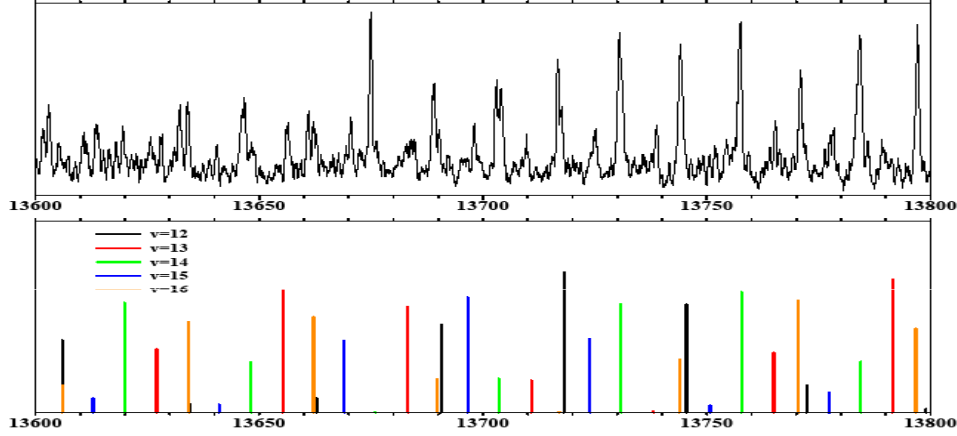


FIG. 8.2 – Haut : Nombre d'ions observés en fonction de la fréquence du laser d'ionisation suite à une photoassociation du niveau $v = 103$ du potentiel moléculaire $\text{Cs}_2[0_g^-(6s + 6p_{3/2})]$. Bas : Spectre simulé prenant en compte le recouvrement entre l'état initial supposé équilibre et l'état intermédiaire de ionisation. Malgré les différences en intensité, liées notamment à des effets de saturation, on déduit de cette comparaison que la photoassociation forme des molécules $(a)^3\Sigma_u^+(v')$ avec $v' = 12 - 16$.

Comme décrit ci-après, nous avons surtout étendu cette spectroscopie d'ionisation pour permettre la détection de l'état électronique fondamental $X^1\Sigma_g^+(v', J')$ à l'aide des états intermédiaires $B^1\Pi_u$ et $C^1\Pi_u$ dont la spectroscopie est connue.

8.3 Piégeage et étude des collisions avec des molécules froides : PRL 89 063001 (2002) + PRL 96 023202 (2006)

Nous avons principalement travaillé sur le piégeage de nos molécules froides formées après émission spontanée de molécules photoassociées. Pour disposer d'un échantillon important de molécules froides, il faut pouvoir accumuler et stocker celles-ci. Un enjeu important est donc de piéger les molécules.

Si l'on exclut le piège peu efficace de R. Knize en 1998 [Takekoshi et al., 1998], et le résultat non publié obtenu lors de mon séjour post-doctoral [Ryu et al., 2002], nous avons, début 2002, réalisé le premier piège pour molécules ultra-froides ($T < 1\text{ mK}$). Ce piège fut réalisé avec les molécules de Cs_2 , dans l'état triplet, formées après photoassociation. C'est par ailleurs une limitation importante de ce type de piège magnétique : il ne permet de piéger que des molécules sensibles au champ magnétique ce qui n'est pas le cas de l'état $^1\Sigma$ qui est souvent l'état fondamental des molécules. Pour réaliser ce piège magnétique, il a suffi d'augmenter le gradient de champ magnétique quadrupolaire utilisé dans le piège magnéto-optique. Cela est réalisé au prix d'une diminution du nombre d'atomes dans le piège magnéto-optique mais on réalise de fait un piège mixte atomique et moléculaire : un piège atomique car le piège magnéto-optique est chargé continûment à partir de la vapeur atomique ; et un piège quadrupolaire

magnétique moléculaire chargé continûment durant le processus de photoassociation. Environ 200000 molécules à une température de $30\ \mu\text{K}$, distribuées, comme cela est visible sur la figure 8.3, dans un nuage de quelques millimètres de dimension sont ainsi accumulées dans ce piège. L'accumulation des molécules sature pour une durée de photoassociation supérieure à 100 ms. Cette limitation vient de processus de pertes, notamment ceux liés à l'absorption de la lumière laser.

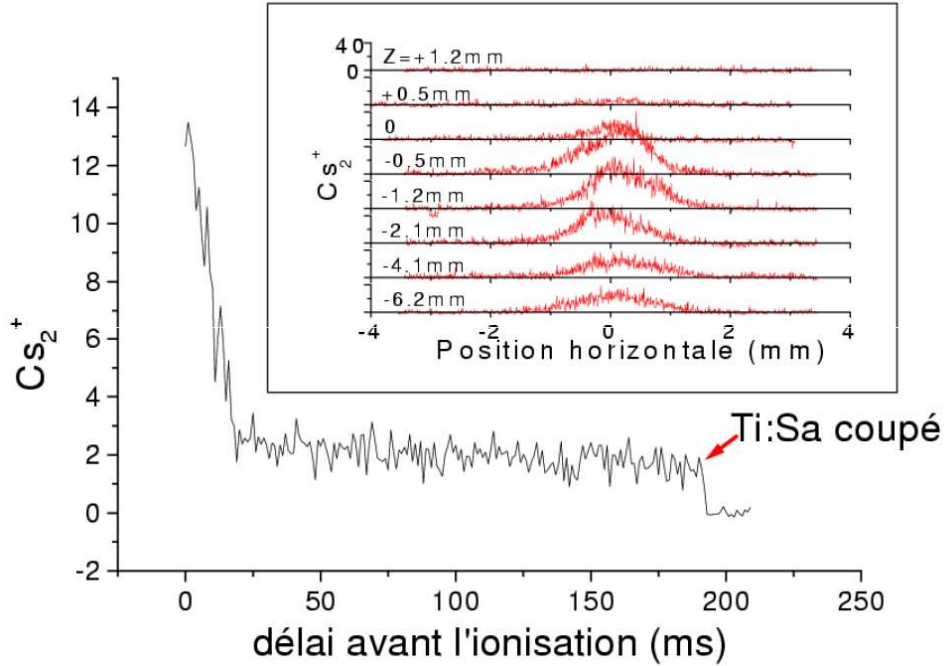


FIG. 8.3 – Molécules présentes (vues au travers de leur signal d'ionisation) dans la zone d'ionisation en fonction du décalage temporel entre la fin de la période (de 100 ms) de photoassociation et l'ionisation. Les molécules restant (après 20 ms) sont celles piégées dans le piège magnétique, le zéro étant indiqué par le signal avec le laser de photoassociation coupé (Ti :Sa coupé à 200 ms). En encadré est représenté le profil spatial du piège de molécules réalisé en balayant le faisceau d'ionisation à différentes hauteurs sous la zone de création. Le nuage de molécules piégées (200000 molécules à $30\ \mu\text{K}$) a donc la forme d'une poire.

Lors de la thèse de Nicolas Vanhaecke nous avons profité du chantier électrique au laboratoire, au cours de l'année 2002, pour modéliser le piégeage magnétique des molécules, et préparer une modification importante du dispositif expérimental. Notre but principal était l'obtention d'une nouvelle cellule avec plus d'accès optiques et avec des hublots en ZnSe qui permettent de laisser passer la lumière laser, à $10,6\ \mu\text{m}$, d'un laser CO_2 que nous voulions utiliser pour piéger les molécules dans un piège dipolaire. Nous avons installé une telle cellule avec succès en 2003. L'avantage d'un piège laser comparé à un piège magnétique est de pouvoir piéger toutes les molécules quel que soit leur état et de réaliser des échantillons moléculaires plus denses. En février 2004 nous étions sur le point d'effectuer l'expérience de piégeage d'atomes et de molécules froides dans le laser CO_2 . Malheureusement, le laser CO_2 dont nous disposions s'est avéré être instable. En attendant l'arrivée mi-juin 2004 d'un autre laser nous avons donc effectué des expériences concernant les atomes de Rydberg et les plasmas froids.

Le nouveau laser de 100 W nous a finalement permis en 2005 de réaliser un piège dipolaire

pour les atomes et pour les molécules froides. Le piégeage est efficace et la durée de vie, de l'ordre de la seconde, est ultimement limitée par les collisions avec le gaz chaud résiduel présent dans l'enceinte. Cette limitation nous empêcha de déterminer la durée de vie de l'état métastable triplet de plus basse énergie que l'on avait estimé, au cours de la thèse de N. Vanhaecke, à quelques secondes. Nous avons donc principalement étudié les collisions inélastiques entre espèces : atomes-atomes, atomes-molécules et molécules-molécules. Le problème principal fut alors le fait que notre spectroscopie n'était pas suffisamment connue et que nous ne pouvions pas déterminer précisément quels niveaux moléculaires étaient en jeu. Tout au plus savions-nous que les niveaux moléculaires étudiés étaient proches de la limite de dissociation avec un fort couplage hyperfin. Ces études furent néanmoins importantes car les seules données de collisions disponibles mettaient en jeu uniquement les tous derniers niveaux moléculaires formés par résonance de Feshbach. Simultanément le groupe de M. Weidemüller obtint quasiment les mêmes résultats (sans les collisions molécules-molécules) et nous avons donc décidé de soumettre simultanément nos articles en septembre 2005 à P.R.L. Le résultat principal montre que toutes les collisions sont inélastiques et cela quel que soit le niveau moléculaire considéré. Afin de comparer avec les calculs théoriques, qui indiquent que plus la molécule est liée, dans son puits de potentiel, moins les collisions inélastiques l'affectent, il sera donc utile de reprendre ces mesures avec la meilleure connaissance des niveaux vibrationnels que nous avons actuellement.

8.4 Formation de molécules singlet et détection non sélective

Les résultats collisionnels précédents illustrent l'intérêt de réussir à former des états moléculaires plus profonds et notamment des états singlets de plus basse énergie. Pour atteindre cet objectif, il nous fallut recourir à une nouvelle technique de détection des molécules, car la technique utilisée précédemment n'était efficace (résonnante) qu'avec des molécules dans l'état triplet. Ma première idée fut d'utiliser non plus un processus résonnant à deux photons (REMPI) mais de doubler en fréquence le laser d'ionisation pour directement ioniser les molécules quel que soit leur état électronique. Il s'avère en fait que, dans le cas du césium, la section efficace d'ionisation chute alors de près d'un facteur 100. De plus les photons UV perturbent énormément les galettes de micro-canaux, et malgré les efforts des deux étudiants en thèse (Matthieu Viteau et Amodsen Chotia) qui éjectèrent les ions parasites et qui alimentèrent avec un champ électrique pulsé ces galettes, il nous fut impossible de détecter ainsi les molécules.

Je choisis alors une autre stratégie, qui s'avéra beaucoup plus simple et qui doit être généralisable à toute expérience voulant détecter des molécules froides. Il suffit d'élargir spectralement (en remplaçant le réseau de la cavité laser par un prisme) le laser de ionisation pour qu'il ionise presque tous les niveaux moléculaires. Par exemple, en utilisant les potentiels connus de la molécule de Cs_2 $X^1\Sigma_g^+$ [Weickenmeier et al., 1985] et $B^1\Pi_u$ [Diemer et al., 1989], il fut possible de prédire que, pour une largeur spectrale de l'ordre de l'écart vibrationnel ($\sim 25 \text{ cm}^{-1}$), une longueur d'onde d'environ 760 nm, et une puissance limitée à une fraction de milli-Joule, il est possible de détecter tous les niveaux vibrationnels $v < 75$ de l'état fondamental $X^1\Sigma_g^+$. Je ne décrirai pas ici les autres schémas possibles (à travers l'état D par exemple) permettant à priori de détecter les états $v > 75$. Muni de ce nouveau processus de ionisation à deux photons (760 nm provenant d'un laser à colorant pulsé + 532 nm provenant du laser de pompe) il nous est possible de détecter si une molécule est présente dans l'état singlet X. Il nous a suffi

alors simplement d'effectuer de nouveau une spectroscopie de photoassociation. Le résultat fut spectaculaire et très simple car, par chance, la photoassociation usuelle, i.e. sous les limites $6s + 6p_j$, permet de former directement des molécules avec $v < 75$. Le processus de formation est toujours à l'étude, et devrait rapidement donner lieu à publication, mais l'écart entre les raies observées, lié à la structure hyperfine atomique et à la structure rotationnelle moléculaire, nous fait penser que le schéma le plus probable de formation est celui décrit dans la figure 8.4. Ce processus de formation est très efficace, car il forme avec un taux important, proche de 10^5 /s, des molécules dans des niveaux $v = 1 - 10$ de l'état singlet. Notons que la détection sélective ne fut pas (à cause de l'endommagement du laser) réalisée ici par le processus 760 nm + 532 nm mais par un processus 630 nm + 630 nm passant par l'état $C^1\Pi_u$ [Raab et al., 1982] et utilisant deux photons identiques.

Ce schéma de photoassociation, où une cascade radiative à deux photons est présente est nouveau et permet d'envisager une stimulation de la première étape de la cascade. Nous reviendrons sur ce point lors de l'exposé des projets.

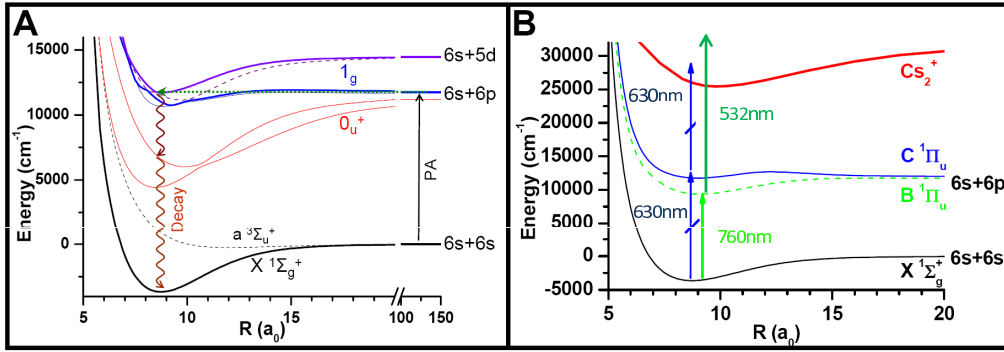


FIG. 8.4 – Potentiels moléculaires de Cs_2 convergeant vers les limites de dissociation $6s + 6s$, $6s + 6p$, et $6s + 5d$ (la structure fine n'est pas résolue). **A**, Processus de formation de molécules froides par photoassociation. Le laser de photoassociation (PA) est décalé $\sim 1 \text{ cm}^{-1}$ de la transition $6s_{1/2} \rightarrow 6p_{3/2}$. Dans les potentiels 1_g , la fonction d'onde à longue distance est couplée à courte distance par des couplages internes. Les molécules dans l'état fondamental $X^1\Sigma_g^+$, sont alors formées après cascade radiative à deux photons via les potentiels 0_u^+ . **B** processus d'ionisation REMPI par laser pulsé (flèches vertes) via l'état $B^1\Pi_u$ ou (flèches bleues) via l'état $C^1\Pi_u$.

Ce résultat intéressant et la technique originale de détection devraient rapidement s'étendre à d'autres expériences de photoassociation.

8.5 Refroidissement des degrés de libertés internes des molécules. Science 321, 232 (2008).

8.5.1 Propositions théoriques : utilisation d'un laser femtoseconde façonné

Il ne restait alors plus qu'à amener l'ensemble de ces molécules dans l'état $v = 0$. En fait un tel déplacement, de plusieurs niveaux à un seul, est impossible sans un processus dissipatif

permettant d'augmenter la pureté du système, comme cela fut étudié par le groupe israélien de D. Tannor, A. Bartana et R. Kosloff [Bartana et al., 1993, Tannor and Bartana, 1999, Bartana et al., 1997, Tannor et al., 1999, Bartana et al., 2001]. Ces auteurs proposèrent ainsi, voir aussi [Bardeen, 1997, Schirmer, 2001], d'utiliser un laser femtoseconde pour exciter les molécules et d'utiliser l'émission spontanée comme processus dissipatif. Notons aussi les propositions théoriques de "Cavity cooling", i.e. par l'utilisation d'une cavité type Fabry-Perot entourant l'échantillon, pour favoriser l'émission spontanée vers le seul niveau $v = 0$ [Vuletić and Chu, 2000, Morigi et al., 2007, Lev et al., 2008]. L'utilisation d'une impulsion d'un laser femtoseconde intense pour réaliser une photoassociation ou un transfert de population fut ensuite beaucoup étudiée de manière théorique notamment par le groupe israélien [Bartana et al., 2001] et par le groupe d'Orsay de C. Koch, F. Masnou, E. Luc [Koch et al., 2006] ou plus récemment encore par le groupe de Jun Ye mais en utilisant des peignes de fréquences [Pe'Er et al., 2007]. Mon approche fut différente, et basée sur l'accumulation de plusieurs impulsions d'un laser femtoseconde très peu intense, non pas pour effectuer la photoassociation, mais pour manipuler l'état interne des molécules déjà formées. Cette approche de pompage optique est seulement basée sur le caractère large bande du laser, et non sur sa cohérence. Elle est, en cela, très proche des propositions de refroidissement rotationnel proposées pour les ions par M. Drewsen [Vogelius et al., 2002, Vogelius et al., 2004] ; elle est aussi à rapprocher de l'observation de l'absorption du rayonnement du corps noir par des molécules froides dans le groupe de G. Meijer [Hoekstra et al., 2007a]. L'idée consiste à façonner les impulsions issues d'un laser femtoseconde pour interdire, au seul état $v = 0$, l'absorption de photons. Ceci permet de former un état noir et ainsi d'accumuler, lors de cycles d'absorption-émission spontanée liés aux impulsions laser successives, un grand nombre de molécules dans l'état $v = 0$. Plus précisément, grâce à la grande largeur spectrale procurée par le laser femtoseconde, une molécule froide présente dans l'enceinte (créée par exemple par photoassociation) dans un niveau quelconque $v \neq 0$ va absorber de façon résonnante un photon. Elle va ensuite se désexciter par émission spontanée vers un niveau vibrationnel qui éventuellement peut être $v = 0$. Le caractère "aléatoire" de l'émission spontanée implique qu'au bout d'un faible nombre d'absorptions-émissions spontanées une molécule donnée va se désexciter dans l'état $v = 0$. Grâce au façonnage d'impulsions, une fois dans cet état $v = 0$ la molécule ne peut plus absorber de photon et y reste donc. Notons qu'il faut aussi convenablement choisir la puissance du laser femtoseconde, et l'état électronique intermédiaire, pour optimiser le processus et pour pouvoir s'affranchir des phénomènes d'absorption multiphotonique, d'ionisation et de (pré-)dissociation et n'avoir que l'effet lié à l'accumulation de cycles d'absorptions-émissions spontanées.

8.5.2 Photoassociation femtoseconde

Avant de décrire nos expériences utilisant l'état noir, je voudrais revenir sur nos premières études n'utilisant pas ce façonnage. Ces études nous permirent en effet de préciser l'effet du laser femtoseconde sur les molécules froides. En particulier lorsque le laser est proche de la limite de dissociation (~ 852 nm pour le Cs), comme c'est le cas dans les expériences cherchant à effectuer de la photoassociation femtoseconde [Brown et al., 2006, Salzmann et al., 2006, Salzmann et al., 2008], les molécules froides sont excitées, par le laser femtoseconde, sur des niveaux proches de la limite de dissociation qui ont une forte probabilité de se désexciter en deux atomes libres. J'ai alors effectué des simulations numériques pour valider cette hypothèse. Du fait de l'intensité faible un traitement perturbatif est possible. La probabilité d'excitation d'une transition, entre

un niveau vibrationnel v et un niveau vibrationnel v' du potentiel excité, est donc simplement prise proportionnelle au produit du coefficient Franck-Condon ($|\langle v|v'\rangle|^2$) par l'intensité laser à la longueur d'onde de transition utilisée. Le calcul d'équation de taux permet alors de confirmer l'observation qu'un laser femtoseconde proche de la limite de dissociation finit par dissocier les molécules.

8.5.3 Pompage optique de molécules

Il est remarquable que l'idée du pompage optique avec l'utilisation d'un état noir, comme décrite précédemment, nous ait permis, exactement sous cette forme, d'observer le refroidissement vibrationnel visible sur la figure 8.5. Il fallait simplement posséder les molécules dans l'état singlet pour initier le processus et convenablement choisir la longueur d'onde du laser femtoseconde pour effectuer ce pompage optique : le laser (TiSa de longueur d'onde ~ 770 nm) est décalé vers le rouge de la transition entre $v = 0$ et le niveau $v' = 0$ de l'état moléculaire appelé $B^1\Pi_u$. Il suffit alors de réaliser, par diffraction par un réseau, un façonnage très simple illustré sur la partie gauche de la figure 8.5, en coupant (avec une précision de quelques cm^{-1}) la partie bleue du spectre laser pour que les états $v = 1, 2, \dots$, contrairement à l'état $v = 0$, soient eux couplés aux niveaux vibrationnels v' de l'état B.

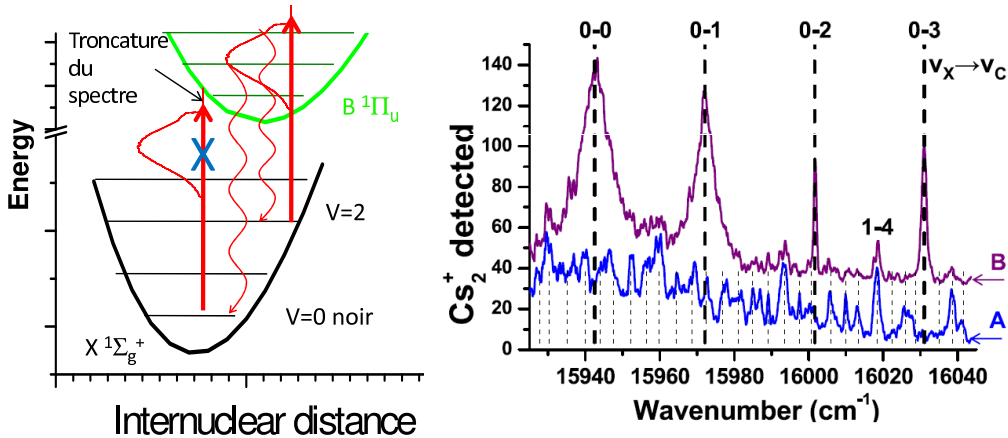


FIG. 8.5 – Principe (gauche) et réalisation (droite) du refroidissement de la vibration de la molécule de Cs_2 . À gauche : Principe illustré sur l'exemple du niveau $v = 2$: par cycle d'absorption et d'émission spontanée, lié au large spectre (schématisé verticalement) du laser femtoseconde, le niveau $v = 2$ va être pompé optiquement vers le niveau $v = 0$ qui, grâce à la troncature du spectre laser, n'absorbe plus la lumière laser. À droite : spectre ionique Cs_2^+ **A**, Spectre sans le laser femtoseconde. Les lignes verticales tiretées représentent l'ensemble des transitions possibles entre l'état $X^1\Sigma_g^+$ ($v_X = 0 - 7$) et l'état $C^1\Pi_u$ (v_C). **B**, Spectre (+ 40 ions pour plus de lisibilité) lorsque le laser femtoseconde façonné est appliqué en continu.

La ligne de façonnage d'impulsion fut réalisée par Matthieu Viteau qui avait appris, en 2005, la technique, décrite aussi dans les références [Weiner, 2000, Monmayrant and Chatel, 2004], auprès de Béatrice Châtel du Laboratoire Collisions, agrégats, réactivité de Toulouse grâce à un financement du Réseau des Technologie Femtosecondes.

Lorsqu'appliqué sur les molécules $X^1\Sigma_g^+$ ($v = 1 - 10$) formées par photoassociation, le laser femtoseconde façonné permet, comme cela est visible sur la figure 8.5, une accumulation assez

efficace dans l'état $v = 0$. Le nombre de molécules froides formé est presque cent fois plus important que dans les expériences précédentes [Nikolov et al., 1999, Sage et al., 2005].

Une étude temporelle nous permet de montrer que cette accumulation est très rapide $\sim 100 \mu\text{s}$ pour une intensité laser très faible de moins de 50 mW/cm^2 . La simulation permet d'estimer qu'environ 5 cycles d'absorption-émission seulement sont nécessaires pour mener à bien ce refroidissement vibrationnel. Le chauffage de l'échantillon reste donc négligeable pour des températures supérieures à quelques micro-Kelvin environ.

Cette manipulation de molécules froides par des impulsions femtosecondes ouvre de très nombreuses nouvelles perspectives et me permet d'ores et déjà d'envisager deux grands axes de recherche particulièrement attractifs et ambitieux : le refroidissement laser (du degré de liberté translationnel) de molécules ou/et la réalisation d'un condensat de Bose-Einstein de molécules sans rotation ni vibration formées à partir d'atomes. Ces deux axes ont un objectif commun : un contrôle total de tous les degrés de liberté (translation, vibration, rotation) d'une molécule.

Je vais décrire ci-dessous les étapes à court terme que je désire étudier rapidement avant d'atteindre ces objectifs ambitieux.

8.6 Évolution future des recherches

L'une des premières étapes sera de simplifier le système en utilisant une autre source lumineuse que le laser femtoseconde pour le refroidissement vibrationnel de la molécule. Comme seule la grande largeur spectrale du laser, qui permet de pomper l'ensemble des niveaux $v \neq 0$, semble être importante dans le processus de pompage optique vers le niveau $v = 0$, j'envisage par exemple d'utiliser une simple diode large bande ce qui rendrait cette méthode encore plus attractive.

8.6.1 Amélioration du taux de formation

Si notre taux de formation de molécules froides dans $v = 0$ approche déjà les 10^6 molécules par seconde, ce taux peut très facilement être augmenté d'un facteur que j'estime à plus de 10. Il suffit pour cela de stimuler la première désexcitation radiative, décrite sur la figure 8.4, de la molécule photoassociée. Un projet de réalisation d'un laser OPO couvrant les longueurs d'ondes nécessaires $1,7 - 2,1 \mu\text{m}$ est à l'étude au laboratoire en collaboration avec Cyril Drag.

8.6.2 Étude rotationnelle et étude en jet

Notre technique de détection n'est pour l'instant pas assez sensible pour étudier l'aspect rotationnel du processus de refroidissement. Le laser d'ionisation qui détecte les molécules a en effet actuellement une résolution spectrale inférieure d'environ 10 fois l'écart entre niveaux rotationnels. La description précédente du refroidissement vibrationnel peut en principe s'étendre immédiatement à la rotation J en étudiant le couple v, J et non v seul. Néanmoins, l'écart d'énergie entre niveaux rotationnels étant bien plus faible que l'écart entre niveaux vibrationnels, il nous faudra sans doute affiner notre façonnage. La polarisation du laser ainsi que le choix de meilleures transitions électroniques jouera sans doute un rôle important pour contrôler au mieux le nombre quantique de rotation de la molécule qui contrairement à la vibration ne peut changer que d'une unité par absorption de photon. Avec notre façonnage actuel, ma simulation indique déjà un refroidissement amenant des molécules avec $J < 5$. Une expérience importante

que nous pourrions réaliser est le refroidissement ro-vibrationnel d'un jet moléculaire effusif de molécules de Cs_2 car J peut alors atteindre 300 dans ce cas précis. Cette expérience montrerait que la méthode est par exemple immédiatement généralisable à des molécules en jet, ce qui serait très intéressant pour les applications.

8.6.3 Piégeage des molécules, étude des collisions, vers la condensation de Bose-Einstein

Le piégeage à l'aide du laser CO_2 de molécules froides dans l'état singulet, avec des niveaux v, J sélectionnés par façonnage, est aussi très intéressant. On pourra étudier de nouveau les processus collisionnels atome-molécule et molécule-molécule ainsi que la durée de vie radiative des molécules froides ou l'effet du laser CO_2 sur ces molécules. Nous pourrions notamment affiner nos études effectuées lors d'expériences avec des molécules piégées [Zahzam et al., 2006], et vérifier que pour éviter un taux important de collisions inélastiques, il faut avoir des molécules dans le niveau sans rotation ni vibration ($J = 0, v = 0$) de l'état électronique fondamental de plus basse énergie.

Une fois les molécules sans vibration ni rotation ($v = 0, J = 0$) obtenues, elles pourront être placées dans un piège dipolaire lumineux réalisé à l'aide d'un laser intense, constituant ainsi un ensemble froid et dense. De façon tout à fait similaire à l'évolution d'un échantillon atomique, cet échantillon moléculaire sera susceptible d'évoluer vers la condensation de Bose-Einstein par refroidissement évaporatif obtenu en baissant l'intensité du laser de piège.

Cette méthode de formation de molécules constituerait une voie nouvelle et importante en vue de la réalisation d'un condensat de molécules dans l'état fondamental.

8.6.4 Refroidissement laser des molécules

Le refroidissement laser du degré de liberté translationnel d'une molécule ne peut s'envisager, sauf cas très particulier de certains hydrures (comme CaH , disposant d'un sous-système à quasi-deux niveaux fermé [di Rosa, 2004]), qu'une fois l'étape ro-vibrationnelle franchie. En effet pour refroidir la translation d'une particule il faut lui transférer plusieurs impulsions de photons; mais dans le cas des molécules l'émission spontanée peuple plusieurs niveaux de vibration qu'il faut donc refroidir, ou repomper [Bahns et al., 1996]. Nous venons en partie de réaliser cette étape. Pour démontrer la faisabilité du refroidissement laser du degré de liberté translationnel d'une molécule, il semble donc possible d'utiliser la molécules de Cs_2 comme test. Mais, à plus long terme il sera sans doute plus intéressant d'utiliser une autre molécule plus difficile à "refroidir".

Une étude préliminaire des transitions en jeu permet même d'envisager un MOT de Cs_2 sur la transition $X^1\Sigma_g^+(v = 0, J = 0) \rightarrow C^1\Pi_u(v = 0, J = 1)$. Je mène, en ce sens, une simulation plus poussée, i.e. utilisant si possible toutes les courbes de potentiel de Cs_2 , pour étudier le processus de pompage optique afin de pouvoir évaluer le nombre de cycles d'absorptions-émissions spontanées possible.

Bibliographie

- [Aldegunde et al., 2008] Aldegunde, J., Rivington, B. A., \. Zuchowski, P. S., and Hutson, J. M. (2008). The hyperfine energy levels of alkali metal dimers : ground-state polar molecules in electric and magnetic fields. *ArXiv e-prints*, 807.
- [Amiot et al., 2002] Amiot, C., Dulieu, O., Gutterres, R. F., and Masnou-Seeuws, F. (2002). Determination of the $\text{Cs}_2 0_g^-(P_{3/2})$ potential curve and of Cs $6P_{1/2,3/2}$ atomic radiative lifetimes from photoassociation spectroscopy. *Phys. Rev. A*, 66(5) :052506–+.
- [Assion et al., 1998] Assion, A., Baumert, T., Bergt, M., Brixner, T., Kiefer, B., Seyfried, V., Strehle, M., and Gerber, G. (1998). Control of Chemical Reactions by Feedback-Optimized Phase-Shaped Femtosecond Laser Pulses. *Science*, 282 :919–+.
- [Bahns et al., 1996] Bahns, J. T., Stwalley, W. C., and Gould, P. L. (1996). Laser cooling of molecules : A sequential scheme for rotation, translation, and vibration. *J. Chem. Phys.*, 104 :9689–9697.
- [Balakrishnan and Dalgarno, 2001] Balakrishnan, N. and Dalgarno, A. (2001). Chemistry at Ultracold Temperatures. *Chemical Physics Letters*, 341 :652–+.
- [Balykin et al., 2000] Balykin, V. I., Minogin, V. G., and Letokhov, V. S. (2000). Electromagnetic trapping of cold atoms. *Reports of Progress in Physics*, 63 :1429–1510.
- [Bardeen, 1997] Bardeen, C. (1997). Feedback quantum control of molecular electronic population transfer. *Chem. Phys. Lett.*, 280 :151–158.
- [Barletta et al., 2008] Barletta, P., Tennyson, J., and Barker, P. F. (2008). Creating ultracold molecules by collisions with ultracold rare gas atoms in an optical trap. *ArXiv e-prints*, 806.
- [Bartana et al., 1993] Bartana, A., Kosloff, R., and Tannor, D. J. (1993). Laser cooling of molecular internal degrees of freedom by a series of shaped pulses. *J. Chem. Phys.*, 99 :196–210.
- [Bartana et al., 1997] Bartana, A., Kosloff, R., and Tannor, D. J. (1997). Laser cooling of internal degrees of freedom. II. *J. Chem. Phys.*, 106 :1435–1448.
- [Bartana et al., 2001] Bartana, A., Kosloff, R., and Tannor, D. J. (2001). Laser cooling of molecules by dynamically trapped states. *Chemical Physics*, 267 :195–207.
- [Bartenstein et al., 2004] Bartenstein, M., Altmeyer, A., Riedl, S., Jochim, S., Chin, C., Denschlag, J. H., and Grimm, R. (2004). Collective Excitations of a Degenerate Gas at the BEC-BCS Crossover. *Physical Review Letters*, 92(20) :203201–+.
- [Bethlem et al., 2000] Bethlem, H. L., Berden, G., Cromptvoets, F. M. H., Jongma, R. T., van Roij, A. J. A., and Meijer, G. (2000). Electrostatic trapping of ammonia molecules. *Nature*, 406 :491–494.

- [Bethlem et al., 1999] Bethlem, H. L., Berden, G., and Meijer, G. (1999). Decelerating Neutral Dipolar Molecules. *Phys. Rev. Lett.*, 83 :1558–1561.
- [Bethlem and Meijer, 2003] Bethlem, H. L. and Meijer, G. (2003). Production and application of translationally cold molecules. *Int. Rev. Phys. Chem.*, 22(1) :73–128.
- [Bethlem et al., 2006] Bethlem, H. L., Tarbutt, M. R., Küpper, J., Carty, D., Wohlfart, K., Hinds, E. A., and Meijer, G. (2006). TOPICAL REVIEW : Alternating gradient focusing and deceleration of polar molecules. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 39 :263–+.
- [Bethlem et al., 2002] Bethlem, H. L., van Roij, A. J., Jongma, R. T., and Meijer, G. (2002). Alternate Gradient Focusing and Deceleration of a Molecular Beam. *Physical Review Letters*, 88(13) :133003–+.
- [Bloch et al., 2007] Bloch, I., Dalibard, J., and Zwerger, W. (2007). Many-Body Physics with Ultracold Gases. *ArXiv e-prints*, 704.
- [Blythe et al., 2005] Blythe, P., Roth, B., Fröhlich, U., Wenz, H., and Schiller, S. (2005). Production of Ultracold Trapped Molecular Hydrogen Ions. *Physical Review Letters*, 95(18) :183002–+.
- [Bochinski et al., 2003] Bochinski, J. R., Hudson, E. R., Lewandowski, H. J., Meijer, G., and Ye, J. (2003). Phase Space Manipulation of Cold Free Radical OH Molecules. *Physical Review Letters*, 91(24) :243001–+.
- [Bodo et al., 2002] Bodo, E., Gianturco, F. A., and Dalgarno, A. (2002). F+D₂ reaction at ultracold temperatures. *J. Chem. Phys.*, 116 :9222–9227.
- [Boesten et al., 1996] Boesten, H. M. J. M., Tsai, C. C., Verhaar, B. J., and Heinzen, D. J. (1996). Observation of a Shape Resonance in Cold-Atom Scattering by Pulsed Photoassociation. *Physical Review Letters*, 77 :5194–5197.
- [Bouloufa et al., 2007] Bouloufa, N., Crubellier, A., and Dulieu, O. (2007). Reexamination of the 0_g⁻ pure long-range state of Cs₂ : Prediction of missing levels in the photoassociation spectrum. *Phys. Rev. A*, 75(5) :052501–+.
- [Bourdel et al., 2004] Bourdel, T., Khaykovich, L., Cubizolles, J., Zhang, J., Chevy, F., Teichmann, M., Tarruell, L., Kokkelmans, S. J., and Salomon, C. (2004). Experimental Study of the BEC-BCS Crossover Region in Lithium 6. *Physical Review Letters*, 93(5) :050401–+.
- [Brown et al., 2006] Brown, B. L., Dicks, A. J., and Walmsley, I. A. (2006). Coherent Control of Ultracold Molecule Dynamics in a Magneto-Optical Trap by Use of Chirped Femtosecond Laser Pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 96(17) :173002–+.
- [Bucicov et al., 2008] Bucicov, O., Nowak, M., Jung, S., Meijer, G., Tiemann, E., and Lisdat, C. (2008). Cold SO₂ molecules by Stark deceleration. *European Physical Journal D*, 46 :463–469.
- [Campargue, 2001] Campargue, R. (2001). *Atom and Molecular Beams : The State of the Art 2000*. Springer-Verlag, Berlin.
- [Chin et al., 2003] Chin, C., Kerman, A. J., Vuletić, V., and Chu, S. (2003). Sensitive Detection of Cold Cesium Molecules Formed on Feshbach Resonances. *Physical Review Letters*, 90(3) :033201–+.
- [Comparat, 2004] Comparat, D. (2004). Improved LeRoy-Bernstein near-dissociation expansion formula, and prospect for photoassociation spectroscopy. *J. Chem. Phys.*, 120 :1318–1329.

- [Comparat et al., 1999] Comparat, D., Drag, C., Fioretti, A., Dulieu, O., and Pillet, P. (1999). Photoassociative Spectroscopy and Formation of Cold Molecules in Cold Cesium Vapor : Trap-Loss Spectrum versus Ion Spectrum. *Journal of Molecular Spectroscopy*, 195 :229–235.
- [Condylis et al., 2005] Condylis, P. C., Hudson, J. J., Tarbutt, M. R., Sauer, B. E., and Hinds, E. A. (2005). Stark shift of the $A^2\Pi_{1/2}$ state in ^{174}YbF . *J. Chem. Phys.*, 123 :1101–+.
- [Courteille et al., 1998] Courteille, P., Freeland, R. S., Heinzen, D. J., van Abeelen, F. A., and Verhaar, B. J. (1998). Observation of a Feshbach Resonance in Cold Atom Scattering. *Physical Review Letters*, 81 :69–72.
- [Crompvoets et al., 2001] Crompvoets, F. M. H., Bethlem, H. L., Jongma, R. T., and Meijer, G. (2001). A prototype storage ring for neutral molecules. *Nature*, 411 :174–176.
- [Danzl et al., 2008] Danzl, J. G., Haller, E., Gustavsson, M., Mark, M. J., Hart, R., Bouloufa, N., Dulieu, O., Ritsch, H., and Nagerl, H.-C. (2008). Quantum Gas of Deeply Bound Ground State Molecules. *Science*, page 1159909.
- [Deachapunya et al., 2008] Deachapunya, S., Fagan, P. J., Major, A. G., Reiger, E., Ritsch, H., Stefanov, A., Ulbricht, H., and Arndt, M. (2008). Slow beams of massive molecules. *European Physical Journal D*, 46 :307–313.
- [Degenhardt et al., 2003] Degenhardt, C., Binnewies, T., Wilpers, G., Sterr, U., Riehle, F., Lisdat, C., and Tiemann, E. (2003). Photoassociation spectroscopy of cold calcium atoms. *Phys. Rev. A*, 67(4) :043408–+.
- [Deiglmayr et al., 2008] Deiglmayr, J., Lange, J., Kraft, S. D., Grochola, A., Wester, R., Weidemüller, M., Aymar, M., and Dulieu, O. (2008). Formation of a gas of ultracold LiCs molecules. *APS Meeting Abstracts*, pages 26007–+.
- [DeMille, 2002] DeMille, D. (2002). Quantum computation with trapped polar molecules. *Phys. Rev. Lett.*, 88(6) :067901.
- [di Rosa, 2004] di Rosa, M. D. (2004). Laser-cooling molecules. *European Physical Journal D*, 31 :395–402.
- [Diemer et al., 1989] Diemer, U., Duchowicz, R., Ertel, M., Mehdizadeh, E., and Demtröder, W. (1989). Doppler-free polarization spectroscopy of the $B^1\Pi_u$ state of Cs_2 . *Chem. Phys. Lett.*, 164 :419–426.
- [D’Incao and Esry, 2008] D’Incao, J. P. and Esry, B. D. (2008). Suppression of Molecular Decay in Ultracold Gases without Fermi Statistics. *Physical Review Letters*, 100(16) :163201–+.
- [Dion et al., 2001] Dion, C. M., Drag, C., Dulieu, O., Laburthe Tolra, B., Masnou-Seeuws, F., and Pillet, P. (2001). Resonant Coupling in the Formation of Ultracold Ground State Molecules via Photoassociation. *Phys. Rev. Lett.*, 86 :2253–2256.
- [Dion et al., 2002] Dion, C. M., Dulieu, O., Comparat, D., de Souza Melo, W., Vanhaecke, N., Pillet, P., Beuc, R., Milošević, S., and Pichler, G. (2002). Photoionization and detection of ultracold Cs_2 molecules through diffuse bands. *European Physical Journal D*, 18 :365–370.
- [Donley et al., 2002] Donley, E. A., Claussen, N. R., Thompson, S. T., and Wieman, C. E. (2002). Atom-molecule coherence in a Bose-Einstein condensate. *Nature*, 417 :529–533.
- [Doyle et al., 2004] Doyle, J., Friedrich, B., Krems, R. V., and Masnou-Seeuws, F. (2004). Editorial : Quo vadis, cold molecules ? *European Physical Journal D*, 31 :149–164.

- [Drag et al., 2000] Drag, C., Laburthe Tolra, B., T'jampens, B., Comparat, D., Allegrini, M., Crubellier, A., and Pillet, P. (2000). Photoassociative Spectroscopy as a Self-Sufficient Tool for the Determination of the Cs Triplet Scattering Length. *Physical Review Letters*, 85 :1408–1411.
- [Dulieu and Masnou-Seeuws, 2003] Dulieu, O. and Masnou-Seeuws, F. (2003). Formation of ultracold molecules by photoassociation : theoretical developments. *Journal of the Optical Society of America B Optical Physics*, 20 :1083–1090.
- [Dulieu et al., 2006] Dulieu, O., Raoult, M., and Tiemann, E. (2006). INTRODUCTORY REVIEW : Cold molecules. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 39.
- [Elbs et al., 1999] Elbs, M., Knöckel, H., Laue, T., Samuelis, C., and Tiemann, E. (1999). Observation of the last bound levels near the Na₂ ground-state asymptote. *Phys. Rev. A*, 59 :3665–3672.
- [Elioff et al., 2003] Elioff, M. S., Valentini, J. J., and Chandler, D. W. (2003). Subkelvin Cooling NO Molecules via “Billiard-like” Collisions with Argon. *Science*, 302 :1940–1943.
- [Even et al., 2000] Even, U., Jortner, J., Noy, D., Lavie, N., and Cossart-Magos, C. (2000). Cooling of large molecules below 1 K and He clusters formation. *J. Chem. Phys.*, 112 :8068–8071.
- [Fatemi et al., 2001] Fatemi, F., Jones, K. M., Wang, H., Walmsley, I., and Lett, P. D. (2001). Dynamics of photoinduced collisions of cold atoms probed with picosecond laser pulses. *Phys. Rev. A*, 64(3) :033421–+.
- [Fatemi et al., 2000] Fatemi, F. K., Jones, K. M., and Lett, P. D. (2000). Observation of Optically Induced Feshbach Resonances in Collisions of Cold Atoms. *Physical Review Letters*, 85 :4462–4465.
- [Fatemi et al., 2002] Fatemi, F. K., Jones, K. M., Lett, P. D., and Tiesinga, E. (2002). Ultracold ground-state molecule production in sodium. *Phys. Rev. A*, 66(5) :053401–+.
- [Fioretti et al., 1999] Fioretti, A., Comparat, D., Drag, C., Amiot, C., Dulieu, O., Masnou-Seeuws, F., and Pillet, P. (1999). Photoassociative spectroscopy of the long-range state. *European Physical Journal D*, 5 :389–403.
- [Fioretti et al., 1999] Fioretti, A., Comparat, D., Drag, C., Gallagher, T., and Pillet, P. (1999). Long-range forces between cold atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 82 :1839.
- [Flambaum, 2008] Flambaum, V. V. (2008). Variation of fundamental constants in space and time : theory and observations. *ArXiv e-prints*, 801.
- [Flambaum and Dzuba, 2008] Flambaum, V. V. and Dzuba, V. A. (2008). Search for variation of the fundamental constants in atomic, molecular and nuclear spectra. *ArXiv e-prints*, 805.
- [Forrey et al., 1999] Forrey, R. C., Balakrishnan, N., Dalgarno, A., Haggerty, M. R., and Heller, E. J. (1999). Quasiresonant Energy Transfer in Ultracold Atom-Diatom Collisions. *Physical Review Letters*, 82 :2657–2660.
- [Fulton et al., 2004] Fulton, R., Bishop, A. I., and Barker, P. F. (2004). Optical Stark Decelerator for Molecules. *Phys. Rev. Lett.*, 93(24) :243004–+.
- [Fulton et al., 2006] Fulton, R., Bishop, A. I., Shneider, M. N., and Barker, P. F. (2006). Optical Stark deceleration of nitric oxide and benzene molecules using optical lattices. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 39 :1097–+.

- [Gabbanini et al., 2000] Gabbanini, C., Fioretti, A., Lucchesini, A., Gozzini, S., and Mazzoni, M. (2000). Cold Rubidium Molecules Formed in a Magneto-Optical Trap. *Physical Review Letters*, 84 :2814–2817.
- [Gasenzer, 2004a] Gasenzer, T. (2004a). High-light-intensity photoassociation in a Bose-Einstein condensate. *Phys. Rev. A*, 70(2) :021603–+.
- [Gasenzer, 2004b] Gasenzer, T. (2004b). Photoassociation dynamics in a Bose-Einstein condensate. *Phys. Rev. A*, 70(4) :043618–+.
- [Gensemer and Gould, 1998] Gensemer, S. D. and Gould, P. L. (1998). Ultracold Collisions Observed in Real Time. *Physical Review Letters*, 80 :936–939.
- [Gomez et al., 2007] Gomez, E., Black, A. T., Turner, L. D., Tiesinga, E., and Lett, P. D. (2007). Light forces in ultracold photoassociation. *Phys. Rev. A*, 75(1) :013420–+.
- [Góral et al., 2004] Góral, K., Köhler, T., Gardiner, S. A., Tiesinga, E., and Julienne, P. S. (2004). Adiabatic association of ultracold molecules via magnetic-field tunable interactions. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 37 :3457–3500.
- [Greiner et al., 2003] Greiner, M., Regal, C. A., and Jin, D. S. (2003). Emergence of a molecular Bose-Einstein condensate from a Fermi gas. *Nature*, 426 :537–540.
- [Gupta and Herschbach, 1999] Gupta, M. and Herschbach, D. (1999). A mechanical means to produce intense beams of slow molecules. *J. Phys. Chem. A*, 103 :10670.
- [Gupta and Herschbach, 2001] Gupta, M. and Herschbach, D. (2001). A mechanical means to produce intense beams of slow molecules. *J. Phys. Chem. A*, 105 :1626.
- [Haimberger et al., 2004] Haimberger, C., Kleinert, J., Bhattacharya, M., and Bigelow, N. P. (2004). Formation and detection of ultracold ground-state polar molecules. *Phys. Rev. A*, 70(2) :021402–+.
- [Hanna et al., 2007] Hanna, T. M., Köhler, T., and Burnett, K. (2007). Association of molecules using a resonantly modulated magnetic field. *Phys. Rev. A*, 75(1) :013606–+.
- [Herbig et al., 2003] Herbig, J., Kraemer, T., Mark, M., Weber, T., Chin, C., Nägerl, H.-C., and Grimm, R. (2003). Preparation of a Pure Molecular Quantum Gas. *Science*, 301 :1510–1513.
- [Hoekstra et al., 2007a] Hoekstra, S., Gilijamse, J. J., Sartakov, B., Vanhaecke, N., Scharfenberg, L., van de Meerakker, S. Y. T., and Meijer, G. (2007a). Optical Pumping of Trapped Neutral Molecules by Blackbody Radiation. *Physical Review Letters*, 98(13) :133001–+.
- [Hoekstra et al., 2007b] Hoekstra, S., Metsälä, M., Zieger, P. C., Scharfenberg, L., Gilijamse, J. J., Meijer, G., and van de Meerakker, S. Y. T. (2007b). Electrostatic trapping of metastable NH molecules. *Phys. Rev. A*, 76(6) :063408–+.
- [Hofferberth et al., 2006] Hofferberth, S., Lesanovsky, I., Fischer, B., Verdu, J., and Schmiedmayer, J. (2006). Radiofrequency-dressed-state potentials for neutral atoms. *Nature Physics*, 2 :710–716.
- [Hogan and Merkt, 2008] Hogan, S. D. and Merkt, F. (2008). Demonstration of Three-Dimensional Electrostatic Trapping of State-Selected Rydberg Atoms. *Physical Review Letters*, 100(4) :043001–+.
- [Hogan et al., 2007] Hogan, S. D., Sprecher, D., Andrist, M., Vanhaecke, N., and Merkt, F. (2007). Zeeman deceleration of H and D. *Phys. Rev. A*, 76(2) :023412–+.

- [Hogan et al., 2008] Hogan, S. D., Wiederkehr, A. W., Andrist, M., Schmutz, H., and Merkt, F. (2008). FAST TRACK COMMUNICATION : Slow beams of atomic hydrogen by multistage Zeeman deceleration. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 41 :1005–+.
- [Hudson et al., 2006a] Hudson, E. R., Lewandowski, H. J., Sawyer, B. C., and Ye, J. (2006a). Cold Molecule Spectroscopy for Constraining the Evolution of the Fine Structure Constant. *Physical Review Letters*, 96(14) :143004–+.
- [Hudson et al., 2006b] Hudson, E. R., Ticknor, C., Sawyer, B. C., Taatjes, C. A., Lewandowski, H. J., Bochinski, J. R., Bohn, J. L., and Ye, J. (2006b). Production of cold formaldehyde molecules for study and control of chemical reaction dynamics with hydroxyl radicals. *Phys. Rev. A*, 73(6) :063404–+.
- [Hummon et al., 2008] Hummon, M. T., Campbell, W. C., Lu, H.-I., Tsikata, E., Wang, Y., and Doyle, J. M. (2008). Magnetic trapping of atomic nitrogen (^{14}N) and cotrapping of NH (X-triplet-Sigma-). *ArXiv e-prints*, 802.
- [Hutson and Soldan, 2006] Hutson, J. M. and Soldan, P. (2006). Molecule formation in ultracold atomic gases. *Int. Rev. Phys. Chem.*, 25 :497.
- [Inouye et al., 1998] Inouye, S., Andrews, M. R., Stenger, J., Miesner, H.-J., Stamper-Kurn, D. M., and Ketterle, W. (1998). Observation of Feshbach resonances in a Bose-Einstein condensate. *Nature*, 392 :151–154.
- [Jelassi et al., 2006a] Jelassi, H., de Lesegno, B. V., and Pruvost, L. (2006a). Photoassociation spectroscopy of $^{87}\text{Rb}_2(5s_{1/2}+5p_{1/2})0_u^+$ long-range molecular states : Coupling with the $(5s_{1/2}+5p_{3/2})0_u^+$ series analyzed using the Lu-Fano approach. *Phys. Rev. A*, 74(1) :012510–+.
- [Jelassi et al., 2006b] Jelassi, H., Viaris de Lesegno, B., and Pruvost, L. (2006b). Photoassociation spectroscopy of $^{87}\text{Rb}_2(5s_{1/2}+5p_{1/2})0_g^-$ long-range molecular states : Analysis by Lu-Fano graph and improved LeRoy-Bernstein formula. *Phys. Rev. A*, 73(3) :032501–+.
- [Jochim et al., 2003] Jochim, S., Bartenstein, M., Altmeyer, A., Hendl, G., Riedl, S., Chin, C., Hecker Denschlag, J., and Grimm, R. (2003). Bose-Einstein Condensation of Molecules. *Science*, 302 :2101–2104.
- [Jones et al., 2006] Jones, K. M., Tiesinga, E., Lett, P. D., and Julienne, P. S. (2006). Ultracold photoassociation spectroscopy : Long-range molecules and atomic scattering. *Reviews of Modern Physics*, 78 :483–535.
- [Julienne et al., 2004] Julienne, P. S., Tiesinga, E., and Köhler, T. (2004). Making cold molecules by time-dependent Feshbach resonances. *Journal of Modern Optics*, 51 :1787–1806.
- [Junker et al., 2008] Junker, M., Dries, D., Welford, C., Hitchcock, J., Chen, Y. P., and Hulet, R. G. (2008). Photoassociation of a Bose-Einstein Condensate near a Feshbach Resonance. *ArXiv e-prints*, 803.
- [Kerman et al., 2004a] Kerman, A. J., Sage, J. M., Sainis, S., Bergeman, T., and Demille, D. (2004a). Production and State-Selective Detection of Ultracold RbCs Molecules. *Physical Review Letters*, 92(15) :153001–+.
- [Kerman et al., 2004b] Kerman, A. J., Sage, J. M., Sainis, S., Bergeman, T., and Demille, D. (2004b). Production of Ultracold, Polar RbCs* Molecules via Photoassociation. *Physical Review Letters*, 92(3) :033004–+.
- [Kleinert et al., 2007a] Kleinert, J., Haimberger, C., Zabawa, P. J., and Bigelow, N. P. (2007a). Manufacturing a thin wire electrostatic trap for ultracold polar molecules. *Review of Scientific Instruments*, 78 :3108–+.

- [Kleinert et al., 2007b] Kleinert, J., Haimberger, C., Zabawa, P. J., and Bigelow, N. P. (2007b). Trapping of Ultracold Polar Molecules with a Thin-Wire Electrostatic Trap. *Physical Review Letters*, 99(14) :143002–+.
- [Koch et al., 2006] Koch, C. P., Luc-Koenig, E., and Masnou-Seeuws, F. (2006). Making ultracold molecules in a two-color pump-dump photoassociation scheme using chirped pulses. *Phys. Rev. A*, 73(3) :033408–+.
- [Koch et al., 2004] Koch, C. P., Palao, J. P., Kosloff, R., and Masnou-Seeuws, F. (2004). Stabilization of ultracold molecules using optimal control theory. *Phys. Rev. A*, 70(1) :013402–+.
- [Köhler et al., 2006] Köhler, T., Góral, K., and Julienne, P. S. (2006). Production of cold molecules via magnetically tunable Feshbach resonances. *Reviews of Modern Physics*, 78 :1311–1361.
- [Kotochigova, 2007] Kotochigova, S. (2007). Prospects for Making Polar Molecules with Microwave Fields. *Physical Review Letters*, 99(7) :073003–+.
- [Kraemer et al., 2006] Kraemer, T., Mark, M., Waldburger, P., Danzl, J. G., Chin, C., Engeser, B., Lange, A. D., Pilch, K., Jaakkola, A., Naegerl, H. C., and Grimm, R. (2006). Evidence for efimov quantum states in an ultracold gas of cesium atoms. *Nature*, 440 :315.
- [Kraft et al., 2006] Kraft, S. D., Staunum, P., Lange, J., Vogel, L., Wester, R., and Weidemüller, M. (2006). Formation of ultracold LiCs molecules. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 39 :993–+.
- [Krems, 2005] Krems, R. V. (2005). Molecules near absolute zero and external field control of atomic and molecular dynamics. *Int. Rev. Phys. Chem.*, 24 :99 – 118.
- [Krems, 2006] Krems, R. V. (2006). Controlling Collisions of Ultracold Atoms with dc Electric Fields. *Physical Review Letters*, 96(12) :123202–+.
- [Krems, 2008] Krems, R. V. (2008). Cold controlled chemistry. *Phys. Chem. Chem. Phys.*
- [Kritsun et al., 2004] Kritsun, O., Boiko, O., and Metcalf, H. (2004). Focusing Rydberg Atoms in an Inhomogeneous dc Electric Field. *APS Meeting Abstracts*, pages D1023+.
- [Laburthe Tolra et al., 2003] Laburthe Tolra, B., Hoang, N., T’Jampens, B., Vanhaecke, N., Drag, C., Crubellier, A., Comparat, D., and Pillet, P. (2003). Controlling the formation of cold molecules via a Feshbach resonance. *Europhysics Letters*, 64 :171–177.
- [Lang et al., 2008] Lang, F., Straten, P. V. D., Brandstätter, B., Thalhammer, G., Winkler, K., Julienne, P. S., Grimm, R., and Hecker Denschlag, J. (2008). Cruising through molecular bound-state manifolds with radiofrequency. *Nature Physics*, 4 :223–226.
- [Lee et al., 2007] Lee, M. D., Köhler, T., and Julienne, P. S. (2007). Excited Thomas-Efimov levels in ultracold gases. *Phys. Rev. A*, 76(1) :012720–+.
- [Léonard et al., 2003] Léonard, J., Walhout, M., Mosk, A. P., Müller, T., Leduc, M., and Cohen-Tannoudji, C. (2003). Giant Helium Dimers Produced by Photoassociation of Ultracold Metastable Atoms. *Physical Review Letters*, 91(7) :073203–+.
- [Leroy and Bernstein, 1970] Leroy, R. J. and Bernstein, R. B. (1970). Dissociation Energy and Long-Range Potential of Diatomic Molecules from Vibrational Spacings of Higher Levels. *J. Chem. Phys.*, 52 :3869–3879.
- [Lett et al., 1993] Lett, P. D., Helmerson, K., Phillips, W. D., Ratliff, L. P., Rolston, S. L., and Wagshul, M. E. (1993). Spectroscopy of Na₂ by photoassociation of laser-cooled Na. *Physical Review Letters*, 71 :2200–2203.

- [Lev et al., 2008] Lev, B. L., Vukics, A., Hudson, E. R., Sawyer, B. C., Domokos, P., Ritsch, H., and Ye, J. (2008). Prospects for the cavity-assisted laser cooling of molecules. *Phys. Rev. A*, 77(2) :023402—+.
- [Lisdat et al., 2002] Lisdat, C., Vanhaecke, N., Comparat, D., and Pillet, P. (2002). Line shape analysis of two-colour photoassociation spectra on the example of the Cs ground state. *European Physical Journal D*, 21 :299–309.
- [Liu and Loesch, 2007] Liu, N.-N. and Loesch, H. (2007). Kinematic Slowing of Molecules Formed by Reactive Collisions. *Physical Review Letters*, 98(10) :103002—+.
- [Mancini et al., 2004] Mancini, M. W., Telles, G. D., Caires, A. R., Bagnato, V. S., and Marcassa, L. G. (2004). Observation of Ultracold Ground-State Heteronuclear Molecules. *Physical Review Letters*, 92(13) :133203—+.
- [Marinescu and You, 1998] Marinescu, M. and You, L. (1998). Controlling Atom-Atom Interaction at Ultralow Temperatures by dc Electric Fields. *Physical Review Letters*, 81 :4596–4599.
- [Marvet and Dantus, 1995] Marvet, U. and Dantus, M. (1995). Femtosecond photoassociation spectroscopy : coherent bond formation. *Chemical Physics Letters*, 245 :393–399.
- [Maunz et al., 2004] Maunz, P., Puppe, T., Schuster, I., Syassen, N., Pinkse, P. W. H., and Rempe, G. (2004). Cavity cooling of a single atom. *Nature*, 428 :50–52.
- [Maxwell et al., 2005] Maxwell, S. E., Brahms, N., Decarvalho, R., Glenn, D. R., Helton, J. S., Nguyen, S. V., Patterson, D., Petricka, J., Demille, D., and Doyle, J. M. (2005). High-Flux Beam Source for Cold, Slow Atoms or Molecules. *Physical Review Letters*, 95(17) :173201—+.
- [McAlexander et al., 1996] McAlexander, W. I., Abraham, E. R. I., and Hulet, R. G. (1996). Radiative lifetime of the 2P state of lithium. *Phys. Rev. A*, 54 :5—+.
- [McAlexander et al., 1995] McAlexander, W. I., Abraham, E. R. I., Ritchie, N. W. M., Williams, C. J., Stoof, H. T. C., and Hulet, R. G. (1995). Precise atomic radiative lifetime via photoassociative spectroscopy of ultracold lithium. *Phys. Rev. A*, 51 :871—+.
- [McCarthy et al., 2006] McCarthy, T. J., Timko, M. T., and Herschbach, D. R. (2006). Manipulation of slow molecular beams by static external fields. *J. Chem. Phys.*, 125 :3501—+.
- [McKenzie et al., 2002] McKenzie, C., Hecker Denschlag, J., Häffner, H., Browaeys, A., de Araujo, L. E., Fatemi, F. K., Jones, K. M., Simsarian, J. E., Cho, D., Simoni, A., Tiesinga, E., Julienne, P. S., Helmerson, K., Lett, P. D., Rolston, S. L., and Phillips, W. D. (2002). Photoassociation of Sodium in a Bose-Einstein Condensate. *Physical Review Letters*, 88(12) :120403—+.
- [Mickelson et al., 2005] Mickelson, P. G., Martinez, Y. N., Saenz, A. D., Nagel, S. B., Chen, Y. C., Killian, T. C., Pellegrini, P., and Côté, R. (2005). Spectroscopic Determination of the s-Wave Scattering Lengths of ^{86}Sr and ^{88}Sr . *Physical Review Letters*, 95(22) :223002—+.
- [Mies et al., 2000] Mies, F. H., Tiesinga, E., and Julienne, P. S. (2000). Manipulation of Feshbach resonances in ultracold atomic collisions using time-dependent magnetic fields. *Phys. Rev. A*, 61(2) :022721—+.
- [Mikosch et al., 2007] Mikosch, J., Frühling, U., Trippel, S., Schwalm, D., Weidemüller, M., and Wester, R. (2007). Evaporation of Buffer-Gas-Thermalized Anions out of a Multipole rf Ion Trap. *Physical Review Letters*, 98(22) :223001—+.
- [Miller et al., 1993] Miller, J. D., Cline, R. A., and Heinzen, D. J. (1993). Photoassociation spectrum of ultracold Rb atoms. *Physical Review Letters*, 71 :2204–2207.

- [Mølhave and Drewsen, 2000] Mølhave, K. and Drewsen, M. (2000). Formation of translationally cold MgH^+ and MgD^+ molecules in an ion trap. *Phys. Rev. A*, 62(1) :011401–+.
- [Monmayrant and Chatel, 2004] Monmayrant, A. and Chatel, B. (2004). New phase and amplitude high resolution pulse shaper. *Review of Scientific Instruments*, 75 :2668–2671.
- [Morigi et al., 2007] Morigi, G., Pinkse, P. W. H., Kowalewski, M., and de Vivie-Riedle, R. (2007). Cavity Cooling of Internal Molecular Motion. *Phys. Rev. Lett.*, 99(7) :073001–+.
- [Mosk et al., 1999] Mosk, A. P., Reynolds, M. W., Hijmans, T. W., and Walraven, J. T. M. (1999). Photoassociation of Spin-Polarized Hydrogen. *Physical Review Letters*, 82 :307–310.
- [Mukaiyama et al., 2004] Mukaiyama, T., Abo-Shaeer, J. R., Xu, K., Chin, J. K., and Ketterle, W. (2004). Dissociation and Decay of Ultracold Sodium Molecules. *Physical Review Letters*, 92(18) :180402–+.
- [Narevicius et al., 2008] Narevicius, E., Libson, A., Parthey, C. G., Chavez, I., Narevicius, J., Even, U., and Raizen, M. G. (2008). Stopping Supersonic Beams with a Series of Pulsed Electromagnetic Coils : An Atomic Coilgun. *Physical Review Letters*, 100(9) :093003–+.
- [Narevicius et al., 2007a] Narevicius, E., Libson, A., Riedel, M. F., Parthey, C. G., Chavez, I., Even, U., and Raizen, M. G. (2007a). Coherent Slowing of a Supersonic Beam with an Atomic Paddle. *Phys. Rev. Lett.*, 98(10) :103201–+.
- [Narevicius et al., 2007b] Narevicius, E., Parthey, C. G., Libson, A., Narevicius, J., Chavez, I., Even, U., and Raizen, M. G. (2007b). An atomic coilgun : using pulsed magnetic fields to slow a supersonic beam. *New Journal of Physics*, 9 :358–+.
- [Nikolov et al., 2000] Nikolov, A. N., Enscher, J. R., Eyler, E. E., H.Wang, Stwalley, W. C., and Gould, P. L. (2000). Efficient production of ground state potassium molecules at sub-mK temperatures by two-step photoassociation. *Phys. Rev. Lett.*, 84 :246.
- [Nikolov et al., 1999] Nikolov, A. N., Eyler, E. E., Wang, X. T., Li, J., Wang, H., Stwalley, W. C., and Gould, P. L. (1999). Observation of Ultracold Ground-State Potassium Molecules. *Phys. Rev. Lett.*, 82 :703–706.
- [Ooi et al., 2003] Ooi, C. H. R., Marzlin, K.-P., and Audretsch, J. (2003). Laser cooling of molecules via single spontaneous emission. *European Physical Journal D*, 22 :259–267.
- [Ospelkaus et al., 2006] Ospelkaus, C., Ospelkaus, S., Humbert, L., Ernst, P., Sengstock, K., and Bongs, K. (2006). Ultracold Heteronuclear Molecules in a 3D Optical Lattice. *Physical Review Letters*, 97(12) :120402–+.
- [Ospelkaus et al., 2008] Ospelkaus, S., Pe’er, A., Ni, K. ., Zirbel, J. J., Neyenhuis, B., Kotochigova, S., Julienne, P. S., Ye, J., and Jin, D. S. (2008). Ultracold dense gas of deeply bound heteronuclear molecules. *ArXiv e-prints*, 802.
- [Ostendorf et al., 2006] Ostendorf, A., Zhang, C. B., Wilson, M. A., Offenberger, D., Roth, B., and Schiller, S. (2006). Sympathetic Cooling of Complex Molecular Ions to Millikelvin Temperatures. *Physical Review Letters*, 97(24) :243005–+.
- [Ostendorf et al., 2008] Ostendorf, A., Zhang, C. B., Wilson, M. A., Offenberger, D., Roth, B., and Schiller, S. (2008). Erratum : Sympathetic Cooling of Complex Molecular Ions to Millikelvin Temperatures [Phys. Rev. Lett. 97, 243005 (2006)]. *Physical Review Letters*, 100(1) :019904–+.
- [Partridge et al., 2005] Partridge, G. B., Strecker, K. E., Kamar, R. I., Jack, M. W., and Hulet, R. G. (2005). Molecular Probe of Pairing in the BEC-BCS Crossover. *Physical Review Letters*, 95(2) :020404–+.

- [Patterson and Doyle, 2007] Patterson, D. and Doyle, J. M. (2007). Bright, guided molecular beam with hydrodynamic enhancement. *J. Chem. Phys.*, 126 :4307–+.
- [Pauly, 2000] Pauly, H. (2000). *Atom, Molecule and Clusterbeams I : Basic Theory, Production and Detection of Thermal Beams*. Springer-Verlag, Berlin.
- [Pe’Er et al., 2007] Pe’Er, A., Shapiro, E. A., Stowe, M. C., Shapiro, M., and Ye, J. (2007). Precise Control of Molecular Dynamics with a Femtosecond Frequency Comb. *Phys. Rev. Lett.*, 98(11) :113004–+.
- [Pillet et al., 2003] Pillet, P., Vanhaecke, N., Lisdat, C., Comparat, D., Dulieu, O., Crubellier, A., and Masnou-Seeuws, F. (2003). Ultra-cold Molecules : Formation, Trapping and Prospects. *Physica Scripta Volume T*, 105 :7–+.
- [Price et al., 2008] Price, G. N., Bannerman, S. T., Viering, K., Narevicius, E., and Raizen, M. G. (2008). Single-Photon Atomic Cooling. *Physical Review Letters*, 100(9) :093004–+.
- [Pupillo et al., 2008] Pupillo, G., Micheli, A., Büchler, H. P., and Zoller, P. (2008). Condensed Matter Physics with Cold Polar Molecules. *ArXiv e-prints*, 805.
- [Quéméner et al., 2008] Quéméner, G., Balakrishnan, N., and Krems, R. V. (2008). Vibrational energy transfer in ultracold molecule-molecule collisions. *Phys. Rev. A*, 77(3) :030704–+.
- [Quéméner et al., 2007] Quéméner, G., Launay, J.-M., and Honvault, P. (2007). Ultracold collisions between Li atoms and Li₂ diatoms in high vibrational states. *Phys. Rev. A*, 75(5) :050701–+.
- [Raab et al., 1982] Raab, M., Höning, G., Demtröder, W., and Vidal, C. R. (1982). High resolution laser spectroscopy of Cs₂. II. Doppler-free polarization spectroscopy of the C ¹Pi_u < – – X¹Σ_g⁺ system. *J. Chem. Phys.*, 76 :4370–4386.
- [Rangwala et al., 2003] Rangwala, S. A., Junglen, T., Rieger, T., Pinkse, P. W., and Rempe, G. (2003). Continuous source of translationally cold dipolar molecules. *Phys. Rev. A*, 67(4) :043406–+.
- [Rieger et al., 2005] Rieger, T., Junglen, T., Rangwala, S. A., Pinkse, P. W., and Rempe, G. (2005). Continuous Loading of an Electrostatic Trap for Polar Molecules. *Phys. Rev. Lett.*, 95(17) :173002–+.
- [Rieger et al., 2006] Rieger, T., Junglen, T., Rangwala, S. A., Rempe, G., Pinkse, P. W. H., and Bulthuis, J. (2006). Water vapor at a translational temperature of 1K. *Phys. Rev. A*, 73(6) :061402–+.
- [Rieger et al., 2007] Rieger, T., Windpassinger, P., Rangwala, S. A., Rempe, G., and Pinkse, P. W. H. (2007). Trapping of Neutral Rubidium with a Macroscopic Three-Phase Electric Trap. *Physical Review Letters*, 99(6) :063001–+.
- [Rivière et al., 2008] Rivière, P., Ruiz, C., and Rost, J.-M. (2008). Attosecond light-pulse-induced photoassociation. *Phys. Rev. A*, 77(3) :033421–+.
- [Rom et al., 2004] Rom, T., Best, T., Mandel, O., Widera, A., Greiner, M., Hänsch, T. W., and Bloch, I. (2004). State Selective Production of Molecules in Optical Lattices. *Physical Review Letters*, 93(7) :073002–+.
- [Ryu et al., 2002] Ryu, C., Freeland, R. S., Wynar, R., Comparat, D., and Heinzen, D. J. (2002). Formation, magnetic trapping, and collisions of ultracold Rb₂ molecules. In *Technical Digest. Summaries of papers presented at the Quantum Electronics and Laser Science Conference 2002. Conference Edition 100*, volume 1.

- [Sage et al., 2005] Sage, J. M., Sainis, S., Bergeman, T., and Demille, D. (2005). Optical Production of Ultracold Polar Molecules. *Phys. Rev. Lett.*, 94(20) :203001–+.
- [Salzmann et al., 2008] Salzmann, W., Mullins, T., Eng, J., Albert, M., Wester, R., Weidemüller, M., Merli, A., Weber, S. M., Sauer, F., Plewicky, M., Weise, F., Wöste, L., and Lindinger, A. (2008). Coherent Transients in the Femtosecond Photoassociation of Ultracold Molecules. *Physical Review Letters*, 100(23) :233003–+.
- [Salzmann et al., 2006] Salzmann, W., Poschinger, U., Wester, R., Weidemüller, M., Merli, A., Weber, S. M., Sauer, F., Plewicky, M., Weise, F., Esparza, A. M., Wöste, L., and Lindinger, A. (2006). Coherent control with shaped femtosecond laser pulses applied to ultracold molecules. *Phys. Rev. A*, 73(2) :023414–+.
- [Sawyer et al., 2007] Sawyer, B. C., Lev, B. L., Hudson, E. R., Stuhl, B. K., Lara, M., Bohn, J. L., and Ye, J. (2007). Magnetoelectrostatic Trapping of Ground State OH Molecules. *Physical Review Letters*, 98(25) :253002–+.
- [Schirmer, 2001] Schirmer, S. G. (2001). Laser cooling of internal molecular degrees of freedom for vibrationally hot molecules. *Phys. Rev. A*, 63(1) :013407–+.
- [Shaffer et al., 1999] Shaffer, J. P., Chalupczak, W., and Bigelow, N. P. (1999). Highly Excited States of Ultracold Molecules : Photoassociative Spectroscopy of Na₂. *Physical Review Letters*, 83 :3621–3624.
- [Sharan and Goswami, 2002] Sharan, A. and Goswami, D. (2002). Prospects of Ultrafast Pulse Shaping. *Current Science*, 82 :30.
- [Soldán et al., 2002] Soldán, P., Cvitaš, M. T., Hutson, J. M., Honvault, P., and Launay, J.-M. (2002). Quantum Dynamics of Ultracold Na+ Na₂ Collisions. *Physical Review Letters*, 89(15) :153201–+.
- [Staanum et al., 2006] Staantum, P., Kraft, S. D., Lange, J., Wester, R., and Weidemüller, M. (2006). Experimental Investigation of Ultracold Atom-Molecule Collisions. *Physical Review Letters*, 96(2) :023201–+.
- [Stwalley and Wang, 1999] Stwalley, W. C. and Wang, H. (1999). Photoassociation of Ultracold Atoms : A New Spectroscopic Technique. *Journal of Molecular Spectroscopy*, 195 :194–228.
- [Takasu et al., 2004] Takasu, Y., Komori, K., Honda, K., Kumakura, M., Yabuzaki, T., and Takahashi, Y. (2004). Photoassociation Spectroscopy of Laser-Cooled Ytterbium Atoms. *Physical Review Letters*, 93(12) :123202–+.
- [Takekoshi et al., 1998] Takekoshi, T., Patterson, B. M., and Knize, R. J. (1998). Observation of Optically Trapped Cold Cesium Molecules. *Physical Review Letters*, 81 :5105–5108.
- [Tannor and Bartana, 1999] Tannor, D. and Bartana, A. (1999). On the interplay of control fields and spontaneous emission in laser cooling. *Journal of Physical Chemistry A*, 103(49) :10359–10363.
- [Tannor et al., 1999] Tannor, D. J., Kosloff, R., and Bartana, A. (1999). Laser cooling of internal degrees of freedom of molecules by dynamically trapped states. *Faraday Discuss.*, 113 :365–383.
- [Tarbutt et al., 2004] Tarbutt, M. R., Bethlem, H. L., Hudson, J. J., Ryabov, V. L., Ryzhov, V. A., Sauer, B. E., Meijer, G., and Hinds, E. A. (2004). Slowing Heavy, Ground-State Molecules using an Alternating Gradient Decelerator. *Physical Review Letters*, 92(17) :173002–+.

- [Tarbutt et al., 2008] Tarbutt, M. R., Hudson, J. J., Sauer, B. E., and Hinds, E. A. (2008). Preparation and manipulation of molecules for fundamental physics tests. *ArXiv e-prints*, 803.
- [Thalhammer et al., 2005] Thalhammer, G., Theis, M., Winkler, K., Grimm, R., and Denschlag, J. H. (2005). Inducing an optical Feshbach resonance via stimulated Raman coupling. *Phys. Rev. A*, 71(3) :033403—+.
- [Thalhammer et al., 2006] Thalhammer, G., Winkler, K., Lang, F., Schmid, S., Grimm, R., and Denschlag, J. H. (2006). Long-Lived Feshbach Molecules in a Three-Dimensional Optical Lattice. *Physical Review Letters*, 96(5) :050402—+.
- [Thompson et al., 2005] Thompson, S. T., Hodby, E., and Wieman, C. E. (2005). Ultracold Molecule Production via a Resonant Oscillating Magnetic Field. *Physical Review Letters*, 95(19) :190404—+.
- [Thorn et al., 2008] Thorn, J. J., Schoene, E. A., Li, T., and Steck, D. A. (2008). Experimental Realization of an Optical One-Way Barrier for Neutral Atoms. *ArXiv e-prints*, 802.
- [Thorsheim et al., 1987] Thorsheim, H. R., Weiner, J., and Julienne, P. S. (1987). Laser-induced photoassociation of ultracold sodium atoms. *Physical Review Letters*, 58 :2420–2423.
- [Tojo et al., 2006] Tojo, S., Kitagawa, M., Enomoto, K., Kato, Y., Takasu, Y., Kumakura, M., and Takahashi, Y. (2006). High-Resolution Photoassociation Spectroscopy of Ultracold Ytterbium Atoms by Using the Intercombination Transition. *Physical Review Letters*, 96(15) :153201—+.
- [Tolra et al., 2001] Tolra, B. L., Drag, C., and Pillet, P. (2001). Observation of cold state-selected cesium molecules formed by stimulated Raman photoassociation. *Phys. Rev. A*, 64(6) :061401—+.
- [Tsai et al., 1997] Tsai, C. C., Freeland, R. S., Vogels, J. M., Boesten, H. M. J. M., Verhaar, B. J., and Heinzen, D. J. (1997). Two-Color Photoassociation Spectroscopy of Ground State Rb_2 . *Physical Review Letters*, 79 :1245–1248.
- [van de Meerakker et al., 2005a] van de Meerakker, S. Y., Smeets, P. H., Vanhaecke, N., Jongma, R. T., and Meijer, G. (2005a). Deceleration and Electrostatic Trapping of OH Radicals. *Physical Review Letters*, 94(2) :023004—+.
- [van de Meerakker et al., 2005b] van de Meerakker, S. Y., Vanhaecke, N., van der Loo, M. P., Groenenboom, G. C., and Meijer, G. (2005b). Direct Measurement of the Radiative Lifetime of Vibrationally Excited OH Radicals. *Physical Review Letters*, 95(1) :013003—+.
- [van de Meerakker et al., 2006] van de Meerakker, S. Y. T., Labazan, I., Hoekstra, S., Küpper, J., and Meijer, G. (2006). Production and deceleration of a pulsed beam of metastable $\text{NH}(\text{a}^1\Delta)$ radicals. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 39 :1077—+.
- [van de Meerakker and Meijer, 2007] van de Meerakker, S. Y. T. and Meijer, G. (2007). Experiments with Stark decelerated and trapped OH radicals. *Phys. Scr*, 76 :69—+.
- [van Veldhoven et al., 2005] van Veldhoven, J., Bethlem, H. L., and Meijer, G. (2005). ac Electric Trap for Ground-State Molecules. *Physical Review Letters*, 94(8) :083001—+.
- [van Veldhoven et al., 2004] van Veldhoven, J., Küpper, J., Bethlem, H. L., Sartakov, B., van Roij, A. J. A., and Meijer, G. (2004). Decelerated molecular beams for high-resolution spectroscopy. *European Physical Journal D*, 31 :337–349.

- [Vanhaecke et al., 2005] Vanhaecke, N., Comparat, D., and Pillet, P. (2005). Rydberg decelerator using a travelling electric-field gradient. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 38 :409–+.
- [Vanhaecke et al., 2002] Vanhaecke, N., de Souza Melo, W., Laburthe Tolra, B., Comparat, D., and Pillet, P. (2002). Accumulation of Cold Cesium Molecules via Photoassociation in a Mixed Atomic and Molecular Trap. *Physical Review Letters*, 89(6) :063001–+.
- [Vanhaecke and Dulieu, 2007] Vanhaecke, N. and Dulieu, O. (2007). Precision measurements with polar molecules : the role of the black body radiation. *Molecular Physics*, 105 :1723–1731.
- [Vanhaecke et al., 2004] Vanhaecke, N., Lisdat, C., T’jampens, B., Comparat, D., Crubellier, A., and Pillet, P. (2004). Accurate asymptotic ground state potential curves of Cs_2 from two-colour photoassociation. *European Physical Journal D*, 28 :351–360.
- [Vatasescu et al., 2000] Vatasescu, M., Dulieu, O., Amiot, C., Comparat, D., Drag, C., Kokoouline, V., Masnou-Seeuws, F., and Pillet, P. (2000). Multichannel tunneling in the $\text{Cs}_2 0_g^-$ photoassociation spectrum. *Phys. Rev. A*, 61(4) :044701–+.
- [Verhaar et al., 2001] Verhaar, B. J., Kokkelmans, S., van Kempen, E., Freeland, R. S., Wynar, R., Comparat, D., Ryu, C., and Heinzen, D. J. (2001). Spectroscopy of the Highest Rb_2 Bound States with 10 kHz Precision. *APS Meeting Abstracts*, pages H4002+.
- [Viteau et al., 2008] Viteau, M., Chotia, A., Allegrini, M., Bouloufa, N., Dulieu, O., Comparat, D., and Pillet, P. (2008). Optical Pumping and Vibrational Cooling of Molecules. *Science*, 321(5886) :232–234.
- [Vliegen et al., 2004] Vliegen, E., Wörner, H. J., Softley, T. P., and Merkt, F. (2004). Non-hydrogenic Effects in the Deceleration of Rydberg Atoms in Inhomogeneous Electric Fields. *Physical Review Letters*, 92(3) :033005–+.
- [Vogelius et al., 2002] Vogelius, I. S., Madsen, L. B., and Drewsen, M. (2002). Blackbody-Radiation-Assisted Laser Cooling of Molecular Ions. *Phys. Rev. Lett.*, 89(17) :173003–+.
- [Vogelius et al., 2004] Vogelius, I. S., Madsen, L. B., and Drewsen, M. (2004). Rotational cooling of molecules using lamps. *J. Phys. B*, 37 :4571–4574.
- [Vuletić and Chu, 2000] Vuletić, V. and Chu, S. (2000). Laser Cooling of Atoms, Ions, or Molecules by Coherent Scattering. *Physical Review Letters*, 84 :3787–3790.
- [Wang et al., 2004] Wang, D., Qi, J., Stone, M. F., Nikolayeva, O., Wang, H., Hattaway, B., Gensemer, S. D., Gould, P. L., Eyler, E. E., and Stwalley, W. C. (2004). Photoassociative Production and Trapping of Ultracold KRb Molecules. *Physical Review Letters*, 93(24) :243005–+.
- [Wang et al., 1996] Wang, H., Gould, P. L., and Stwalley, W. C. (1996). Photoassociative spectroscopy of ultracold ^{39}K atoms in a high-density vapor-cell magneto-optical trap. *Phys. Rev. A*, 53 :1216–+.
- [Wang et al., 1997] Wang, H., Wang, X. T., Gould, P. L., and Stwalley, W. C. (1997). Optical-Optical Double Resonance Photoassociative Spectroscopy of Ultracold ^{39}K Atoms near Highly Excited Asymptotes. *Physical Review Letters*, 78 :4173–4176.
- [Weickenmeier et al., 1985] Weickenmeier, W., Diemer, U., Wahl, M., Raab, M., Demtröder, W., and Müller, W. (1985). Accurate ground state potential of Cs_2 up to the dissociation limit. *J. Chem. Phys.*, 82 :5354–5363.

- [Weinacht et al., 1999] Weinacht, T. C., Ahn, J., and Bucksbaum, P. H. (1999). Controlling the shape of a quantum wavefunction. *Nature*, 397 :233–235.
- [Weiner, 2000] Weiner, A. M. (2000). Femtosecond pulse shaping using spatial light modulators. *Review of Scientific Instruments*, 71 :1929–1960.
- [Weiner et al., 1999] Weiner, J., Bagnato, V. S., Zilio, S., and Julienne, P. S. (1999). Experiments and theory in cold and ultracold collisions. *Reviews of Modern Physics*, 71 :1–85.
- [Weinstein et al., 1998] Weinstein, J. D., Decarvalho, R., Guillet, T., Friedrich, B., and Doyle, J. M. (1998). Magnetic trapping of calcium monohydride molecules at millikelvin temperatures. *Nature*, 395 :148–150.
- [Willitsch et al., 2008] Willitsch, S., Bell, M. T., Gingell, A. D., Procter, S. R., and Softley, T. P. (2008). Cold Reactive Collisions between Laser-Cooled Ions and Velocity-Selected Neutral Molecules. *Physical Review Letters*, 100(4) :043203–+.
- [Winkler et al., 2007] Winkler, K., Lang, F., Thalhammer, G., Straten, P. V. D., Grimm, R., and Denschlag, J. H. (2007). Coherent Optical Transfer of Feshbach Molecules to a Lower Vibrational State. *Physical Review Letters*, 98(4) :043201–+.
- [Winkler et al., 2005] Winkler, K., Thalhammer, G., Theis, M., Ritsch, H., Grimm, R., and Denschlag, J. H. (2005). Atom-Molecule Dark States in a Bose-Einstein Condensate. *Physical Review Letters*, 95(6) :063202–+.
- [Wohlfart et al., 2008] Wohlfart, K., Grätz, F., Filsinger, F., Haak, H., Meijer, G., and Küpper, J. (2008). Alternating-gradient focusing and deceleration of large molecules. *Phys. Rev. A*, 77(3) :031404–+.
- [Wright et al., 2005] Wright, M. J., Gensemer, S. D., Vala, J., Kosloff, R., and Gould, P. L. (2005). Control of Ultracold Collisions with Frequency-Chirped Light. *Physical Review Letters*, 95(6) :063001–+.
- [Wright et al., 2007] Wright, M. J., Pechkis, J. A., Carini, J. L., Kallush, S., Kosloff, R., and Gould, P. L. (2007). Coherent control of ultracold collisions with chirped light : Direction matters. *Phys. Rev. A*, 75(5) :051401–+.
- [Wynar et al., 2000] Wynar, R., Freeland, R. S., Han, D. J., Ryu, C., and Heinzen, D. J. (2000). Molecules in a Bose-Einstein Condensate. *Science*, 287 :1016–1019.
- [Xu et al., 2003] Xu, K., Mukaiyama, T., Abo-Shaeer, J. R., Chin, J. K., Miller, D. E., and Ketterle, W. (2003). Formation of Quantum-Degenerate Sodium Molecules. *Physical Review Letters*, 91(21) :210402–+.
- [Yamakita et al., 2007] Yamakita, Y., Takahashi, R., Ohno, K., Procter, S. R., Maguire, G., and Softley, T. P. (2007). Cooling effects in the Stark deceleration of Rydberg atoms/molecules with time-dependent electric fields. *Journal of Physics Conference Series*, 80 :2045–+.
- [Yasuda et al., 2006] Yasuda, M., Kishimoto, T., Takamoto, M., and Katori, H. (2006). Photoassociation spectroscopy of ^{88}Sr : Reconstruction of the wave function near the last node. *Phys. Rev. A*, 73(1) :011403–+.
- [Zahzam et al., 2006] Zahzam, N., Vogt, T., Mudrich, M., Comparat, D., and Pillet, P. (2006). Atom-Molecule Collisions in an Optically Trapped Gas. *Physical Review Letters*, 96(2) :023202–+.
- [Zirbel et al., 2008] Zirbel, J. J., Ni, K.-K., Ospelkaus, S., D’Incao, J. P., Wieman, C. E., Ye, J., and Jin, D. S. (2008). Collisional Stability of Fermionic Feshbach Molecules. *Physical Review Letters*, 100(14) :143201–+.

- [Zwierlein et al., 2003] Zwierlein, M. W., Stan, C. A., Schunck, C. H., Raupach, S. M., Gupta, S., Hadzibabic, Z., and Ketterle, W. (2003). Observation of Bose-Einstein Condensation of Molecules. *Physical Review Letters*, 91(25) :250401–+.

Chapitre 9

Chargement d'un piège dipolaire : vers la condensation de Bose-Einstein d'atomes et de molécules de césium

9.1 Introduction et contexte international

9.1.1 Condensation et chargement de pièges conservatifs

Un des succès majeurs du développement de la physique de la matière froide, grâce aux différentes techniques de refroidissement et de piégeage d'atomes fut l'obtention en 1995 par E. Cornell et C. Wieman d'un condensat de Bose-Einstein (BEC) dans une vapeur atomique diluée de ^{87}Rb [Anderson et al., 1995]. D'autres espèces atomiques furent à leur tour condensées : ^{23}Na [Davis et al., 1995], ^7Li [Bradley et al., 1995], ^1H [Fried et al., 1998], ^{85}Rb [Cornish et al., 2000a], $^4\text{He}^*$ [Robert et al., 2001b], ^{41}K [Modugno et al., 2001], ^{133}Cs [Weber et al., 2003], ^{174}Yb [Takasu et al., 2003], ^{52}Cr [Griesmaier et al., 2005], ^{39}K [Roati et al., 2007] et ^{170}Yb [Fukuhara et al., 2007]. Des condensats moléculaires de $^6\text{Li}_2$ [Jochim et al., 2003] et de $^{40}\text{K}_2$ [Greiner et al., 2003] ont également été formés¹. En dehors des aspects moléculaires très particuliers, et mentionnés au chapitre précédent, je ne parlerai presque pas dans cette partie de la physique très riche des atomes ou molécules fermioniques. Je renvoie pour tous les détails aux articles de revue ou aux livres [Dalfovo et al., 1999, Weiner et al., 1999, Anglin and Ketterle, 2002, Andersen, 2004, Ketterle, 2002, Cornell and Wieman, 2002, Leggett, 2001, Pethick and Smith, 2001, Jaksch and Zoller, 2005, Morsch and Oberthaler, 2006, Lewenstein et al., 2007, Bloch et al., 2007].

Les techniques pour former des gaz dégénérés d'atomes ont évolué, mais il reste difficile de les former en moins d'une seconde. En effet, si les techniques de refroidissement laser se sont améliorées, par exemple en utilisant le refroidissement dans le niveau fondamental de vibration d'un réseau optique ("3D Raman sideband cooling") [Kerman et al., 2000, Han et al., 2000, Treutlein et al., 2001, Han et al., 2001], la seule possibilité pour atteindre le régime quantique dégénéré est de charger les atomes dans un piège conservatif et de réaliser ensuite une étape de refroidissement évaporatif. Le piège conservatif le plus utilisé est le piège magnétique, mais il est peu confinant et le temps de collision permettant l'évaporation des

¹On pourrait ajouter à cette liste des condensats ceux de polaritons d'excitons [Kasprzak et al., 2006] et de magnons [Demokritov et al., 2006], obtenus en phase solide, mais les techniques mises en jeu sont parfois assez différentes de celles utilisées dans le cas des atomes froids.

atomes les plus chauds est donc faible. Ceci implique un temps relativement long, d'une dizaine de seconde typiquement, pour former un condensat de Bose-Einstein. En piégeant les atomes à la proximité immédiate d'une surface nanostructurée le piégeage et l'évaporation sont plus efficaces permettant la création rapide (moins d'une seconde) de condensats mais de $\sim 10^5$ atomes seulement [Hänsel et al., 2001]. Enfin, en 2001, l'utilisation d'un piège dipolaire réalisé en croisant deux laser à CO_2 focalisés, plus confinant a permis, en partant d'un simple MOT, de former des condensats assez gros ($\sim 5 \times 10^5$ atomes) en quelques secondes [Barrett et al., 2001, Granade et al., 2002, Cennini et al., 2003a, Cennini et al., 2003b]. Cette dernière méthode est parfois connue sous le nom de formation de "condensat tout-optique".

Le chargement efficace d'un piège dipolaire (ou quasi-électrostatique pour être plus précis) avec des lasers à CO_2 est resté longtemps une énigme, qui ne fut résolue qu'en 2003 par le travail sur l'atome d'Ytterbium [Takasu et al., 2003a]. Contrairement aux autres pièges, utilisant des laser Nd :YAG notamment (longueur d'onde $1,06 \mu\text{m}$), la grande longueur d'onde ($10,6 \mu\text{m}$) des deux lasers à CO_2 résulte en une forte divergence du faisceau laser autour de leur point commun de focalisation. Cette divergence crée une sorte de réservoir piégeant les atomes autour la (petite) zone centrale où les lasers se croisent. Le chargement s'effectue alors par thermalisation : lors des collisions le système atteint un équilibre thermique ou presque 20 % du nombre total d'atomes peut se trouver piégé dans la zone centrale dense alors que par un effet de réservoir thermique la température de l'ensemble de l'échantillon est à peine augmentée. La densité dans l'espace des phases est donc fortement augmentée dans la zone centrale.

Le chargement efficace d'un piège dipolaire est donc un point important qui fut par exemple étudié par le groupe de Carl Weiman [Kuppens et al., 2000]. Mais, cette technique de chargement, dite de "dimple" (fosse en français) [Pinkse et al., 1997, Stamper-Kurn et al., 1998b], s'avère, avec celle par refroidissement Raman, la plus efficace. L'utilisation de lasers à CO_2 impliquant d'utiliser des fenêtres (en ZnSe) spécialement transparentes à la lumière infrarouge, il est important de démontrer, pour des pièges dipolaires réalisés avec des lasers visibles ou proches infrarouge i.e. traversant les cellules de verre habituellement utilisées dans les expériences d'atomes froids, un chargement aussi efficace. A cause de la faible divergence du laser, il semble pour cela nécessaire de faire appel à un autre type de réservoir que celui produit par le laser lui-même, bien que cela soit possible en focalisant très fortement le laser au pris d'un nombre restreint d'atomes condensé [Takasu et al., 2003b]. Il est évidemment possible d'utiliser un autre piège dipolaire plus gros pour former le réservoir [Weber et al., 2003, Chaudhuri et al., 2007]. Un système plus simple fut démontré par le groupe de Paul Lett en utilisant le réservoir formé par un dark-SPOT [Ketterle et al., 1993] pour former efficacement un condensat de sodium [Dumke et al., 2006a], cette technique fut aussi utilisée très récemment sur le rubidium par le groupe de David Guery-Odelin [Couvert et al., 2008]. L'utilisation d'un réservoir magnétique, suggérée lors de notre proposition théorique, sur laquelle je vais évidemment revenir [Comparat et al., 2006], fut finalement réalisée, dans des conditions un peu différentes, pour l'atome de chrome dans les groupes de Tilman Pfau puis de Olivier Gorceix [Griesmaier et al., 2005, Beauvils et al., 2008].

9.1.2 Historique des expériences avec des BEC

Il n'est évidemment pas question ici de détailler, ni même d'énumérer, les sujets abordés par la physique des condensats. Mais, afin de montrer le type d'expériences envisageables, je

citerai tout de même, en m'excusant pour les oublis inévitables, certaines des grandes étapes des expériences menées avec des atomes bosoniques.

- En 1996 l'étude des excitations collectives [Jin et al., 1997, Jin et al., 1996, Mewes et al., 1996] et l'observation non destructive des condensats [Andrews et al., 1996].
- En 1997 l'étude de la superfluidité [Stoof et al., 1996, Houbiers et al., 1997, Onofrio et al., 2000], l'étude des interférences entre deux condensats [Andrews et al., 1997, Myatt et al., 1997], de la propagation du son [Andrews et al., 1997], la réalisation d'un condensat à deux composantes [Myatt et al., 1997, Hall et al., 1998, Hall et al., 1998], l'extraction d'atomes pour réaliser un laser à atomes [Mewes et al., 1997, Bloch et al., 1999, Hagley et al., 1999].
- En 1998 l'observation d'une résonance de Feshbach [Inouye et al., 1998, Cornish et al., 2000b] et le piégeage optique d'un condensat [Stamper-Kurn et al., 1998a].
- En 1999 l'étude des domaines de spin (spineur) [Stenger et al., 1998, Miesner et al., 1999], la création de solitons [Burger et al., 1999, Denschlag et al., 2000, Strecker et al., 2002, Denschlag et al., 2000] ou de vortex [Matthews et al., 1999, Madison et al., 2000, Chevy et al., 2000, Schweikhard et al., 2004], le ralentissement de la lumière traversant un BEC et les implications pour le stockage optique d'informations [Hau et al., 1999], les études des non-linéarités [Deng et al., 1999] et la spectroscopie (de Bragg) des vitesses dans un condensat [Stenger et al., 1999].
- En 2000, le début des études concernant les phases des gaz piégés à une ou deux dimensions (quasicondensat, régime de Tonks-Girardeau, de Berezinskii-Kosterlitz-Thouless, ...) [Petrov et al., 2000, Gorlitz et al., 2001, Paredes et al., 2004, Greiner et al., 2001, Kinoshita et al., 2002, Gerbier et al., 2003, Hadzibabic et al., 2006].
- En 2001 l'implosion d'un condensat [Donley et al., 2001, Roberts et al., 2001], la réalisation d'un BEC sur une puce atomique [Hansel et al., 2001, Ott et al., 2001] ou uniquement avec des lasers et non plus en utilisant un piège magnétique [Barrett et al., 2001], la réalisation d'un condensat d'espèces métastables [Robert et al., 2001a, Dos Santos et al., 2001]. L'année 2001 vit aussi le début des études des phénomènes d'atomes dégénérés en réseau avec l'étude des oscillations Josephson ou tunnel [Smerzi et al., 1997, Milburn et al., 1997, Cataliotti et al., 2001, Morsch and Oberthaler, 2006, Shin et al., 2004, Denschlag et al., 2002].
- En 2002, les mesures du spectre d'excitation d'un condensat [Steinhauer et al., 2002, Ozeri et al., 2005] et surtout le placement d'un condensat dans un réseau optique et la réalisation d'une transition entre régimes superfluide et isolant (transition de Mott) [Denschlag et al., 2002, Greiner et al., 2002, Lewenstein et al., 2007, Spielman et al., 2007] qui ouvrit le domaine de l'étude des phénomènes de transports tunnel et d'interactions entre sites [Hensinger et al., 2001, Albiez et al., 2005].
Viennent ensuite notamment toutes les études sur les gaz de fermions [O'Hara et al., 2002] ou mixte bosons-fermions [Hadzibabic et al., 2002] ou fermions-fermions [Zwierlein et al., 2006] notamment [Truscott et al., 2001, Roati et al., 2002]. Je les ai précédemment mentionnées dans la partie consacrée à la formation de molécules froides que je ne reprends donc pas ici. Je mentionne toutefois encore :
- En 2004, l'étude de l'effet Hall quantique par rotation d'un condensat [Schweikhard et al., 2004], la réalisation d'un interféromètre pour BEC [Shin et al., 2004, Wang et al., 2005, Fattori et al., 2008] et pour un gaz de Fermi, ce dernier ayant l'avantage de ne pas être perturbé par les interactions [Roati et al., 2004], et l'observation directe de la fonction d'onde de collision en onde s et d [Thomas et al., 2004].
- En 2005, Le piégeage d'un condensat dans un piège torique [Gupta et al., 2005], l'utilisa-

tion du bruit dans les images et observation de paires d'atomes corrélés [Greiner et al., 2005], le début des études sur les phénomènes de localisation quantique en utilisant des potentiels désordonnés [Lye et al., 2005, Clément et al., 2005, Fallani et al., 2008, Roati et al., 2008, Billy et al., 2008] ou l'observation des corrélations atomiques par détection des atomes uniques (effet Hanbury Brown et Twiss) [Öttl et al., 2005, Schellekens et al., 2005].

- En 2007, la mesure de la dépendance en température de la force de Casimir [Obrecht et al., 2007], le couplage fort entre un condensat et une cavité optique [Brennecke et al., 2007].
- En 2008, la réalisation d'un moteur Brownien quantique "Quantum ratchet" [Dana et al., 2008], l'utilisation d'un BEC comme sonde de champ magnétique [Aigner et al., 2008] ou l'excitation d'états de Rydberg [Heidemann et al., 2008].

9.1.3 L'atome de Césium : les pertes collisionnelles et le refroidissement évaporatif

Parmi les alcalins, le césium apparaissait dès le début comme un bon candidat pour la condensation de Bose-Einstein notamment grâce à la possibilité d'étudier et de modifier ses propriétés collisionnelles à l'aide de résonances de Feshbach intenses : un champ de quelques milli-Tesla suffit à passer d'un gaz attractif à un gaz répulsif en passant par un gaz parfait sans interaction [Verhaar et al., 1993]. Cette modification est très difficile à atteindre expérimentalement pour l'atome le plus populaire pour la condensation de Bose-Einstein qu'est l'atome de ^{87}Rb par exemple [Marte et al., 2002]. Les modifications des paramètres collisionnels de l'atome de césium alliées à la possibilité de former facilement des molécules froides dans $v = 0$ sont les aspects les plus importants qui nous ont poussé à poursuivre la quête de la condensation de Bose-Einstein de l'atome de césium avec une approche que je croyais simple : chargement à densité forte et haute température (pour éviter les pertes inélastiques) ce qui permettrait une très rapide condensation [Comparat et al., 2006]. De façon plus générale mon but fut de dégager un procédé simple et universel pour charger efficacement un piège dipolaire, ce qui serait un résultat utile pour toute la communauté "atomes froids".

Les premières tentatives en piège magnétique dans les groupes de J. Dalibard ou C. Foot [Söding et al., 1998, Guéry-Odelin et al., 1998, J. Arlt et al., 1998], toutes soldées par un échec, mirent en avant un problème majeur propre à l'atome de césium². Les états atomiques piégeables magnétiquement présentent un taux de collisions inélastiques à deux corps trop important pour parvenir au seuil de dégénérescence quantique. Il était donc nécessaire de travailler sur l'état de plus basse énergie du niveau fondamental. Cet état est attiré par les zones de champs magnétiques forts et les pièges magnétiques à trois dimensions ne sont donc plus utilisables. Fin 2002, l'équipe de Rudi Grimm à Innsbruck, mettant à profit leurs résultats concernant le comportement collisionnel du césium et les résonances de Feshbach [Weber et al., 2003, Rychtarik et al., 2004], est parvenue à la condensation du césium à l'aide d'un montage tout-optique utilisant des lasers CO_2 et Nd :YAG. L'un des problèmes des pièges lasers est que l'évaporation doit être réalisée en baissant la puissance du laser créant le piège optique ce qui a pour effet de diminuer le confinement ce qui ralentit l'évaporation. Le groupe de R. Grimm superposa un laser auxiliaire afin de réaliser un petit puits ("dimple") dans lequel les atomes s'accumulent ce qui permet d'augmenter la densité dans l'espace des phases avant de commencer l'évaporation [Stamper-Kurn et al., 1998]. En 2004 le même groupe réalisa un piégeage

²Beaucoup de problèmes posés par l'atome de césium se posent aussi pour l'atome de chrome et les techniques pour obtenir la condensation de Bose-Einstein de ces espèces se rejoignent parfois [Griesmaier et al., 2005].

bi-dimensionnel à l'aide d'un piège dit GOST (gravito-optical surface trap) où le condensat est produit au-dessus d'une surface diélectrique [Rychtarik et al., 2004]. Plus récemment Cheng Chin à Chicago réalisa la condensation de Bose-Einstein du césium en réalisant une évaporation rapide à l'aide d'une éjection magnétique des atomes les plus énergétiques dans le piège dipolaire à l'aide d'un laser Nd :YAG [Hung et al., 2008]. Cette technique d'éjection magnétique est ingénieuse car elle permet d'effectuer l'évaporation sans baisser la puissance du laser créant le piège optique, i.e. sans diminuer le confinement ce qui permet d'accélérer l'évaporation.

9.2 Chargement d'un piège et évaporation : notre quête de la condensation de Bose-Einstein

L'atome de césium requiert l'usage d'un piège dipolaire pour procéder à l'ultime étape de refroidissement, car, contrairement à un piège magnétique, ce piège optique permet de travailler avec l'état de plus basse énergie du niveau hyperfin fondamental $|f = 3, m_f = +3\rangle$ pour lequel les collisions inélastiques à deux corps sont supprimées.

Au cours de l'année 1998 Pierre Pillet a décidé de mettre en oeuvre une expérience visant à la réalisation d'un condensat de Bose-Einstein d'atomes de césium. Je n'ai pas participé au début de cette expérience basée au départ sur un piège hybride, combinant force magnétique et électrique, permettant une évaporation radio-fréquence sans déformation du potentiel, de façon similaire à ce que vient de réaliser C. Chin [Hung et al., 2008]. Les mémoires de thèses de S. Boussen [Boussen, 2002] et de N. Hoang [Hoang, 2002] y sont consacrés. Le piège hybride obtenu présentait des densités atomiques et des fréquences d'oscillation faibles, le temps d'évaporation (unidimensionnel) attendu était donc relativement long [Boussen et al., 2004]. Face à des problèmes de vide insuffisamment bon, cette tentative fut arrêtée en 2003.

Depuis octobre 2004, suite à l'arrivée d'Andréa Fioretti (chercheur) et de Guillaume Stern (thésard), rapidement rejoints par Emiliya Dimova (post-doc), j'ai relancé l'expérience consacrée à la réalisation d'un condensat de Bose-Einstein de césium. Cette tentative n'a toujours pas abouti, principalement à cause de problèmes expérimentaux (problème de vide, d'acquisition de données, de climatisation, de diodes, de stabilité ...). Début 2005, nous avons amélioré le mécanisme de transfert d'atomes froids entre un premier piège magnéto-optique et un deuxième où un vide plus poussé règne.

Début 2006, j'ai suggéré une nouvelle approche pour charger et former rapidement un condensat contenant un nombre important d'atomes suite au piégeage dipolaire d'atomes simultanément piégés dans le réservoir magnétique [Comparat et al., 2006]. Cette méthode s'adapterait, en principe, aux autres atomes froids et semblait être intéressante. Simultanément le groupe de Villeteuse, et plus particulièrement Bruno Laburthe-Tolra, développa des idées très similaires mais pour charger un piège de chrome. Nous avons alors décidé de publier cet article théorique en commun.

Nos premiers résultats montrent toutefois que les pertes inélastiques à deux ou trois corps sont plus importantes qu'attendues dans mon modèle qui ne comportait que les collisions en onde s , alors qu'aux températures où nous travaillons ($100\mu\text{K}$ ou plus) les ondes p et d peuvent aussi contribuer. La stratégie que nous développons à présent est donc basée sur un chargement à plus basse température d'un piège assez gros suivit d'une compression à l'aide d'un zoom optique, comme cela fut réalisé en 2005 par l'équipe de D. Weiss en Pennsylvanie [Kinoshita et al., 2005], afin d'accélérer l'étape d'évaporation. Nos travaux en cours concernent

donc le chargement optimal d'un piège dipolaire en vue de cette compression-évaporation. Nous sommes, à l'heure actuelle, en train de finir la comparaison des différentes possibilités d'un chargement : par mélasse optique, par dark-SPOT [Ketterle et al., 1993, Dumke et al., 2006b], par piège magnétique ou par refroidissement par bandes latérales (Raman dégénéré) [Kerman et al., 2000].

9.2.1 Etude d'un pousseur-guideur pour transférer les atomes : EPJD 42 299 (2007)

L'un des premiers travaux fut d'améliorer le transfert d'atomes, entre la première chambre MOT source et la seconde chambre MOT où s'effectuera le BEC, en mettant en place un faisceau "pousseur-guideur" [Dimova et al., 2007]. Un faisceau fortement décalé sur le rouge de la transition cyclante permet d'extraire les atomes d'un premier piège magnéto-optique ; il les guide ensuite par la force dipolaire pendant un temps avant de les laisser terminer leur course en expansion balistique jusqu'à un second piège magnéto-optique au niveau duquel les atomes sont recapturés. Ces résultats ont donné lieu à une publication commune avec le groupe d'Hélène Perrin du Laboratoire de Physique des Lasers de Villeteuse, qui a développé le même système de transfert appliqué au rubidium [Dimova et al., 2007]. Les résultats sont très similaires et je présente dans la figure 9.1 leurs données et la simulation effectuée en commun avec H. Perrin.

Le laser "pousseur-guideur" est désaccordé, de ~ 1 GHz, mais non asservi en fréquence ce qui rend le montage très simple à mettre en place. Ce montage présente néanmoins une efficacité de transfert de l'ordre de 70%, soit un flux au niveau du MOT inférieur de quelques 10^8 atomes/s qui pour notre montage est 10 fois plus important que pour un système de pousseur classique (décalage de quelques MHz et non de un GHz) comme développé dans les références [Cacciapuoti et al., 2001, Wohlleben et al., 2001]. En cela notre montage à des performances similaire, tout en restant très simple, à un MOT 2D [Dieckmann et al., 1998, Schoser et al., 2002, Lahaye et al., 2004] ou un LVIS (low velocity intense atomic source) qui ont en principe une efficacité de transfert proche de 100% [Lu et al., 1996, Cren et al., 2002].

Le principe de fonctionnement de notre pousseur-guideur est le suivant : il extrait dans un premier temps les atomes du premier MOT, avant de les pomper dans l'état hyperfin le plus bas ($f = 3$ dans le cas du césium). La pression de radiation exercée par le laser pousseur est alors plus faible, ce qui réduit fortement la vitesse longitudinale finale des atomes, qui peuvent être ainsi recapturés dans le second MOT. Ce faisceau laser joue aussi le rôle de guide dipolaire pour ces atomes car le décalage devient pour l'état $f = 3$ d'environ 10 GHz. Ce guidage permet aux atomes de passer au mieux le tube de pompage différentiel. Les atomes finissent ensuite leur trajet en expansion balistique jusqu'à la zone de recapture. Une modélisation expliquant les performances du faisceau pousseur a été proposée dans l'article et est visible sur la partie droite de la figure 9.1. Il est évidemment nécessaire de prendre en compte le pompage optique vers les états $f = 3$ pour rendre compte des résultats obtenus.

9.2.2 Modèle théorique du chargement d'un "dimple" et de l'évaporation : PRA 73 043410 (2006)

La stratégie que j'avais mise au point pour espérer atteindre la condensation de Bose-Einstein consistait à charger un piège dipolaire croisé confinant (un dimple) à partir d'un piège magnétique quadrupolaire [Comparat et al., 2006]. Ceci permettrait d'obtenir un échantillon d'atomes denses à une température d'une centaine de micro-Kelvin. En refroidissant les atomes

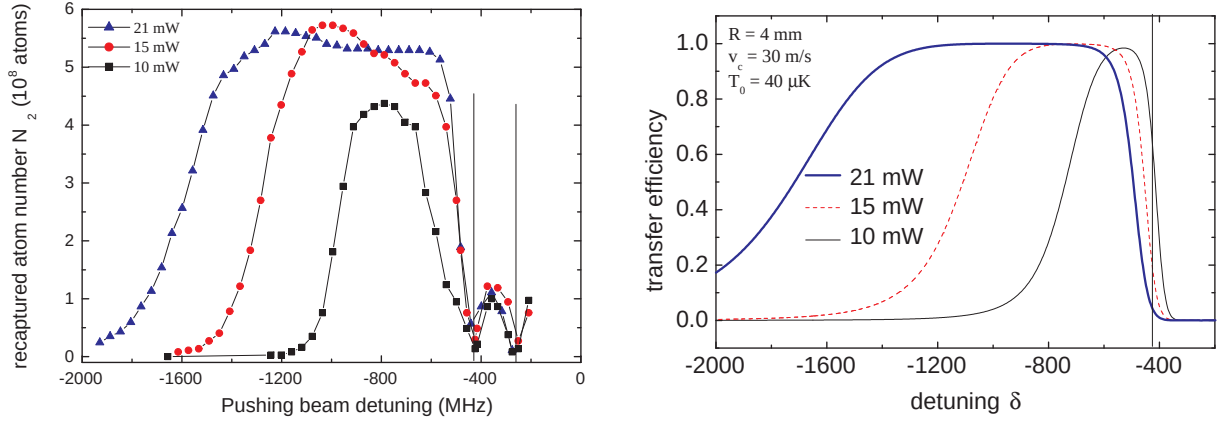


FIG. 9.1 – Gauche : nombre d’atomes de Rb (expérience effectuée à Villeteuse [Dimova et al., 2007]) recapturés dans le second MOT après leur transfert, en fonction du désaccord et pour plusieurs puissances du laser "pousseur-guideur". Droite : simulation avec une vitesse de capture du MOT de 30 m/s, une température initiale de 40 μ K et un rayon du MOT de départ de 4 mm.

par évaporation dans le piège optique, il serait alors, en principe, possible d’atteindre très rapidement la condensation. J’ai, dans un premier temps, proposé la modélisation du chargement du dimple à partir d’un piège magnétique quadrupolaire d’atomes. Les caractéristiques optimales du piège dipolaire doivent tenir compte de plusieurs paramètres : nombre d’atomes transférés, température, régime hydrodynamique, pertes à deux et trois corps, pertes de Majorana...

J’ai montré qu’un critère satisfaisant sur le nombre N_f final d’atomes dans le dimple à ne pas dépasser pour satisfaire ces contraintes, est donné par $N_f \sim \frac{4w_0^2}{\sigma}$, où w_0 est le waist du laser et σ la section efficace de diffusion. Pour un piège magnétique contenant $\sim 10^9$ atomes à une température initiale de ~ 150 μ K, on pourrait ainsi transférer plus de 10^8 atomes à une température de l’ordre de ~ 215 μ K dans un piège dipolaire formé de deux lasers Nd :YAG (ou à fibre dopée Yb) d’une puissance de 100 W chacun focalisés sur un waist de 100 μ m. Une fois le chargement effectué, le piège magnétique coupé et les atomes polarisés dans l’état $|f = 3, m_f = +3\rangle$, il est possible de procéder à un refroidissement évaporatif. J’ai établi des équations très simples pour le décrire. Ces équations considèrent entre autres l’influence de la gravité, du régime hydrodynamique, des pertes à trois corps et de la modification du potentiel de piégeage (waist, puissance laser). Elles montrent notamment qu’un taux de collisions élastiques de l’ordre de la fréquence d’oscillation avec une température suffisamment élevée permet une évaporation efficace tout en limitant l’influence des recombinaisons à trois corps. Différents schémas apparaissent entre la mise en place d’une lévitation pour contrecarrer la gravité, l’utilisation d’un zoom optique pour jouer sur le taux de collisions élastiques et la densité, l’utilisation des résonances de Feshbach... On pourrait notamment atteindre la condensation de Bose-Einstein en un temps inférieur à la seconde en perdant moins d’un facteur 10 sur le nombre d’atomes comme indiqué sur la figure 9.2.

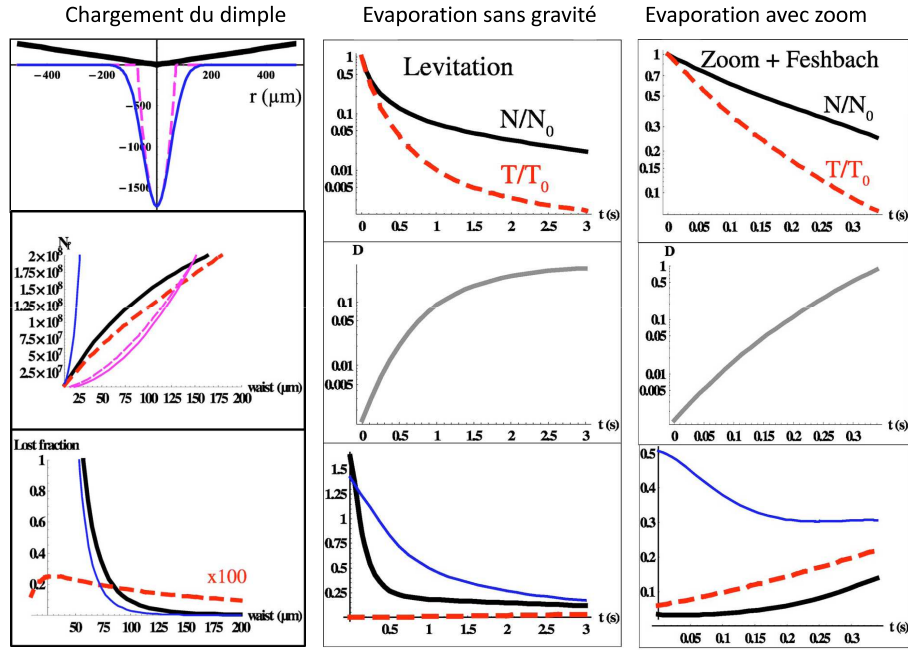


FIG. 9.2 – Gauche : Étude théorique en fonction du waist w_0 du chargement, à partir du piège magnétique contenant 10^9 atomes à $150\,\mu\text{K}$, du piège dipolaire Nd :YAG de 100W en fonction de son waist. En haut, les potentiels de piégeage (donnée en μK) magnétique (trait épais noir) et dipolaire (trait fin bleu pour $w_0 = 100\,\mu\text{m}$ et son approximation harmonique en rose). Au centre est donné N_f le nombre d'atomes transférés selon plusieurs approximations, la courbe noire indiquant l'équilibre thermodynamique sans perte. Les pertes sont évaluées en bas : pertes à trois corps (bleues), à deux corps (traits tireté rouge) et Majorana (noir). Le meilleur chargement est de $\sim 10^8$ atomes pour un waist de $100\,\mu\text{m}$ à une température de $200\,\mu\text{K}$. L'évaporation forcée d'un tel piège est évaluée au centre, dans le cas d'une lévitation magnétique supprimant l'effet de la gravité, et à droite, dans le cas d'une modification de la longueur de diffusion à l'aide d'une résonance de Feshbach pour passer de $100a_0$ au début à seulement $10a_0$ à la fin et avec une compression du waist effectuée à fréquence d'oscillation du piège constante. On donne (en haut) l'évolution du nombre d'atomes N et de la température T , (au milieu) de la densité dans l'espace des phases D et (en bas) des effets hydrodynamiques (trait fin bleu), à trois corps (trait épais noir) et de la gravité (trait tireté rouge).

9.2.3 Résultats expérimentaux

Cette étude théorique que j'ai effectuée a constitué le fil conducteur de nos expériences. De façon plus générale, la principale tâche de ces dernières années fut d'étudier le chargement d'un piège dipolaire croisé selon différentes méthodes, afin d'obtenir les meilleures conditions possibles de température et de nombre d'atomes avant évaporation.

Le piège magnétique quadrupolaire utilisé lors des expériences de chargement est réalisé à partir des bobines servant au MOT. Pour les pièges dipolaires, un premier montage utilisait un laser Nd :YAG de 20 W dont nous recyclions le faisceau pour constituer les deux bras du piège croisé. Un second montage basé sur un laser fibré de 100 W (à 1073 nm) permet ensuite de disposer de deux bras indépendants. Cette seconde version du piège optique possède une lentille mobile permettant de contrôler dynamiquement le waist du faisceau laser au niveau des atomes.

Les premières expériences de chargement se sont faites sur un piège dipolaire unique (on parle alors de piège à un bras), en focalisant un faisceau de 11.5 W sur un waist de 30 μm . Nous avons comparé trois types de chargement différents pour le piège dipolaire croisé : par piège magnétique, à partir d'un MOT comprimé ou d'une mélasse. Avec la méthode magnétique, près de 10^7 atomes furent chargés à une température de ~ 300 μK en 1s. Ces résultats étaient en bon accord avec ce que prédisait mon modèle.

La méthode "classique" (par MOT comprimé + mélasse) permet de charger 5×10^6 atomes à une température de ~ 350 μK . Une première étude de l'évaporation fut alors entreprise, et les premières limites de notre modèle apparurent : la chute de la température et du nombre d'atomes étaient plus lentes que prévu. On peut y voir un effet de la température élevée qui impose la présence d'autres ondes partielles de collisions, que la seule onde s prise en compte dans le calcul. Un effet de l'anisotropie du potentiel n'est pas non plus à exclure car la modélisation reposait sur l'hypothèse d'un piège 3D isotrope, ce qui n'est pas du tout le cas ici.

Si le nombre d'atomes lors du chargement à un bras semblait prometteur la densité était encore un peu faible. Nous avons donc cherché à charger un piège dipolaire croisé à 2 bras. Le piège optique était obtenu en focalisant les deux faisceaux de 10 W chacun sur un waist de 60 μm . Pour le chargement par piège magnétique, la température était proche de celle attendue (~ 140 μK) mais le nombre d'atomes chargé était presque cent fois plus faible qu'attendu, i.e. seulement de 6×10^4 . Le chargement par MOT comprimé donne des résultats identiques mais de manière plus simple. C'est à partir d'une mélasse que la densité D dans l'espace des phases maximales est atteinte : après 100 ms de phase de mélasse, le piège dipolaire croisé contient 7×10^4 atomes à une température de 80 μK , soit $D = 1.6 \times 10^{-5}$.

De tels chargements ne permettaient pas d'envisager un refroidissement évaporatif efficace. J'ai alors proposé une autre piste, qui est explorée actuellement : pour améliorer le chargement, il est nécessaire d'augmenter la taille du piège pour charger plus d'atomes, le zoom permettra ensuite de comprimer le piège pour augmenter la densité et se retrouver avec plus d'atomes qu'avant pour une taille de piège comparable. C'est cette piste qui est explorée actuellement. Les études se poursuivent, nous venons d'acquérir un modulateur acousto-optique qui nous permettra dans un futur très proche d'utiliser tout les 100 Watts disponible. Mais, en utilisant seulement deux faisceaux de 15 W, il est déjà possible de charger $\sim 5 \times 10^5$ atomes à une température de 50 μK dans un piège obtenu en croisant ces deux lasers sur un waist de 150 μm .

Nous avons également démontré la compression du piège sans diminution de la densité dans l'espace des phases. Tous les ingrédients semblaient donc réunis pour commencer l'évaporation et atteindre la condensation de Bose-Einstein du césium. Malheureusement le bris de notre cellule en verre rend l'avenir incertain et retarde encore un peu ces tests ultimes.

9.3 Évolution future des recherches

Il est difficile de prédire l'avenir de l'expérience qui peut dépendre en particulier de l'arrivée d'un nouvel étudiant en thèse ou d'un chercheur en stage post-doctoral.

Nous sommes donc, à l'heure actuelle, en train de comparer les différents chargement possibles par mélasse optique, par dark-SHOT, par piège magnétique ou par refroidissement par bandes latérales [Kerman et al., 2000]. Mon idée reste toujours de réaliser une étape de refroidissement évaporatif très rapide. Une possibilité est de s'inspirer de l'expérience de Cheng Chin [Hung et al., 2008] en lui ajoutant le zoom optique dont nous disposons.

L'espoir d'un chargement efficace d'un piège dipolaire froids et dense nous permet d'envisager des études concernant l'observation, toujours vierge, des états d'Efimov. Ceci pourrait être envisagé en utilisant une résonance de Feshbach qui existe pour un champ magnétique de 800 G [Lee et al., 2007]. Comme mentionné précédemment l'application de la photoassociation à un gaz condensé, ou simplement dense et froid, permettrait aussi des études concernant les collisions molécules-atomes, molécules-molécules.

Un objectif à moyen terme est de regrouper sur ce dispositif expérimental les activités molécules froides. Une demande de financement de type A.N.R. pourrait ainsi permettre la réalisation d'un dispositif non plus uniquement basé sur le refroidissement d'atomes de césium, mais comportant le refroidissement d'une autre espèce Yb ou Hg par exemple. Cela permettrait de moderniser l'expérience en la basant tout naturellement sur l'étude de molécules dipolaires et/ou fermioniques en régime de dégénérescence quantique, je pense par exemple à YbCs ou HgCs ou ... car l'Ytterbium ou le mercure comportent beaucoup d'isotopes ce qui pourrait permettre une grande richesse d'expériences.

Bibliographie

- [Aigner et al., 2008] Aigner, S., Della Pietra, L., Japha, Y., Entin-Wohlman, O., David, T., Salem, R., Folman, R., and Schmiedmayer, J. (2008). Long-Range Order in Electronic Transport Through Disordered Metal Films. *Science*, 319 :1226–.
- [Albiez et al., 2005] Albiez, M., Gati, R., Fölling, J., Hunsmann, S., Cristiani, M., and Oberthaler, M. K. (2005). Direct Observation of Tunneling and Nonlinear Self-Trapping in a Single Bosonic Josephson Junction. *Physical Review Letters*, 95(1) :010402–+.
- [Andersen, 2004] Andersen, J. (2004). Theory of the weakly interacting Bose gas. *REVIEWS OF MODERN PHYSICS*, 76(2) :599–639.
- [Anderson et al., 1995] Anderson, M., Ensher, J., Matthews, M., Wieman, C., and Cornell, E. (1995). Observation of bose-einstein condensation in a dilute atomic vapor. *Science*, 269 :198.
- [Andrews et al., 1996] Andrews, M., Mewes, M., vanDruten, N., Durfee, D., Kurn, D., and Ketterle, W. (1996). Direct, nondestructive observation of a bose condensate. *SCIENCE*, 273(5271) :84–87.
- [Andrews et al., 1997] Andrews, M., Townsend, C., Miesner, H., Durfee, D., Kurn, D., and Ketterle, W. (1997). Observation of interference between two Bose condensates. *SCIENCE*, 275(5300) :637–641.
- [Andrews et al., 1997] Andrews, M. R., Kurn, D. M., Miesner, H.-J., Durfee, D. S., Townsend, C. G., Inouye, S., and Ketterle, W. (1997). Propagation of Sound in a Bose-Einstein Condensate. *Physical Review Letters*, 79 :553–556.
- [Anglin and Ketterle, 2002] Anglin, J. and Ketterle, W. (2002). Bose-Einstein condensation of atomic gases. *NATURE*, 416(6877) :211–218.
- [Barrett et al., 2001] Barrett, M., Sauer, J., and Chapman, M. (2001). All-optical formation of an atomic Bose-Einstein condensate. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 8701(1).
- [Barrett et al., 2001] Barrett, M. D., Sauer, J. A., and Chapman, M. S. (2001). All-Optical Formation of an Atomic Bose-Einstein Condensate. *Physical Review Letters*, 87(1) :010404–+.
- [Beaufils et al., 2008] Beaufils, Q., Chicireanu, R., Zanon, T., Laburthe-Tolra, B., Maréchal, E., Vernac, L., Keller, J.-C., and Gorceix, O. (2008). All-optical production of chromium Bose-Einstein condensates. *Phys. Rev. A*, 77(6) :061601–+.
- [Billy et al., 2008] Billy, J., Josse, V., Zuo, Z., Bernard, A., Hambrecht, B., Lugan, P., Clément, D., Sanchez-Palencia, L., Bouyer, P., and Aspect, A. (2008). Direct observation of Anderson localization of matter waves in a controlled disorder. *Nature*, 453 :891–894.
- [Bloch et al., 2007] Bloch, I., Dalibard, J., and Zwerger, W. (2007). Many-Body Physics with Ultracold Gases. *ArXiv e-prints*, 704.

- [Bloch et al., 1999] Bloch, I., Hansch, T., and Esslinger, T. (1999). Atom laser with a cw output coupler. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 82(15) :3008–3011.
- [Boussen, 2002] Boussen, S. (2002). *Etude d'un piège hybride magnétique et optique pour la condensation de Bose-Einstein de l'atome de césium*. Université Paris XI.
- [Boussen et al., 2004] Boussen, S., Hoang, N., Guibal, S., Zahzam, N., Pruvost, L., Marescaux, D., Pinard, J., and Pillet, P. (2004). Prospect for BEC in a cesium gas : one-dimensional evaporative cooling in a hybrid magnetic and optical trap. *European Physical Journal D*, 28 :259–266.
- [Bradley et al., 1995] Bradley, C., Sackett, C., Tollett, J., and Hulet, R. (1995). Evidence of bose-einstein condensation in an atomic gas with attractive interactions. *Phys. Rev. Lett.*, 75(9) :1687.
- [Brennecke et al., 2007] Brennecke, F., Donner, T., Ritter, S., Bourdel, T., Köhl, M., and Esslinger, T. (2007). Cavity QED with a Bose-Einstein condensate. *Nature*, 450 :268–271.
- [Burger et al., 1999] Burger, S., Bongs, K., Dettmer, S., Ertmer, W., Sengstock, K., Sanpera, A., Shlyapnikov, G. V., and Lewenstein, M. (1999). Dark Solitons in Bose-Einstein Condensates. *Physical Review Letters*, 83 :5198–5201.
- [Cacciapuoti et al., 2001] Cacciapuoti, L., Castrillo, A., de Angelis, M., and Tino, G. (2001). A continuous cold atomic beam from a magneto-optical trap. *Eur. Phys. J. D*, 15 :245.
- [Cataliotti et al., 2001] Cataliotti, F., Burger, S., Fort, C., Maddaloni, P., Minardi, F., Trombettoni, A., Smerzi, A., and Inguscio, M. (2001). Josephson junction arrays with Bose-Einstein condensates. *SCIENCE*, 293(5531) :843–846.
- [Cennini et al., 2003a] Cennini, G., Ritt, G., Geckeler, C., and Weitz, M. (2003a). All-Optical Realization of an Atom Laser. *Physical Review Letters*, 91(24) :240408–+.
- [Cennini et al., 2003b] Cennini, G., Ritt, G., Geckeler, C., and Weitz, M. (2003b). Bose-Einstein condensation in a CO₂-laser optical dipole trap. *Applied Physics B : Lasers and Optics*, 77 :773–779.
- [Chaudhuri et al., 2007] Chaudhuri, S., Roy, S., and Unnikrishnan, C. S. (2007). Evaporative Cooling of Atoms to Quantum Degeneracy in an Optical Dipole Trap. *Journal of Physics Conference Series*, 80(1) :012036–+.
- [Chevy et al., 2000] Chevy, F., Madison, K., and Dalibard, J. (2000). Measurement of the angular momentum of a rotating Bose-Einstein condensate. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 85(11) :2223–2227.
- [Clément et al., 2005] Clément, D., Varón, A. F., Hugbart, M., Retter, J. A., Bouyer, P., Sanchez-Palencia, L., Gangardt, D. M., Shlyapnikov, G. V., and Aspect, A. (2005). Suppression of Transport of an Interacting Elongated Bose-Einstein Condensate in a Random Potential. *Physical Review Letters*, 95(17) :170409–+.
- [Comparat et al., 2006] Comparat, D., Fioretti, A., Stern, G., Dimova, E., Laburthe-Tolra, B., and Pillet, P. (2006). Optimized production of large bose einstein condensates. *Phys. Rev. A*, 73 :043410.
- [Comparat et al., 2006] Comparat, D., Fioretti, A., Stern, G., Dimova, E., Tolra, B. L., and Pillet, P. (2006). Optimized production of large Bose-Einstein condensates. *Physical Review A*, 73(4) :043410–+.

- [Cornell and Wieman, 2002] Cornell, E. and Wieman, C. (2002). Nobel Lecture : Bose-Einstein condensation in a dilute gas, the first 70 years and some recent experiments. *REVIEWS OF MODERN PHYSICS*, 74(3) :875–893.
- [Cornish et al., 2000a] Cornish, S., Claussen, N., Roberts, J., Cornell, E., and Wieman, C. (2000a). Stable ^{85}Rb Bose-Einstein condensates with widely tunable interactions. *Phys. Rev. Lett.*, 85 :1795.
- [Cornish et al., 2000b] Cornish, S., Claussen, N., Roberts, J., Cornell, E., and Wieman, C. (2000b). Stable Rb-85 Bose-Einstein condensates with widely tunable interactions. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 85(9) :1795–1798.
- [Couvert et al., 2008] Couvert, A., Jeppesen, M., Kawalec, T., Reinaudi, G., Mathevet, R., and Guery-Odelin, D. (2008). A quasi-monomode guided atom-laser from an all-optical Bose-Einstein condensate. *ArXiv e-prints*, 802.
- [Cren et al., 2002] Cren, P., Roos, C. F., Aclan, A., Dalibard, J., and Guéry-Odelin, D. (2002). Loading of a cold atomic beam into a magnetic guide. *European Physical Journal D*, 20 :107–116.
- [Dalfovo et al., 1999] Dalfovo, F., Giorgini, S., Pitaevskii, L. P., and Stringari, S. (1999). Theory of Bose-Einstein condensation in trapped gases. *Reviews of Modern Physics*, 71 :463–512.
- [Dana et al., 2008] Dana, I., Ramareddy, V., Talukdar, I., and Summy, G. S. (2008). Experimental Realization of Quantum-Resonance Ratchets at Arbitrary Quasimomenta. *Physical Review Letters*, 100(2) :024103–+.
- [Davis et al., 1995] Davis, K., Mewes, M.-O., Andrews, M., van Druten, N., Durfee, D., Kurn, D., and Ketterle, W. (1995). Bose-Einstein condensation in a gas of sodium atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 75(22) :3969.
- [Demokritov et al., 2006] Demokritov, S., Demidov, V., Dzyapko, O., Melkov, G., Serga, A., Hillebrands, B., and Slavin, A. (2006). Bose-Einstein condensation of quasi-equilibrium magnons at room temperature under pumping. *Nature*, 443 :430.
- [Deng et al., 1999] Deng, L., Hagley, E., Wen, J., Trippenbach, M., Band, Y., Julienne, P., Simsarian, J., Helmerson, K., Rolston, S., and Phillips, W. (1999). Four-wave mixing with matter waves. *NATURE*, 398(6724) :218–220.
- [Denschlag et al., 2000] Denschlag, J., Simsarian, J., Feder, D., Clark, C., Collins, L., Cubizolles, J., Deng, L., Hagley, E., Helmerson, K., Reinhardt, W., Rolston, S., Schneider, B., and Phillips, W. (2000). Generating solitons by phase engineering of a Bose-Einstein condensate. *SCIENCE*, 287(5450) :97–101.
- [Denschlag et al., 2002] Denschlag, J., Simsarian, J., Haffner, H., McKenzie, C., Browaeys, A., Cho, D., Helmerson, K., Rolston, S., and Phillips, W. (2002). A Bose-Einstein condensate in an optical lattice. *JOURNAL OF PHYSICS B-ATOMIC MOLECULAR AND OPTICAL PHYSICS*, 35(14) :3095–3110.
- [Dieckmann et al., 1998] Dieckmann, K., Spreeuw, R. J., Weidemüller, M., and Walraven, J. T. (1998). Two-dimensional magneto-optical trap as a source of slow atoms. *Phys. Rev. A*, 58 :3891–3895.
- [Dimova et al., 2007] Dimova, E., Morizot, O., Stern, G., Alzar, C. G., Fioretti, A., Lorent, V., Comparat, D., Perrin, H., and Pillet, P. (2007). Continuous transfer and laser guiding between two cold atom traps. *Eur. Phys. J. D*, 42 :299.

- [Donley et al., 2001] Donley, E., Claussen, N., Cornish, S., Roberts, J., Cornell, E., and Wieman, C. (2001). Dynamics of collapsing and exploding Bose-Einstein condensates. *NATURE*, 412(6844) :295–299.
- [Dos Santos et al., 2001] Dos Santos, F., Leonard, J., Wang, J., Barrelet, C., Perales, F., Rasel, E., Unnikrishnan, C., Leduc, M., and Cohen-Tannoudji, C. (2001). Bose-Einstein condensation of metastable helium. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 86(16) :3459–3462.
- [Dumke et al., 2006a] Dumke, R., Johanning, M., Gomez, E., Weinstein, J. D., Jones, K. M., and Lett, P. D. (2006a). All-optical generation and photoassociative probing of sodium Bose Einstein condensates. *New Journal of Physics*, 8 :64–+.
- [Dumke et al., 2006b] Dumke, R., Johanning, M., Gomez, E., Weinstein, J. D., Jones, K. M., and Lett, P. D. (2006b). All-optical generation and photoassociative probing of sodium Bose Einstein condensates. *New Journal of Physics*, 8 :64–+.
- [Fallani et al., 2008] Fallani, L., Fort, C., and Inguscio, M. (2008). Bose-Einstein condensates in disordered potentials. *ArXiv e-prints*, 804.
- [Fattori et al., 2008] Fattori, M., D’Errico, C., Roati, G., Zaccanti, M., Jona-Lasinio, M., Modugno, M., Inguscio, M., and Modugno, G. (2008). Atom Interferometry with a Weakly Interacting Bose-Einstein Condensate. *Physical Review Letters*, 100(8) :080405–+.
- [Fried et al., 1998] Fried, D., Killian, T., Willmann, L., Landhuis, D., Moss, S., Kleppner, D., and Greytak, T. (1998). Bose-einstein condensation of atomic hydrogen. *Phys. Rev. Lett.*, 81 :3811.
- [Fukuhara et al., 2007] Fukuhara, T., Sugawa, S., and Takahashi, Y. (2007). Bose-einstein condensation of an ytterbium isotope. *Phys. Rev. A*, 76 :051604.
- [Gerbier et al., 2003] Gerbier, F., Thywissen, J., Richard, S., Hugbart, M., Bouyer, P., and Aspect, A. (2003). Momentum distribution and correlation function of quasicondensates in elongated traps. *PHYSICAL REVIEW A*, 67(5).
- [Gorlitz et al., 2001] Gorlitz, A., Vogels, J., Leanhardt, A., Raman, C., Gustavson, T., Abo-Shaeer, J., Chikkatur, A., Gupta, S., Inouye, S., Rosenband, T., and Ketterle, W. (2001). Realization of Bose-Einstein condensates in lower dimensions. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 87(13).
- [Granade et al., 2002] Granade, S. R., Gehm, M. E., O’Hara, K. M., and Thomas, J. E. (2002). All-Optical Production of a Degenerate Fermi Gas. *Physical Review Letters*, 88(12) :120405–+.
- [Greiner et al., 2001] Greiner, M., Bloch, I., Mandel, O., Hansch, T., and Esslinger, T. (2001). Exploring phase coherence in a 2D lattice of Bose-Einstein condensates. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 87(16).
- [Greiner et al., 2002] Greiner, M., Mandel, O., Esslinger, T., Hansch, T., and Bloch, I. (2002). Quantum phase transition from a superfluid to a Mott insulator in a gas of ultracold atoms. *NATURE*, 415(6867) :39–44.
- [Greiner et al., 2003] Greiner, M., Regal, C., and Jin, D. (2003). Emergence of a molecular bose-Einstein condensate from a fermi gas. *Nature*, 426 :537.
- [Greiner et al., 2005] Greiner, M., Regal, C. A., Stewart, J. T., and Jin, D. S. (2005). Probing Pair-Correlated Fermionic Atoms through Correlations in Atom Shot Noise. *Physical Review Letters*, 94(11) :110401–+.

- [Griesmaier et al., 2005] Griesmaier, A., Werner, J., Hensler, S., Stuhler, J., and Pfau, T. (2005). Bose-einstein condensation of chromium. *Phys. Rev. Lett.*, 94 :160401.
- [Griesmaier et al., 2005] Griesmaier, A., Werner, J., Hensler, S., Stuhler, J., and Pfau, T. (2005). Bose-Einstein Condensation of Chromium. *Physical Review Letters*, 94(16) :160401–+.
- [Gupta et al., 2005] Gupta, S., Murch, K. W., Moore, K. L., Purdy, T. P., and Stamper-Kurn, D. M. (2005). Bose-Einstein Condensation in a Circular Waveguide. *Physical Review Letters*, 95(14) :143201–+.
- [Guéry-Odelin et al., 1998] Guéry-Odelin, D., Söding, J., Desbiolles, P., and Dalibard, J. (1998). Is bose-einstein condensation of atomic cesium possible? *Europhys. Lett.*, 45(1) :25.
- [Hänsel et al., 2001] Hänsel, W., Hommelhoff, P., Hänsch, T. W., and Reichel, J. (2001). Bose-Einstein condensation on a microelectronic chip. *Nature*, 413 :498–501.
- [Hadzibabic et al., 2006] Hadzibabic, Z., Krüger, P., Cheneau, M., Battelier, B., and Dalibard, J. (2006). Berezinskii-Kosterlitz-Thouless crossover in a trapped atomic gas. *Nature*, 441 :1118–1121.
- [Hadzibabic et al., 2002] Hadzibabic, Z., Stan, C. A., Dieckmann, K., Gupta, S., Zwierlein, M. W., Görlitz, A., and Ketterle, W. (2002). Two-Species Mixture of Quantum Degenerate Bose and Fermi Gases. *Physical Review Letters*, 88(16) :160401–+.
- [Hagley et al., 1999] Hagley, E., Deng, L., Kozuma, M., Wen, J., Helmersson, K., Rolston, S., and Phillips, W. (1999). A well-collimated quasi-continuous atom laser. *SCIENCE*, 283(5408) :1706–1709.
- [Hall et al., 1998] Hall, D., Matthews, M., Ensher, J., Wieman, C., and Cornell, E. (1998). Dynamics of component separation in a binary mixture of Bose-Einstein condensates. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 81(8) :1539–1542.
- [Han et al., 2000] Han, D., Wolf, S., Oliver, S., McCormick, C., Depue, M. T., and Weiss, D. S. (2000). 3D Raman Sideband Cooling of Cesium Atoms at High Density. *Physical Review Letters*, 85 :724–727.
- [Han et al., 2001] Han, D. J., Depue, M. T., and Weiss, D. S. (2001). Loading and compressing Cs atoms in a very far-off-resonant light trap. *Phys. Rev. A*, 63(2) :023405–+.
- [Hansel et al., 2001] Hansel, W., Hommelhoff, P., Hansch, T., and Reichel, J. (2001). Bose-Einstein condensation on a microelectronic chip. *NATURE*, 413(6855) :498–501.
- [Hau et al., 1999] Hau, L. V., Harris, S. E., Dutton, Z., and Behroozi, C. H. (1999). Light speed reduction to 17 metres per second in an ultracold atomic gas. *Nature*, 397 :594–598.
- [Heidemann et al., 2008] Heidemann, R., Raitzsch, U., Bendkowsky, V., Butscher, B., Löw, R., and Pfau, T. (2008). Rydberg Excitation of Bose-Einstein Condensates. *Physical Review Letters*, 100(3) :033601–+.
- [Hensinger et al., 2001] Hensinger, W. K., Häffner, H., Browaeys, A., Heckenberg, N. R., Helmersson, K., McKenzie, C., Milburn, G. J., Phillips, W. D., Rolston, S. L., Rubinsztein-Dunlop, H., and Upcroft, B. (2001). Dynamical tunnelling of ultracold atoms. *Nature*, 412 :52–55.
- [Hoang, 2002] Hoang, N. (2002). Développement d’un piège atomique lumineux et magnétique : étude du régime de collisions, perspectives pour la condensation de bose-einstein du césium. *Ph.D. Thesis, Université Paris XI*.

- [Houbiers et al., 1997] Houbiers, M., Ferwerda, R., Stoof, H. T. C., McAlexander, W. I., Sackett, C. A., and Hulet, R. G. (1997). Superfluid state of atomic ^6Li in a magnetic trap. *Phys. Rev. A*, 56 :4864–4878.
- [Hung et al., 2008] Hung, C.-L., Zhang, X., Gemelke, N., and Chin, C. (2008). Fast, Runaway Evaporative Cooling to Bose-Einstein Condensation in Optical Traps. *ArXiv e-prints*, 804.
- [Inouye et al., 1998] Inouye, S., Andrews, M. R., Stenger, J., Miesner, H.-J., Stamper-Kurn, D. M., and Ketterle, W. (1998). Observation of Feshbach resonances in a Bose-Einstein condensate. *Nature*, 392 :151–154.
- [Jaksch and Zoller, 2005] Jaksch, D. and Zoller, P. (2005). The cold atom Hubbard toolbox. *Annals of Physics*, 315 :52–79.
- [J.Arlt et al., 1998] J.Arlt, Bance, P., Hopkins, S., Martin, J., Webster, S., Wilson, A., Zetie, K., and Foot, C. (1998). Suppression of collisional loss from a magnetic trap. *J. Phys. B*, 31(7) :L321.
- [Jin et al., 1997] Jin, D., Matthews, M., Ensher, J., Wieman, C., and Cornell, E. (1997). Temperature-dependent damping and frequency shifts in collective excitations of a dilute Bose-Einstein condensate. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 78(5) :764–767.
- [Jin et al., 1996] Jin, D. S., Ensher, J. R., Matthews, M. R., Wieman, C. E., and Cornell, E. A. (1996). Collective Excitations of a Bose-Einstein Condensate in a Dilute Gas. *Physical Review Letters*, 77 :420–423.
- [Jochim et al., 2003] Jochim, S., Bartenstein, M., Altmeyer, A., Hendl, G., Riedl, S., Chin, C., Denschlag, J., and Grimm, R. (2003). Bose-Einstein condensation of molecules. *SCIENCE*, 302(5653) :2101–2103.
- [Kasprzak et al., 2006] Kasprzak, J., Richard, M., Kundermann, S., Baas, A., Jeambrun, P., Keeling, J., Marchetti, F., Szymaska, M., André, R., Staehli, J., Savona, V., Littlewood, P. B., Deveaud, B., and Dang, L. S. (2006). Bose-Einstein condensation of exciton polaritons. *Nature*, 443 :409.
- [Kerman et al., 2000] Kerman, A., Vuletic, V., Chin, C., and Chu, S. (2000). Beyond optical molasses : 3d raman sideband cooling of atomic cesium to high phase-space density. *Phys. Rev. Lett.*, 84(3) :439.
- [Kerman et al., 2000] Kerman, A. J., Vuletić, V., Chin, C., and Chu, S. (2000). Beyond Optical Molasses : 3D Raman Sideband Cooling of Atomic Cesium to High Phase-Space Density. *Physical Review Letters*, 84 :439–442.
- [Ketterle, 2002] Ketterle, W. (2002). Nobel lecture : When atoms behave as waves : Bose-Einstein condensation and the atom laser. *REVIEWS OF MODERN PHYSICS*, 74(4) :1131–1151.
- [Ketterle et al., 1993] Ketterle, W., Davis, K. B., Joffe, M. A., Martin, A., and Pritchard, D. E. (1993). High densities of cold atoms in a dark spontaneous-force optical trap. *Physical Review Letters*, 70 :2253–2256.
- [Kinoshita et al., 2004] Kinoshita, T., Wenger, T., and Weiss, D. (2004). Observation of a one-dimensional Tonks-Girardeau gas. *SCIENCE*, 305(5687) :1125–1128.
- [Kinoshita et al., 2005] Kinoshita, T., Wenger, T., and Weiss, D. (2005). All-optical bose-einstein condensation using a compressible crossed dipole trap. *Phys. Rev. A*, 71 :011602.

- [Kuppens et al., 2000] Kuppens, S. J. M., Corwin, K. L., Miller, K. W., Chupp, T. E., and Wieman, C. E. (2000). Loading an optical dipole trap. *Phys. Rev. A*, 62(1) :013406–+.
- [Lahaye et al., 2004] Lahaye, T., Vogels, J. M., Günter, K. J., Wang, Z., Dalibard, J., and Guéry-Odelin, D. (2004). Realization of a Magnetically Guided Atomic Beam in the Collisional Regime. *Physical Review Letters*, 93(9) :093003–+.
- [Lee et al., 2007] Lee, M. D., Köhler, T., and Julienne, P. S. (2007). Excited Thomas-Efimov levels in ultracold gases. *Phys. Rev. A*, 76(1) :012720–+.
- [Leggett, 2001] Leggett, A. (2001). Bose-Einstein condensation in the alkali gases : Some fundamental concepts. *REVIEWS OF MODERN PHYSICS*, 73(2) :307–356.
- [Lewenstein et al., 2007] Lewenstein, M., Sanpera, A., Ahufinger, V., Damski, B., Sen, A., and Sen, U. (2007). Ultracold atomic gases in optical lattices : mimicking condensed matter physics and beyond. *Advances in Physics*, 56 :243–379.
- [Lu et al., 1996] Lu, Z. T., Corwin, K. L., Renn, M. J., Anderson, M. H., Cornell, E. A., and Wieman, C. E. (1996). Low-Velocity Intense Source of Atoms from a Magneto-optical Trap. *Physical Review Letters*, 77 :3331–3334.
- [Lye et al., 2005] Lye, J. E., Fallani, L., Modugno, M., Wiersma, D. S., Fort, C., and Inguscio, M. (2005). Bose-Einstein Condensate in a Random Potential. *Physical Review Letters*, 95(7) :070401–+.
- [Madison et al., 2000] Madison, K., Chevy, F., Wohlleben, W., and Dalibard, J. (2000). Vortex formation in a stirred Bose-Einstein condensate. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 84(5) :806–809.
- [Marte et al., 2002] Marte, A., Volz, T., Schuster, J., Dürr, S., Rempe, G., van Kempen, E. G., and Verhaar, B. J. (2002). Feshbach Resonances in Rubidium 87 : Precision Measurement and Analysis. *Physical Review Letters*, 89 :B3202+.
- [Matthews et al., 1999] Matthews, M., Anderson, B., Haljan, P., Hall, D., Wieman, C., and Cornell, E. (1999). Vortices in a Bose-Einstein condensate. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 83(13) :2498–2501.
- [Mewes et al., 1997] Mewes, M., Andrews, M., Kurn, D., Durfee, D., Townsend, C., and Ketterle, W. (1997). Output coupler for Bose-Einstein condensed atoms. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 78(4) :582–585.
- [Mewes et al., 1996] Mewes, M.-O., Andrews, M. R., van Druten, N. J., Kurn, D. M., Durfee, D. S., Townsend, C. G., and Ketterle, W. (1996). Collective Excitations of a Bose-Einstein Condensate in a Magnetic Trap. *Physical Review Letters*, 77 :988–991.
- [Miesner et al., 1999] Miesner, H.-J., Stamper-Kurn, D. M., Stenger, J., Inouye, S., Chikkatur, A. P., and Ketterle, W. (1999). Observation of Metastable States in Spinor Bose-Einstein Condensates. *Physical Review Letters*, 82 :2228–2231.
- [Milburn et al., 1997] Milburn, G., Corney, J., Wright, E., and Walls, D. (1997). Quantum dynamics of an atomic Bose-Einstein condensate in a double-well potential. *PHYSICAL REVIEW A*, 55(6) :4318–4324.
- [Modugno et al., 2001] Modugno, G., Ferrari, G., Roati, G., Brecha, R., Simoni, A., and Inguscio, M. (2001). Bose-einstein condensation of potassium atoms by sympathetic cooling. *Science*, 294 :1320.

- [Morsch and Oberthaler, 2006] Morsch, O. and Oberthaler, M. (2006). Dynamics of Bose-Einstein condensates in optical lattices. *REVIEWS OF MODERN PHYSICS*, 78(1) :179–215.
- [Morsch and Oberthaler, 2006] Morsch, O. and Oberthaler, M. (2006). Dynamics of Bose-Einstein condensates in optical lattices. *Reviews of Modern Physics*, 78 :179–215.
- [Myatt et al., 1997] Myatt, C., Burt, E., Ghrist, R., Cornell, E., and Wieman, C. (1997). Production of two overlapping Bose-Einstein condensates by sympathetic cooling. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 78(4) :586–589.
- [Myatt et al., 1997] Myatt, C. J., Burt, E. A., Ghrist, R. W., Cornell, E. A., and Wieman, C. E. (1997). Production of Two Overlapping Bose-Einstein Condensates by Sympathetic Cooling. *Physical Review Letters*, 78 :586–589.
- [Obrecht et al., 2007] Obrecht, J. M., Wild, R. J., Antezza, M., Pitaevskii, L. P., Stringari, S., and Cornell, E. A. (2007). Measurement of the Temperature Dependence of the Casimir-Polder Force. *Physical Review Letters*, 98(6) :063201–+.
- [O’Hara et al., 2002] O’Hara, K. M., Hemmer, S. L., Gehm, M. E., Granade, S. R., and Thomas, J. E. (2002). Observation of a Strongly Interacting Degenerate Fermi Gas of Atoms. *Science*, 298 :2179–2182.
- [Onofrio et al., 2000] Onofrio, R., Raman, C., Vogels, J., Abo-Shaeer, J., Chikkatur, A., and Ketterle, W. (2000). Observation of superfluid flow in a Bose-Einstein condensed gas. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 85(11) :2228–2231.
- [Ott et al., 2001] Ott, H., Fortagh, J., Schlotterbeck, G., Grossmann, A., and Zimmermann, C. (2001). Bose-Einstein condensation in a surface microtrap. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 8723(23).
- [Öttl et al., 2005] Öttl, A., Ritter, S., Köhl, M., and Esslinger, T. (2005). Correlations and Counting Statistics of an Atom Laser. *Physical Review Letters*, 95(9) :090404–+.
- [Ozeri et al., 2005] Ozeri, R., Katz, N., Steinhauer, J., and Davidson, N. (2005). Colloquium : Bulk Bogoliubov excitations in a Bose-Einstein condensate. *Reviews of Modern Physics*, 77 :187–205.
- [Paredes et al., 2004] Paredes, B., Widera, A., Murg, V., Mandel, O., Folling, S., Cirac, I., Shlyapnikov, G., Hansch, T., and Bloch, I. (2004). Tonks-Girardeau gas of ultracold atoms in an optical lattice. *NATURE*, 429(6989) :277–281.
- [Pethick and Smith, 2001] Pethick, C. J. and Smith, H. (2001). *Bose-Einstein Condensation in Dilute Gases*. Cambridge University Press.
- [Petrov et al., 2000] Petrov, D., Shlyapnikov, G., and Walraven, J. (2000). Regimes of quantum degeneracy in trapped 1D gases. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 85(18) :3745–3749.
- [Pinkse et al., 1997] Pinkse, P. W. H., Mosk, A., Weidemüller, M., Reynolds, M. W., Hijmans, T. W., and Walraven, J. T. M. (1997). Adiabatically Changing the Phase-Space Density of a Trapped Bose Gas. *Physical Review Letters*, 78 :990–993.
- [Roati et al., 2004] Roati, G., de Mirandes, E., Ferlaino, F., Ott, H., Modugno, G., and Inguscio, M. (2004). Atom Interferometry with Trapped Fermi Gases. *Physical Review Letters*, 92(23) :230402–+.
- [Roati et al., 2008] Roati, G., D’Errico, C., Fallani, L., Fattori, M., Fort, C., Zaccanti, M., Modugno, G., Modugno, M., and Inguscio, M. (2008). Anderson localization of a non-interacting Bose-Einstein condensate. *Nature*, 453 :895–898.

- [Roati et al., 2002] Roati, G., Riboli, F., Modugno, G., and Inguscio, M. (2002). Fermi-Bose quantum degenerate K-40-Rb-87 mixture with attractive interaction. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 89(15).
- [Roati et al., 2007] Roati, G., Zaccanti, M., D’Errico, C., Catani, J., Modugno, M., Simoni, A., Inguscio, M., and Modugno, G. (2007). ^{39}K bose-einstein condensate with tunable interactions. *Phys. Rev. Lett.*, 99 :010403.
- [Robert et al., 2001a] Robert, A., Sirjean, O., Browaeys, A., Poupard, J., Nowak, S., Boiron, D., Westbrook, C., and Aspect, A. (2001a). A Bose-Einstein condensate of metastable atoms. *SCIENCE*, 292(5516) :461–464.
- [Robert et al., 2001b] Robert, A., Sirjean, O., Browaeys, A., Poupard, J., Nowak, S., Boiron, D., Westbrook, C., and Aspect, A. (2001b). A bose-einstein condensate of metastable atoms. *Science*, 292 :461.
- [Roberts et al., 2001] Roberts, J., Claussen, N., Cornish, S., Donley, E., Cornell, E., and Wieman, C. (2001). Controlled collapse of a Bose-Einstein condensate. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 86(19) :4211–4214.
- [Rychtarik et al., 2004] Rychtarik, D., Enseger, B., Nägerl, H.-C., and Grimm, R. (2004). Two-dimensional bose-einstein condensate in an optical surface trap. *Phys. Rev. Lett.*, 92(17) :173003.
- [Schellekens et al., 2005] Schellekens, M., Hoppeler, R., Perrin, A., Gomes, J. V., Boiron, D., Aspect, A., and Westbrook, C. I. (2005). Hanbury Brown Twiss Effect for Ultracold Quantum Gases. *Science*, 310 :648–651.
- [Schoser et al., 2002] Schoser, J., Batär, A., Löw, R., Schweikhard, V., Grabowski, A., Ovchinnikov, Y. B., and Pfau, T. (2002). Intense source of cold Rb atoms from a pure two-dimensional magneto-optical trap. *Phys. Rev. A*, 66(2) :023410–+.
- [Schweikhard et al., 2004] Schweikhard, V., Coddington, I., Engels, P., Mogendorff, V. P., and Cornell, E. A. (2004). Rapidly Rotating Bose-Einstein Condensates in and near the Lowest Landau Level. *Physical Review Letters*, 92(4) :040404–+.
- [Söding et al., 1998] Söding, J., Guéry-Odelin, D., Desbiolles, P., Ferrari, G., and Dalibard, J. (1998). Giant spin relaxation of an ultracold cesium gas. *Phys. Rev. Lett.*, 80(9) :1869.
- [Shin et al., 2004] Shin, Y., Saba, M., Pasquini, T., Ketterle, W., Pritchard, D., and Leanhardt, A. (2004). Atom interferometry with Bose-Einstein condensates in a double-well potential. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 92(5).
- [Shin et al., 2004] Shin, Y., Saba, M., Pasquini, T. A., Ketterle, W., Pritchard, D. E., and Leanhardt, A. E. (2004). Atom Interferometry with Bose-Einstein Condensates in a Double-Well Potential. *Physical Review Letters*, 92(5) :050405–+.
- [Smerzi et al., 1997] Smerzi, A., Fantoni, S., Giovanazzi, S., and Shenoy, S. (1997). Quantum coherent atomic tunneling between two trapped Bose-Einstein condensates. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 79(25) :4950–4953.
- [Spielman et al., 2007] Spielman, I. B., Phillips, W. D., and Porto, J. V. (2007). Mott-Insulator Transition in a Two-Dimensional Atomic Bose Gas. *Physical Review Letters*, 98(8) :080404–+.
- [Stamper-Kurn et al., 1998] Stamper-Kurn, D., Miesner, H.-J., Chikkatur, A., Inouye, S., Stenger, J., and Ketterle, W. (1998). Reversible formation of a bose-einstein condensate. *Phys. Rev. Lett.*, 81 :2194.

- [Stamper-Kurn et al., 1998a] Stamper-Kurn, D. M., Andrews, M. R., Chikkatur, A. P., Inouye, S., Miesner, H.-J., Stenger, J., and Ketterle, W. (1998a). Optical Confinement of a Bose-Einstein Condensate. *Physical Review Letters*, 80 :2027–2030.
- [Stamper-Kurn et al., 1998b] Stamper-Kurn, D. M., Miesner, H.-J., Chikkatur, A. P., Inouye, S., Stenger, J., and Ketterle, W. (1998b). Reversible Formation of a Bose-Einstein Condensate. *Physical Review Letters*, 81 :2194–2197.
- [Steinhauer et al., 2002] Steinhauer, J., Ozeri, R., Katz, N., and Davidson, N. (2002). Excitation Spectrum of a Bose-Einstein Condensate. *Physical Review Letters*, 88(12) :120407–+.
- [Stenger et al., 1999] Stenger, J., Inouye, S., Chikkatur, A. P., Stamper-Kurn, D. M., Pritchard, D. E., and Ketterle, W. (1999). Bragg Spectroscopy of a Bose-Einstein Condensate. *Physical Review Letters*, 82 :4569–4573.
- [Stenger et al., 1998] Stenger, J., Inouye, S., Stamper-Kurn, D. M., Miesner, H.-J., Chikkatur, A. P., and Ketterle, W. (1998). Spin domains in ground-state Bose-Einstein condensates. *Nature*, 396 :345–348.
- [Stoof et al., 1996] Stoof, H., Houbiers, M., Sackett, C., and Hulet, R. (1996). Superfluidity of spin-polarized Li-6. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 76(1) :10–13.
- [Strecker et al., 2002] Strecker, K., Partridge, G., Truscott, A., and Hulet, R. (2002). Formation and propagation of matter-wave soliton trains. *NATURE*, 417(6885) :150–153.
- [Takasu et al., 2003a] Takasu, Y., Honda, K., Komori, K., Kuwamoto, T., Kumakura, M., Takahashi, Y., and Yabuzaki, T. (2003a). High-Density Trapping of Cold Ytterbium Atoms by an Optical Dipole Force. *Physical Review Letters*, 90(2) :023003–+.
- [Takasu et al., 2003b] Takasu, Y., Maki, K., Komori, K., Takano, T., Honda, K., Kumakura, M., Yabuzaki, T., and Takahashi, Y. (2003b). Spin-Singlet Bose-Einstein Condensation of Two-Electron Atoms. *Physical Review Letters*, 91(4) :040404–+.
- [Takasu et al., 2004] Takasu, Y., Maki, K., Komori, K., Takano, T., Honda, K., Kumakura, M., Yabuzaki, T., and Takahashi, Y. (2004). Spin-singlet bose-einstein condensation of two-electron atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 70 :013404.
- [Thomas et al., 2004] Thomas, N. R., Kjaergaard, N., Julienne, P. S., and Wilson, A. C. (2004). Imaging of s and d Partial-Wave Interference in Quantum Scattering of Identical Bosonic Atoms. *Physical Review Letters*, 93(17) :173201–+.
- [Treutlein et al., 2001] Treutlein, P., Chung, K. Y., and Chu, S. (2001). High-brightness atom source for atomic fountains. *Phys. Rev. A*, 63(5) :051401–+.
- [Truscott et al., 2001] Truscott, A., Strecker, K., McAlexander, W., Partridge, G., and Hulet, R. (2001). Observation of Fermi pressure in a gas of trapped atoms. *SCIENCE*, 291(5513) :2570–2572.
- [Verhaar et al., 1993] Verhaar, B. J., Gibble, K., and Chu, S. (1993). Cold collision properties derived from frequency shifts in a cesium fountain. *Phys. Rev. A*, 48 :R3429.
- [Wang et al., 2005] Wang, Y.-J., Anderson, D. Z., Bright, V. M., Cornell, E. A., Diot, Q., Kishimoto, T., Prentiss, M., Saravanan, R. A., Segal, S. R., and Wu, S. (2005). Atom Michelson Interferometer on a Chip Using a Bose-Einstein Condensate. *Physical Review Letters*, 94(9) :090405–+.
- [Weber et al., 2003] Weber, T., Herbig, J., Mark, M., Nägerl, H., and Grimm, R. (2003). Bose-Einstein Condensation of Cesium. *Science*, 299 :232–235.

- [Weber et al., 2003] Weber, T., Herbig, J., Mark, M., Nägerl, H.-C., and Grimm, R. (2003). Bose-einstein condensation of cesium. *Science*, 299 :232.
- [Weiner et al., 1999] Weiner, J., Bagnato, V., Zilio, S., and Julienne, P. (1999). Experiments and theory in cold and ultracold collisions. *REVIEWS OF MODERN PHYSICS*, 71(1) :1–85.
- [Wohlleben et al., 2001] Wohlleben, W., Chevy, F., Madison, K., and Dalibard, J. (2001). An atom faucet. *Eur. Phys. J. D*, 15 :237.
- [Zwierlein et al., 2006] Zwierlein, M. W., Schirotzek, A., Schunck, C. H., and Ketterle, W. (2006). Fermionic Superfluidity with Imbalanced Spin Populations. *Science*, 311 :492–496.

Chapitre 10

Étude des conditions d'adiabaticité

10.1 Introduction et contexte international

Le processus "adiabatique", du grec *adiabatos*, "qui ne peut être traversé", a été introduit, avec parfois des sens différents [Laidler, 1994], par Carnot (en 1824) et W. J. M. Rankine (en 1858) en thermodynamique, puis par Boltzmann (en 1866) dans la mécanique classique. En 1911-1916 Paul Ehrenfest utilise l'invariance adiabatique dans le développement de la "vieille" théorie quantique. En 1928, Fritz London introduit les processus adiabatiques dans la cinétique chimique et Born et Fock [Born and Fock, 1928] démontrent le théorème adiabatique quantique qui nous intéresse ici.

Une évolution adiabatique quantique se produit quand un état quantique, $|\Psi(t)\rangle$ préparé, à l'instant $t = 0$, dans un état propre $|n(0)\rangle$ d'un Hamiltonien $H(t)$, reste proche de l'état propre instantané $|n(t)\rangle$ (avec un bon choix de phase) de cet Hamiltonien. Deux résultats principaux existent dans la littérature. Le premier [Born and Fock, 1928] est *le théorème adiabatique* qui démontre que l'adiabaticité est obtenue si l'évolution est infiniment lente (c'est-à-dire effectuée par la famille de hamiltonien $H_\epsilon(t) = H(\epsilon t)$ avec $\epsilon \rightarrow 0$).

Le deuxième résultat est le *critère approximatif adiabatique* :

$$\sum_{m \neq n} \frac{\hbar}{|E_n - E_m|} \frac{|\langle m | \dot{H} | n \rangle|}{|E_n - E_m|} = \sum_{m \neq n} \left| \frac{\hbar \langle m | \dot{n} \rangle}{E_n - E_m} \right| \ll 1. \quad (10.1.1)$$

qui suggère qu'au lieu d'une variation infiniment lente un petit (par rapport à l'écart spectral), mais fini, taux de variation de $H(t)$ est suffisant pour assurer une évolution adiabatique. Ici E_m est l'énergie propre instantanée pour le vecteur propre $|m\rangle$ de H .

10.1.1 Peut-on utiliser la condition adiabatique ?

Ce deuxième résultat fut suggéré par Messiah [Messiah, 1959] lors de sa démonstration (complexe) du théorème adiabatique. La condition adiabatique (10.1.1) est valide pour les très nombreux modèles (Landau-Zener(-Stückelberg), Rosen-Zener-Demkov, Nikitin, Zhu-Nakamura, ...), et pour les très nombreux processus de Rapid Adiabatic Passage ou de STImulated Raman Adiabatic Passage (STIRAP), et s'applique en RMN, lors d'études d'interaction laser matière, lors de collisions moléculaires, ... [Nakamura, 2002, Teufel, 2003, Nikitin, 2006]. Il semble donc naturel que beaucoup de physiciens, dont je faisais partie, croient que la condition adiabatique (10.1.1) suffise à assurer une évolution adiabatique pour un hamiltonien quelconque $H(t)$.

Je fus donc personnellement surpris, en étudiant ces conditions en vue de mon cours de M2, d'apprendre que cette condition était remise en question dans un article, difficile à lire, publié en 2004 par Marzlin et Sanders [Marzlin and Sanders, 2004]. Cet article suscita plusieurs réactions allant de la dénégation forte de cette allégation [Sarandy et al., 2004, Pati and Rajagopal, 2004, Wu and Yang, 2005] à son approbation totale [Tong et al., 2005b]. Je me suis alors intéressé au problème et à cette polémique [Ambainis and Regev, 2004, Ye et al., 2005, Duki et al., 2006, Ma et al., 2006, Marzlin and Sanders, 2006, MacKenzie et al., 2006, Vértesi and Englman, 2006, Tong et al., 2007, Ye et al., 2007, Tong et al., 2005a, MacKenzie et al., 2007, Wei and Ying, 2007b, Wei and Ying, 2007a, Li, 2007, Zhao et al., 2007, Chen et al., 2007, Wu et al., 2007, Zhao, 2008, Das Arulsamy, 2008, Du et al., 2008]. Le nombre important d'articles basés sur le théorème ou les conditions adiabatiques ne rendit pas la chose facile et il me fallut près de deux années pour achever ce travail, joint ci-après, que je viens de soumettre à Europhysics Letters après un premier jet non totalement abouti mais déposé sur le serveur de pré-print [Comparat, 2006].

La polémique est basée sur les questions suivantes :

1. Quand la condition adiabatique est-elle ou n'est-elle plus valable ?
2. Existe-t-il d'autres conditions simples et utiles qui impliquent de façon sûre l'adiabaticité ?
3. Lors d'une évolution adiabatique la phase est-elle donnée par $-i \int_0^t (E_n/\hbar - i \langle n | \dot{n} \rangle)$ (voir Eq. (10.1.2)) ?

Je vais décrire ici les résultats auxquels je suis arrivé et qui répondent à toutes ces questions. Auparavant, il est intéressant de répondre à une autre question : "À quoi sert le théorème adiabatique ?"

10.1.2 À quoi sert le théorème adiabatique ?

Il n'est pas question ici de retracer l'immense apport de ce théorème à la mécanique quantique jusqu'à son utilisation récente pour réaliser des algorithmes quantiques [Farhi et al., 2001]. Je donne donc ici uniquement sa version dans le cas non dégénéré (le cas opposé ne fut traité dans le cas général que très récemment [Avron and Elgart, 1999]). Le théorème adiabatique stipule que :

$$|\Psi_\epsilon(t)\rangle - e^{-i \int_0^t (E_n/\hbar - i \langle n_\epsilon | \dot{n}_\epsilon \rangle)} |n_\epsilon(t)\rangle = O(\epsilon) \xrightarrow{\epsilon \rightarrow 0} 0. \quad (10.1.2)$$

ϵ est le paramètre qui contrôle l'évolution donnée par $H_\epsilon(t) = H(\epsilon t)$. On rencontre aussi des formulations équivalentes avec, par exemple, $s(t) \in [0, 1]$ et $H_\epsilon(t) = H(s(t))$ où T est le temps d'évolution total, comme dans le cas d'un hamiltonien interpolant $H(s) = H_{\text{initial}}(1-s) + H_{\text{final}}s$. Le cas décrit ici est simplement $s(t) = t/T = \epsilon t$.

La question (choisie comme titre) "à quoi sert le théorème adiabatique ?" est volontairement polémique mais elle permet de montrer que du point de vue expérimental, le théorème est en fait de peu d'utilité. Commençons tout de même par préciser qu'il est toujours valable (c'est un théorème !), encore faut-il bien comprendre son rôle.

Supposons que nous voulions réaliser une évolution adiabatique d'un système à deux niveaux à l'aide d'un champ laser externe (fréquence angulaire constante $R_1(t) = \omega$), en modifiant expérimentalement l'intensité laser, i.e. la fréquence de rabi $R_2(t) = \Omega(t)$, et le décalage du laser de sa résonance $R_3(t) = \delta(t)$. La modification du décalage laser peut être réalisée par exemple à l'aide d'un champ électrique ou magnétique extérieur. Dans l'approximation de l'onde tournante le hamiltonien s'écrit : $\frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} \delta(t) + \omega & \Omega(t)e^{-i\omega t} \\ \Omega(t)e^{i\omega t} & -\delta(t) - \omega \end{pmatrix} = H(R_1(t), R_2(t), R_3(t), R_4(t))$. En

raison du terme $R_4(t) = \omega t$, ralentir l'évolution, par $H(\epsilon t)$, conduirait à écrire $\omega(\epsilon t) = (\omega\epsilon)t$ qui, lorsque $\epsilon \rightarrow 0$, force ω à zéro ce qui est impossible expérimentalement. Le théorème adiabatique ne peut donc pas s'appliquer à ce système. En outre, même dans le régime du champ statique ($\omega = 0$), le théorème s'applique mais seulement si δ et Ω ont leurs évolutions ralenties en même temps, i.e. par le même ϵ : $\delta(\epsilon t), \Omega(\epsilon t)$. Le théorème ne dit alors rien sur l'adiabaticité si $\delta(t)$ et $\Omega(t)$ ont leurs évolutions variées indépendamment avec le temps. Cet exemple indique bien que le théorème est mieux formulé dans le domaine des paramètres $(\mathbf{R}) = (R_1, R_2 \dots)$ que dans le domaine temporel [Wu and Yang, 2005, Liu and Fu, 2007]. Le théorème peut être reformulé ainsi : si le chemin suivi par les paramètres R_i , entre un état initial $\mathbf{R}_{\text{in}}$ et un état final $\mathbf{R}_{\text{fin}}$, est suivi infiniment lentement alors l'évolution donnée par $H(\mathbf{R}(t))$ est adiabatique.

Le fait de ne pouvoir utiliser le théorème adiabatique que dans des cas réduits et le fait qu'il impose une évolution infiniment lente montre combien il est important de pouvoir trouver un critère plus utilisable.

10.2 Conditions générales pour une évolution adiabatique : soumis à PRL

10.2.1 La condition usuelle n'est pas valable !

Comme je l'ai suggéré en introduction la condition adiabatique ne suffit pas à prouver une évolution adiabatique. Ce résultat, "redécouvert" par Marzlin et Sanders, est en fait connu, au moins depuis 1949 et le livre de cours de Schiff [Schiff, 1949, Bransden and Joachain, 1989]. La plupart des publications récentes sus-citées ne font ainsi que reprendre des résultats anciens déjà connus [Duki et al., 2005]. Il faut toutefois reconnaître que l'article [Marzlin and Sanders, 2004] mit le doigt sur la connaissance imparfaite qu'avait la communauté du théorème ou de la condition adiabatique. Un contre-exemple trivial de la validité de la condition adiabatique, est donné par le hamiltonien (en approximation de l'onde tournante) d'un pulse laser résonnant ($\delta = 0$) de faible intensité $\frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} \omega & \Omega e^{-i\omega t} \\ \Omega e^{i\omega t} & -\omega \end{pmatrix}$. En effet si l'intensité $\propto \Omega^2$ est suffisamment faible la condition adiabatique (10.1.1) est évidemment vérifiée, car les états propres $|m\rangle$ sont quasiment les états de la base canonique. Mais au bout d'une oscillation de Rabi, i.e. d'un temps $t = \pi/\Omega$, le système a totalement changé d'état et l'évolution est donc totalement non adiabatique !

Cet exemple illustre le fait que la condition adiabatique (10.1.1), n'est en générale pas valide et ne peut être utilisée que dans des cas réduits. Nous verrons plus loin qu'il est en effet préférable d'utiliser la base tournante, ou les états habillés, pour éliminer le terme en $e^{i\varphi} = e^{i\omega t}$ dans le hamiltonien. De façon générale, il est important de pouvoir trouver un critère valide et plus utilisable pour contraindre la fidélité, $|\langle \Psi(t) | n(t) \rangle|$, i.e. pour caractériser une évolution adiabatique.

10.2.2 La condition usuelle est perturbative

L'inégalité (basée sur une intégration par partie de l'équation de Schrödinger) [Teufel, 2003, Schaller et al., 2006, Tong et al., 2007, Jansen et al., 2007]

$$\frac{1 - |\langle \Psi(t) | n(t) \rangle|}{\hbar} \leq \left\| \frac{\dot{H}(t)}{\Delta E_n(t)^2} \right\| + \left\| \frac{\dot{H}(0)}{\Delta E_n(0)^2} \right\| + \int_0^t \left(\frac{7 \|\dot{H}\|^2}{\Delta E_n^3} + \frac{\|\ddot{H}\|}{\Delta E_n^2} \right) \quad (10.2.1)$$

où $\Delta E_n(t) = \min_{m \neq n} |E_m(t) - E_n(t)|$, permet de clarifier le problème et la polémique. En l'appliquant à H_ϵ on démontre, à l'aide de $\frac{dH_\epsilon}{dt} = \epsilon \frac{dH_\epsilon}{d(\epsilon t)} = \epsilon \frac{dH}{ds}$, le théorème adiabatique (10.1.2) car alors $\left\| \frac{\dot{H}_\epsilon(t)}{\Delta E_n(t)^2} \right\| = O(\epsilon)$ et le terme avec une intégrale est $O(\epsilon^2)$. En utilisant $\langle m|\dot{n}\rangle = \frac{\langle m|\dot{H}|n\rangle}{E_n - E_m}$ (qui provient de la dérivation de $\langle m|n\rangle = \delta_{mn}$ et de $\langle m|H|n\rangle = E_n \delta_{mn}$) on voit immédiatement que le terme d'ordre 1 en ϵ , c'est à dire le terme $\frac{\dot{H}(t)}{\Delta E_n(t)^2}$, est bien le terme apparaissant dans la condition adiabatique (10.1.1). La polémique provient donc du fait que Messiah sembla proposer ce seul premier terme comme condition adiabatique. Le problème est que pour un cas réaliste, i.e. pour ϵ fini, il est impossible de garantir que $O(\epsilon) < O(\epsilon^2)$, car cette inégalité n'est valable que pour ϵ infiniment petit. Je mentionne ici que la solution analytique du hamiltonien de Schwinger [Schwinger, 1937], $H(t) = \frac{\hbar\omega_0}{2} \begin{pmatrix} \cos\theta & \sin\theta e^{-i\omega t} \\ \sin\theta e^{i\omega t} & -\cos\theta \end{pmatrix}$ constitue en cela un parfait (contre-)exemple. De plus, lorsque l'on est intéressé, ce qui est presque toujours le cas, à l'évolution donnée par $H(t)$ et non par l'évolution donnée par la famille de hamiltoniens $H(\epsilon t)$ alors $\epsilon = 1$ et la "non domination" de la condition adiabatique (le terme en $O(\epsilon)$) sur le terme intégral (en $O(\epsilon^2)$) est évidemment encore plus claire.

Il reste donc à comprendre pourquoi la condition adiabatique (10.1.1), bien que non valide de façon générale, s'avère tout de même valide dans presque tous les cas connus! Avant mon travail, il n'existait aucune publication expliquant correctement quand cette condition était valable ou bien quand elle ne l'est pas.

10.2.3 Quand la condition adiabatique est-elle valable ?

Quelques articles prétendaient, sans démonstration, mais au vu de l'exemple de l'oscillation de Rabi précédent, qu'il suffisait d'éviter les termes résonnants pour rendre la condition (10.1.1) valide [Duki et al., 2005, Cholasinski, 2005, Duki et al., 2006, MacKenzie et al., 2006, Vértesi and Englman, 2006]. J'ai pour ma part extrait un exemple de hamiltonien cyclique [Kayanuma, 1994] $H = \frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} \alpha \cos(\omega t) & \Omega \\ \Omega & -\alpha \cos(\omega t) \end{pmatrix}$ où des termes non résonnants peuvent induire une évolution non adiabatique par accumulation constructive d'une petite amplitude de probabilité à chaque passage lors du croisement. Ce résultat était en partie lui aussi déjà connu depuis les travaux de 1932 de E. Stückelberg (voir aussi les articles récents : [Joye et al., 1991, Wilkinson and Morgan, 2000]). Cet exemple ne répond donc pas à la question importante : quand la condition adiabatique est-elle valable ?

Un des aboutissements de mon travail est que pour restaurer la validité de la condition usuelle d'adiabaticité (10.1.1) il faut éviter d'accumuler des amplitudes de probabilité à chaque passage. Le plus simple est évidemment de n'effectuer qu'un nombre fini de passage. Plus précisément, je montre que la condition usuelle d'adiabaticité (10.1.1) est valable pour un hamiltonien réel ne comportant pas de termes oscillants. Ainsi la condition (10.1.1) peut être appliqué à un hamiltonien, comme dans les cas Landau-Zener ou STIRAP, ne comportant que des combinaisons de termes polynomiaux ou exponentiels réels mais pas de termes en cosinus ou sinus.

La condition mathématique plus précise étant donnée par les conditions d'adiabaticité (10.2.3) décrites ci-dessous.

10.2.4 D'autres conditions impliquant l'adiabaticité.

De façon étonnante, il fallu attendre une période très récente pour voir apparaître des estimations exactes de la fidélité adiabatique $|\langle \Psi | n \rangle|$. A ma connaissance, le premier résultat, très simple, est dû à Stefan Teufel [Teufel, 2003], et est en fait l'inégalité (10.2.1). Elle fut là aussi "redécouverte" ensuite dans les références [Schaller et al., 2006, Tong et al., 2007, Jansen et al., 2007].

L'inégalité (10.2.1) fournit évidemment une condition suffisante pour une évolution adiabatique mais malheureusement elle n'est pas totalement satisfaisante. En effet, sur un exemple aussi simple que le hamiltonien de Schwinger cette formule ne permet pas de trouver une condition d'adiabaticité pour tout temps d'évolution. En effet, à cause de son terme intégral, l'inégalité (10.2.1) n'assure, en général, l'adiabaticité que pour un temps d'évolution fini.

D'autres conditions furent suggérées par une étude perturbative de l'équation de Schrödinger. Une généralisation, de la condition perturbative (10.1.1) bien connue, fut par exemple proposée par les références [Ye et al., 2005, Du et al., 2008, Wu et al., 2007, Chen et al., 2007, Zhao et al., 2007] :

$$\sum_{m \neq n} \left| \frac{\langle m | \dot{n} \rangle}{(E_n - E_m)/\hbar - i\langle n | \dot{n} \rangle + i\langle m | \dot{n} \rangle - \frac{d}{dt} \arg \langle m | \dot{n} \rangle} \right| \ll 1.$$

Cette condition permet de traiter des hamiltoniens complexes comme le cas de l'oscillation de Rabi ou du hamiltonien de Schwinger. Malheureusement elle provient d'un traitement perturbatif et ne peut être démontrée rigoureusement. De fait, elle ne survit pas au test du hamiltonien cyclique précédemment décrit.

Le coeur de mon travail fut donc de trouver une condition suffisante qui traite tous ces cas. Le résultat est en fait très facilement démontrable et provient d'une formule de comparaison nouvelle, car non perturbative, entre deux opérateurs d'évolution. Cette formule, bien qu'importante n'est pas reprise ici (voir la formule (5) de l'article joint), et je résume juste le résultat concernant la condition adiabatique.

L'évolution du système, lorsque projeté dans la base adiabatique $e^{i\theta_m(t)} |m(t)\rangle$, est pilotée par le hamiltonien H' . Les éléments de matrices de H' s'expriment dans la base canonique $|m^{\text{can}}\rangle$, $m = 1, \dots, N$ par

$$\langle m^{\text{can}} | H' | k^{\text{can}} \rangle = H'_{mk} = (E_m + \hbar \dot{\theta}_m) \delta_{mk} - i\hbar \langle m | \dot{k} \rangle e^{i(\theta_k - \theta_m)}. \quad (10.2.2)$$

Un choix $\theta_m = \theta_n + \arg(-i\langle m | \dot{n} \rangle)$ de phase permettra d'avoir des conditions simples et utiles. Il est simple d'écrire en renumérotant $n = 1$ sous la forme matricielle en bloc $1 + (N - 1)$

$$H' = H_0 + V, \text{ avec } H_0 = \begin{pmatrix} H'_{nn} & 0 \\ 0 & H'_{nn} - \hbar \dot{\theta}' \end{pmatrix} \text{ et } V = \frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} 0 & \Omega'^{\dagger} \\ \Omega' & 0 \end{pmatrix}.$$

Les conditions adiabatiques que je démontre sont alors

$$\|\delta'^{-1}\| \|\Omega'\| \ll 1 \quad (10.2.3)$$

$$\int_0^t \left(\|\Omega'\| \left\| \frac{d}{dt} (\delta'^{-1}) \right\| + \|\delta'^{-1}\| \left\| \frac{d}{dt} \Omega' \right\| \right) \ll 1 \quad (10.2.4)$$

Par exemple pour le cas à 2 niveaux $N = 2$ en écrivant le hamiltonien sous la forme $H = \frac{\hbar\omega_0}{2} \begin{pmatrix} \cos \theta & \sin \theta e^{-i\varphi} \\ \sin \theta e^{i\varphi} & -\cos \theta \end{pmatrix}$, les deux conditions qui doivent être simultanément vérifiées sont

donc :

$$\frac{|\dot{\varphi} \sin \theta - i\dot{\theta}|}{\left| \dot{\varphi} \cos \theta - \omega_0 - \frac{d}{dt} \arg(\dot{\varphi} \sin \theta - i\dot{\theta}) \right|} = \frac{|\Omega'|}{|\delta'|} \ll 1 \quad (10.2.5)$$

$$\int_0^t dt' \left| \frac{d}{dt'} \frac{|\Omega'(t')|}{\delta'(t')} \right| \ll 1 \quad (10.2.6)$$

On voit ainsi facilement que la première inégalité est simplement la condition habituelle (10.1.1) : $\frac{|\dot{\theta}|}{|\omega_0|} \ll 1$, dans le cas d'un hamiltonien réel ($\varphi = 0$). La seconde inégalité est simplement là pour prévenir les oscillations. En effet si les fonctions sont monotones $\int_0^t dt' \left| \frac{d}{dt'} \frac{|\Omega'(t')|}{\delta'(t')} \right| = \left| \frac{|\Omega'(t)|}{\delta'(t)} - \frac{|\Omega'(0)|}{\delta'(0)} \right|$ ce qui ramène la deuxième inégalité à la première.

10.2.5 Quelle phase lors d'une évolution adiabatique ?

Un autre résultat important de mon travail est l'inégalité suivante :

$$\begin{aligned} \sqrt{2} \sqrt{1 - |\langle \Psi(t) | n(t) \rangle|} &\leq \left\| |\Psi(t)\rangle - e^{-i \int_0^t \frac{E'_n}{\hbar}} |n(t)\rangle \right\| \\ &\leq \left\| |n'(t)\rangle - |n^{\text{st}}\rangle \right\| + \left\| |n'(0)\rangle - |n^{\text{st}}\rangle \right\| + \int_0^t \left\| |\dot{n}'\rangle \right\| \end{aligned}$$

où E'_n est la valeur propre associée au $n^{\text{ème}}$ vecteur propre $|n'\rangle$ de H' . Elle explique que $-i \int_0^t \frac{E'_n}{\hbar}$ est la phase recherchée lors d'une évolution adiabatique et non, comme on le croit souvent, la phase $-i \int_0^t (E_n/\hbar - i \langle n | \dot{n} \rangle)$ donnée par le théorème adiabatique (10.1.2), car là aussi cette dernière phase n'est valable que pour $\epsilon \rightarrow 0$.

10.3 Évolution future des recherches

Mon travail sur ces conditions adiabatiques est fini, même si de meilleures conditions pourraient peut être être trouvées en utilisant de meilleures inégalités [Ipsen, 2003, Chen and Li, 2006, Li and Sun, 2007]. Il ne me reste plus qu'à espérer la publication de ces résultats. Ce travail ouvre cependant plusieurs perspectives notamment sur le choix des bases pour traiter le problème adiabatique. Le fait de rechercher un hamiltonien réel et sans termes oscillants, afin de pouvoir appliquer la condition adiabatique usuelle, est un résultat que je crois important. Il explique pourquoi, ce que tout le monde fait sans même s'en rendre compte, il est préférable d'utiliser la base tournante, ou les états habillés, pour éliminer le terme en $e^{i\varphi} = e^{i\omega t}$ dans les hamiltoniens.

Évidemment ce travail ouvre aussi des perspectives pour trouver des conditions similaires pour d'autres approximations comme l'approximation semi-classique BKW [Joye et al., 1991, Giller, 2004, Allahverdyan and Nieuwenhuizen, 2005].

Enfin, discuter le lien avec les phases géométriques [Berry, 1984], les transformations de jauge et les conditions adiabatiques est aussi un point intéressant [Nakagawa, 1987, Wu, 1989].

Bibliographie

- [Allahverdyan and Nieuwenhuizen, 2005] Allahverdyan, A. E. and Nieuwenhuizen, T. M. (2005). Minimal work principle : Proof and counterexamples. *Phys. Rev. E*, 71(4) :046107–+.
- [Ambainis and Regev, 2004] Ambainis, A. and Regev, O. (2004). An Elementary Proof of the Quantum Adiabatic Theorem. *ArXiv Quantum Physics e-prints*.
- [Avron and Elgart, 1999] Avron, J. E. and Elgart, A. (1999). Adiabatic Theorem without a Gap Condition. *Commun. Math. Phys.*, 203 :445–463.
- [Berry, 1984] Berry, M. V. (1984). Quantal Phase Factors Accompanying Adiabatic Changes. *Royal Society of London Proceedings Series A*, 392 :45–57.
- [Born and Fock, 1928] Born, M. and Fock, V. (1928). Beweis des Adiabatenatzes. *Zeitschrift fur Physik*, 51 :165–180.
- [Bransden and Joachain, 1989] Bransden, B. and Joachain, C. (1989). *Introduction to Quantum Mechanics*. Longman, Addison-Wesley.
- [Chen et al., 2007] Chen, J.-L., Zhao, M.-s., Wu, J.-d., and Zhang, Y.-d. (2007). Invariant Perturbation Theory of Adiabatic Process. *ArXiv e-prints*, 706.
- [Chen and Li, 2006] Chen, X. and Li, W. (2006). A note on the perturbation bounds of eigenspaces for hermitian matrices. *J. Comput. Appl. Math.*, 196(1) :338–346.
- [Cholascinski, 2005] Cholascinski, M. (2005). Geometry of an adiabatic passage at a level crossing. *Phys. Rev. A*, 71(6) :063409–+.
- [Comparat, 2006] Comparat, D. (2006). General conditions for a quantum adiabatic evolution. *ArXiv Quantum Physics e-prints*.
- [Das Arulsamy, 2008] Das Arulsamy, A. (2008). The accuracy of the quantum adiabatic approximation in its original form. *ArXiv e-prints*, 805.
- [Du et al., 2008] Du, J., Hu, L., Wang, Y., Wu, J., Zhao, M., and Suter, D. (2008). Is the quantum adiabatic theorem consistent ? *ArXiv e-prints*, 801.
- [Duki et al., 2005] Duki, S., Mathur, H., and Narayan, O. (2005). Is the Adiabatic Approximation Inconsistent ? *ArXiv Quantum Physics e-prints*.
- [Duki et al., 2006] Duki, S., Mathur, H., and Narayan, O. (2006). Comment I on “Inconsistency in the Application of the Adiabatic Theorem”. *Physical Review Letters*, 97(12) :128901–+.
- [Farhi et al., 2001] Farhi, E., Goldstone, J., Gutmann, S., Lapan, J., Lundgren, A., and Preda, D. (2001). A Quantum Adiabatic Evolution Algorithm Applied to Random Instances of an NP-Complete Problem. *Science*, 292 :472–476.
- [Giller, 2004] Giller, S. (2004). Adiabatic Limit Interference Effects for Two Energy Level Transition Amplitudes and Nikitin-Umanskii Formula Studied by Fundamental Solution Method. *Acta Physica Polonica B*, 35 :551–+.

- [Ipsen, 2003] Ipsen, I. (2003). A Note on Unifying Absolute and Relative Perturbation Bounds. *Linear Algebra Appl.*, 358 :239–253.
- [Jansen et al., 2007] Jansen, S., Ruskai, M.-B., and Seiler, R. (2007). Bounds for the adiabatic approximation with applications to quantum computation. *Journal of Mathematical Physics*, 48 :2111–+.
- [Joye et al., 1991] Joye, A., Milet, G., and Pfister, C.-E. (1991). Interferences in adiabatic transition probabilities mediated by Stokes lines. *Phys. Rev. A*, 44 :4280–4295.
- [Kayanuma, 1994] Kayanuma, Y. (1994). Role of phase coherence in the transition dynamics of a periodically driven two-level system. *Phys. Rev. A*, 50 :843–845.
- [Laidler, 1994] Laidler, K. J. (1994). The meaning of "adiabatic". *Can. J. Chem.*, 72(3) :936–938.
- [Li, 2007] Li, H.-Z. (2007). On the consistency in the adiabatic theorem and quantum geometric phase. *ArXiv Quantum Physics e-prints*.
- [Li and Sun, 2007] Li, W. and Sun, W. (2007). Combined perturbation bounds : I. eigensystems and singular value decompositions. *SIAM Journal on Matrix Analysis and Applications*, 29(2) :643–655.
- [Liu and Fu, 2007] Liu, J. and Fu, L.-B. (2007). Singularities of Berry connections inhibit the accuracy of the adiabatic approximation. *Physics Letters A*, 370 :17–21.
- [Ma et al., 2006] Ma, J., Zhang, Y., Wang, E., and Wu, B. (2006). Comment II on "Inconsistency in the Application of the Adiabatic Theorem". *Physical Review Letters*, 97(12) :128902–+.
- [MacKenzie et al., 2006] MacKenzie, R., Marcotte, E., and Paquette, H. (2006). Perturbative approach to the adiabatic approximation. *Phys. Rev. A*, 73(4) :042104–+.
- [MacKenzie et al., 2007] MacKenzie, R., Morin-Duchesne, A., Paquette, H., and Pinel, J. (2007). Validity of the adiabatic approximation in quantum mechanics. *Phys. Rev. A*, 76(4) :044102–+.
- [Marzlin and Sanders, 2004] Marzlin, K.-P. and Sanders, B. C. (2004). Inconsistency in the Application of the Adiabatic Theorem. *Physical Review Letters*, 93(16) :160408–+.
- [Marzlin and Sanders, 2006] Marzlin, K.-P. and Sanders, B. C. (2006). Marzlin and Sanders Reply :. *Physical Review Letters*, 97(12) :128903–+.
- [Messiah, 1959] Messiah, A. (1959). *Mécanique quantique*. Dunod.
- [Nakagawa, 1987] Nakagawa, N. (1987). Geometrical phase factors and higher-order adiabatic approximations. *Annals of Physics*, 179 :145–166.
- [Nakamura, 2002] Nakamura, H. (2002). *Nonadiabatic Transition : Concepts, Basic Theories and Applications*. World Scientific Pub Co Inc.
- [Nikitin, 2006] Nikitin, E. E. (2006). *Handbooks of Atomic, Molecular, and Optical Physics*, chapter 49 : Adiabatic and Diabatic Collision Processes at Low Energies. Springer.
- [Pati and Rajagopal, 2004] Pati, A. K. and Rajagopal, A. K. (2004). Inconsistencies of the Adiabatic Theorem and the Berry Phase. *ArXiv Quantum Physics e-prints*.
- [Sarandy et al., 2004] Sarandy, M. S., Wu, L.-A., and Lidar, D. A. (2004). Consistency of the Adiabatic Theorem. *Quantum Information Processing*, 3(6) :331.

- [Schaller et al., 2006] Schaller, G., Mostame, S., and Schützhold, R. (2006). General error estimate for adiabatic quantum computing. *Phys. Rev. A*, 73(6) :062307–+.
- [Schiff, 1949] Schiff, L. I. (1949). *Quantum Mechanics*. McGraw-Hill Book Co.
- [Schwinger, 1937] Schwinger, J. (1937). On Nonadiabatic Processes in Inhomogeneous Fields. *Physical Review*, 51 :648–651.
- [Teufel, 2003] Teufel, S. (2003). *Adiabatic perturbation theory in quantum dynamics, Lecture Notes in Mathematics 1821*. Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York (2003).
- [Tong et al., 2005a] Tong, D. M., Singh, K., Kwek, L. C., Fan, X. J., and Oh, C. H. (2005a). A note on the geometric phase in adiabatic approximation [rapid communication]. *Physics Letters A*, 339 :288–293.
- [Tong et al., 2005b] Tong, D. M., Singh, K., Kwek, L. C., and Oh, C. H. (2005b). Quantitative Conditions Do Not Guarantee the Validity of the Adiabatic Approximation. *Physical Review Letters*, 95(11) :110407–+.
- [Tong et al., 2007] Tong, D. M., Singh, K., Kwek, L. C., and Oh, C. H. (2007). Sufficiency Criterion for the Validity of the Adiabatic Approximation. *Physical Review Letters*, 98(15) :150402–+.
- [Vértesi and Englman, 2006] Vértesi, T. and Englman, R. (2006). Perturbative analysis of possible failures in the traditional adiabatic conditions. *Physics Letters A*, 353 :11–18.
- [Wei and Ying, 2007a] Wei, Z. and Ying, M. (2007a). Linearity and Quantum Adiabatic Theorem. *ArXiv Quantum Physics e-prints*.
- [Wei and Ying, 2007b] Wei, Z. and Ying, M. (2007b). Quantum adiabatic computation and adiabatic conditions. *Phys. Rev. A*, 76(2) :024304–+.
- [Wilkinson and Morgan, 2000] Wilkinson, M. and Morgan, M. A. (2000). Nonadiabatic transitions in multilevel systems. *Phys. Rev. A*, 61(6) :062104–+.
- [Wu et al., 2007] Wu, J.-d., Zhao, M.-s., Chen, J.-l., and Zhang, Y.-d. (2007). Adiabatic Approximation Condition. *ArXiv e-prints*, 706.
- [Wu, 1989] Wu, Z. (1989). Higher-order adiabatic approximations for classical evolution. *Phys. Rev. A*, 40 :6852–6856.
- [Wu and Yang, 2005] Wu, Z. and Yang, H. (2005). Validity of the quantum adiabatic theorem. *Phys. Rev. A*, 72(1) :012114–+.
- [Ye et al., 2005] Ye, M.-Y., Zhou, X.-F., Zhang, Y.-S., and Guo, G.-C. (2005). Condition for the adiabatic approximation. *ArXiv Quantum Physics e-prints*.
- [Ye et al., 2007] Ye, M.-Y., Zhou, X.-F., Zhang, Y.-S., and Guo, G.-C. (2007). Two kinds of quantum adiabatic approximation. *Physics Letters A*, 368 :18–24.
- [Zhao et al., 2007] Zhao, M.-s., Wu, J.-d., Chen, J.-l., and Zhang, Y.-d. (2007). Properties of Geometric Potential in the Invariant Adiabatic Theory. *ArXiv e-prints*, 706.
- [Zhao, 2008] Zhao, Y. (2008). Reexamination of the quantum adiabatic theorem. *Phys. Rev. A*, 77(3) :032109–+.

Chapitre 11

Compilation de certains articles publiés

J'ai reproduit ci-dessous certains articles que j'ai publié ou soumis dans des journaux à comité de lecture. Les articles sont classés par thème, chaque thème correspondant à un chapitre de ce manuscrit. La liste des articles compilés est donnée ci-dessous. Le chiffre au bout de la ligne à droite indique la page correspondant au début de chaque article.

- **Atomes de Rydberg**

- ★ Dipôles créés par un champ électrique : PRL 99 073002 (2007)
Electric-Field Induced Dipole Blockade with Rydberg Atoms Thibault Vogt, Matthieu Viteau, Amodsen Chotia, Jianming Zhao, Daniel Comparat, and Pierre Pillet 168
- ★ Dipôles créés par une résonance : PRL 97 083003 (2006)
Dipole Blockade at Förster Resonances in High Resolution Laser Excitation of Rydberg States of Cesium Atoms
Thibault Vogt, Matthieu Viteau, Jianming Zhao, Amodsen Chotia, Daniel Comparat, and Pierre Pillet 173
- ★ Modélisation de la dynamique : NJP 10, 045031 (2008)
Kinetic Monte Carlo modeling of dipole blockade in Rydberg excitation experiment Amodsen Chotia, Matthieu Viteau, Thibault Vogt, Daniel Comparat and Pierre Pillet 177

- **Plasmas ultra-froids**

- ★ Refroidissement du plasma par collisions avec les atomes de Rydberg : PRA 71 013416 (2005)
Ionization of Rydberg atoms embedded in an ultracold plasma Nicolas Vanhaecke, Daniel Comparat, Duncan A. Tate, and Pierre Pillet 198
- ★ Modélisation, analogie avec les amas globulaires stellaires : Monthly Notices of the Royal Astronomical Society 361 1227 (2005)
Star cluster dynamics in a laboratory : electrons in an ultracold plasma
D. Comparat, T. Vogt, N. Zahzam, M. Mudrich and P. Pillet 202

- **Application à la formation d'antihydrogène**

- ★ L'expérience AEGIS : NIMB 266 351 (2008)
 - Proposed antimatter gravity measurement with an antihydrogen beam
A. Kellerbauer, M. Amoretti, A.S. Belov, G. Bonomi, I. Boscolo, R.S. Brusa, M. Büchner, V.M. Byakov, L. Cabaret, C. Canali, C. Carraro, F. Castelli, S. Cialdi, M. de Combarieu, D. Comparat, G. Consolati, N. Djourellov, M. Doser, G. Drobychev, A. Dupasquier, G. Ferrari, P. Forget, L. Formaro, A. Gervasini, M.G. Giammarchi, S.N. Gninenko, G. Gribakin, S.D. Hogan, M. Jacquey, V. Lagomarsino, G. Manuzio, S. Mariazzi, V.A. Matveev, J.O. Meier, F. Merkt, P. Nedelec, M.K. Oberthaler, P. Pari, M. Prevedelli, F. Quasso, A. Rotondi, D. Sillou, S.V. Stepanov, H.H. Stroke, G. Testera, G.M. Tino, G. Trénec, A. Vairo, J. Vigué, H. Walters, U. Warring, S. Zavatarelli, D.S. Zvezhinskij (AEGIS Proto-Collaboration) 218
- **Photoassociation et molécules froides**
 - ★ Amélioration de la loi de LeRoy-Bernstein J. Chem. Phys 120 1318 (2004)
 - Improved LeRoy-Bernstein near-dissociation expansion formula, and prospect for photoassociation spectroscopy D. Comparat 224
 - ★ Piégeage avec des molécules froides : PRL 89 063001 (2002)
 - Accumulation of Cold Cesium Molecules via Photoassociation in a Mixed Atomic and Molecular Trap Nicolas Vanhaecke, Wilson de Souza Melo, Bruno Laburthe Tolra, Daniel Comparat, and Pierre Pillet 236
 - ★ Étude des collisions avec des molécules froides : PRL 96 023202 (2006)
 - Atom-Molecule Collisions in an Optically Trapped Gas N. Zahzam, T. Vogt, M. Mudrich, D. Comparat, and P. Pillet 240
 - ★ Refroidissement des degrés de libertés internes des molécules Science 321, 232 (2008)
 - Optical Pumping and Vibrational Cooling of Molecules Matthieu Viteau, Amodsen Chotia, Maria Allegrini, Nadia Bouloufa, Olivier Dulieu, Daniel Comparat, Pierre Pillet 244
- **Chargement d'un piège dipolaire : vers la condensation de Bose-Einstein d'atomes et de molécules de césium**
 - ★ Etude d'un poussoir-guideur pour transférer les atomes : EPJD 42 299 (2007)
 - Continuous transfer and laser guiding between two cold atom traps E. Dimova, O. Morizot, G. Stern, C.L. Garrido Alzar, A. Fioretti, V. Lorent, D. Comparat, H. Perrin, and P. Pillet 247
 - ★ Modèle théorique du chargement d'un "dimple" et de l'évaporation : PRA 73 043410 (2006)
 - Optimized production of large Bose-Einstein condensates D. Comparat, A. Fioretti, G. Stern, E. Dimova, B. Laburthe Tolra, and P. Pillet 257
- **Étude des conditions d'adiabaticité**
 - ★ Conditions générales pour une évolution adiabatique : soumis à PRL
 - General conditions for quantum adiabatic evolution Daniel Comparat 271

Electric-Field Induced Dipole Blockade with Rydberg Atoms

Thibault Vogt, Matthieu Viteau, Amodsen Chotia, Jianming Zhao, Daniel Comparat, and Pierre Pillet

Laboratoire Aimé Cotton, CNRS, Université Paris-Sud, Bâtiment 505, Campus d'Orsay, 91405 Orsay, France

(Received 8 March 2007; published 16 August 2007)

High resolution laser Stark excitation of np ($60 < n < 85$) Rydberg states of ultracold cesium atoms shows an efficient blockade of the excitation attributed to long-range dipole-dipole interaction. The dipole blockade effect is observed as a quenching of the Rydberg excitation depending on the value of the dipole moment induced by the external electric field. Effects of ions which could match the dipole blockade effect are discussed in detail but are ruled out for our experimental conditions. Analytic and Monte Carlo simulations of the excitation of an ensemble of interacting Rydberg atoms agree with the experiments and indicate a major role of the nearest neighboring Rydberg atom.

DOI: 10.1103/PhysRevLett.99.073002

PACS numbers: 32.80.Rm

Long-range dipole-dipole interactions often play an important role in the properties of an assembly of cold atoms. One example is the efficiency of photoassociation of cold atoms and the formation of cold molecules [1]. In the case of a Rydberg atomic ensemble, the range of the dipole-dipole interactions can exceed several micrometers, leading to many-body effects [2–4]. An interesting application of the dipole-dipole interaction is the dipole blockade (DB) in Rydberg excitation. This effect offers exciting and fascinating possibilities for manipulating quantum bits stored in a single collective excitation in mesoscopic ensembles [5], or for realizing scalable quantum logic gates [6]. The DB process for an ensemble of atoms is the result of shifting the Rydberg energy from its isolated atomic value due to the dipole-dipole interaction with the surrounding atoms. In a large volume, a partial or local blockade, corresponding to a limitation of the excitation is expected when the dipole-dipole energy shift exceeds the resolution of the laser excitation. In a zero electric field, Rydberg atoms present no permanent dipole and no DB is expected. Nevertheless, a van der Waals blockade, corresponding mostly to a second order dipole-dipole interaction, has been observed through a limitation of the excitation of high Rydberg states np ($n \sim 70$ –80) of rubidium, using a pulsed amplified single mode laser [7]. CW excitations have also been performed [8,9]. The suppression of the excitation and effect on the atom counting statistics have been observed [8]. The DB phenomenon itself has been observed for the first time, in the case of cesium Rydberg atoms, for a so-called Förster resonance energy transfer (FRET) reaction, $np + np \rightarrow ns + (n+1)s$ [10]. The FRET configuration has several advantages: the dipole-dipole interaction can be tuned on and off by the Stark effect, the dipole-dipole interaction having its maximum effect at the resonant field. Its main drawback comes from the fact that the resonance exists only for $n \leq 41$ in the cesium case, which limited the observed DB to an efficiency of $\sim 30\%$.

In this Letter, we report the experimental evidence for a DB with an efficiency larger than 60%. In order to obtain

higher couplings than the van der Waals or Förster ones, we apply an electric field to create a significant dipole moment. Indeed, the Stark Rydberg state np presents an electric dipole moment mostly due to its mixing with the $(n-1)d$ state. For higher n , it can, however, be experimentally challenging to observe the dipole blockade effect without any ambiguity. Ions could for instance lead to a similar effect as the DB one. The Letter is presented as following. First, we discuss the role of ions and the importance of removing almost all ions in the experiment. We then report the DB results which are finally compared to an analytical model.

In every Rydberg DB experiment the role of ions needs to be studied carefully because the presence of a single ion creates a spurious electric field of 1.5 mV/cm at a distance of 100 μm . The role of ions is often underestimated and can lead to a blockade similar to the van der Waals or the DB effect. In the Förster configuration, due to the low n value, it was clearly demonstrated [10] that the presence of some ions did not affect the observed limitation of the excitation. For higher n values, the presence of a single ion during the excitation could easily shift the Rydberg energy level up to a few MHz exceeding the width of the laser resolution. In other words, the appearance of a single ion can stop or limit the excitation. To investigate in more detail how strong the effect of ions is, numerical simulations have been performed. The first simulation is based on single atom reduced density matrix evolution (detailed hereafter). Comparison of the Rydberg excitation when a single ion is initially present and without the ion but with the dipole-dipole interaction present is displayed in Fig. 1(a). Both excitations show an almost similar behavior when varying the electric field. However, in our experiment we have found that the ions do not appear at the beginning of the excitation, but are due to the presence of Rydberg atoms. Indeed, we have experimentally studied the temporal evolution of the number of ions and found a constant rate of ionization with a linear dependence on the number of Rydberg atoms. The origins of the ions are then mainly thermal blackbody radiation and collisions such as Penning

PRL 99, 073002 (2007)

PHYSICAL REVIEW LETTERS

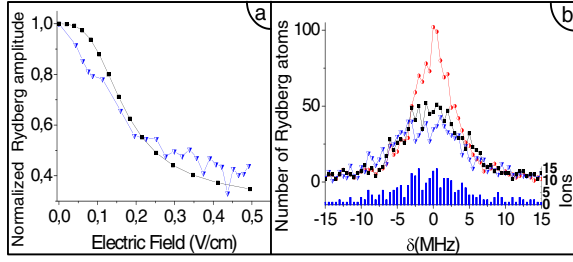
week ending
17 AUGUST 2007

FIG. 1 (color online). Comparison of the DB with the ion blockade effect. Number of atoms excited from ground state to the $70p_{3/2}$ Rydberg state after a 300 ns laser excitation. (a) Reduced density matrix model (see text) for different external electric-field values. Down triangles: a single ion is randomly present in the sample before the laser excitation but no dipole-dipole interaction is taken into account. Squares: calculation taking into account only the nearest neighbor dipole-dipole interaction with no ions. (b) kinetic Monte Carlo simulation of the laser excitation, versus the detuning from resonance. 8500 ground state atoms are involved in a spherical Gaussian cloud of $\sigma = 30 \mu\text{m}$ ($1/e^{1/2}$) radius at a given electric field ($F = 0.4 \text{ V/cm}$). No dipole interactions (circles), with no dipole interactions but with ions appearing from Rydberg ionization (down triangles), all dipole-dipole pair interactions but no ions (squares).

ionization between Rydberg atoms and surrounding hot $6s$ or cold $6p$, $7s$ atoms. Rydberg atom–Rydberg atom collisions, occurring from the pair dynamics under the influence of the attractive long-range forces [11,12], appear only after $1 \mu\text{s}$, long after the end of the excitation process. We have then derived a second model based on a kinetic Monte Carlo simulation, taking into account a constant ionization rate of the Rydberg atoms. The result, see Fig. 1(b) where an ionization rate 20 times larger than the experimental one has been chosen to enhance its effect, illustrates the role of the Rydberg ionization. Once again few ions have almost the same effect as the dipole-dipole interaction when no ions are present. The kinetic Monte Carlo algorithm has been chosen because it gives the exact time evolution of rate equations system [13]. Here the rate equations describe the (2-level) atoms excitation, the sum of all possible two-body dipole-dipole interactions, and the external and ionic electric fields effects. In conclusion, the main result of these two types of simulations is that ions can lift any Rydberg density effect such as the DB one.

Therefore, the number of ions has to be minimized experimentally, for instance by avoiding the excitation of too many Rydberg atoms and by avoiding a too long laser excitation time. The details of the experimental setup have been described in Ref. [10]. The Rydberg atoms are excited from a cloud of 5×10^7 cesium atoms (characteristic radius $\sim 300 \mu\text{m}$, peak density $1.2 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$) produced in a standard vapor-loaded magneto-optical trap (MOT). The first step of the excitation, $6s$, $F = 4 \rightarrow$

$6p_{3/2}$, $F = 5$, is provided either by the trapping lasers (wavelength: $\lambda_1 = 852 \text{ nm}$) or by an independent laser. The density of excited, $6p_{3/2}$, atoms can be modified by switching off the repumping lasers before the excitation sequence. The second step, $6p_{3/2}$, $F = 5 \rightarrow 7s$, $F = 4$, is provided by an infrared diode laser in an extended cavity device from Toptica (wavelength: $\lambda_2 = 1.47 \mu\text{m}$, bandwidth: 100 kHz). The experimental average intensity is $\sim 3 \text{ mW/cm}^2$ twice the saturation one. The last step of the excitation, $7s$, $F = 4 \rightarrow np_{1/2,3/2}$ (with $n = 25\text{--}140$), is provided by a titanium:sapphire laser (Ti:Sa), wavelength $\lambda_3 = 770\text{--}800 \text{ nm}$, bandwidth: 1 MHz. The beams of the infrared diode laser and Ti:Sa laser are focused into the atomic cloud with a $(1/e^{1/2})$ radius $2\sigma = 70\text{--}125 \mu\text{m}$. The Ti:Sa laser is switched on with a fixed optical frequency during a time, $\tau = 0.3 \mu\text{s}$, by means of an acousto-optic modulator. Because of the short $7s$ lifetime and the short excitation time the spectral resolution of the excitation Δ_L is only on the order of 5 MHz (when no Ti:Sa optical saturation is present). The Rydberg atoms are selectively field ionized by applying, at a chosen time (between 0 and $1 \mu\text{s}$) after the end of the Ti:Sa laser pulse, a high field pulse with a rise time of 700 ns. We use a time of flight technique and a microchannel plate (MCP) detector to know the total number of detected ions at the MCP. From the $\sim 30\%$ quantum detection efficiency of the MCP we estimate the number of Rydberg atoms present in the experimental area. We define the density as $n_{\text{Ry}} = N/(2\pi\sigma^2)^{3/2}$. The repetition rate of the experiment is 80 Hz. The Ti:Sa laser polarization is linear and parallel to the direction of the applied electric-field, leading to the excitation of the magnetic sublevel, $np_{1/2}$ or $np_{3/2}$ $|m\rangle = 1/2$. Using other inner electrodes we have compensated any stray fields to less than 1 mV/cm . For clarity we will present here only results obtained with $np_{3/2}$ atoms, but similar results have been obtained when using the $np_{1/2}$ state [14].

Most of the following results can be understood using a simple two-level approach, valid for small electric fields ($F \ll 1/3n^5$ atomic units), assuming only mixing of the np state with the $(n-1)d$ one. To compare the results obtained for different principal quantum numbers n , it is convenient to introduce the scale parameter θ characterizing the dipole coupling for each level np defined by $\tan\theta = \frac{|W_n|}{\hbar\Delta_n/2}$, where $\hbar\Delta_n$ is the zero field energy difference between the $(n-1)d$ and np levels and W_n the Stark coupling $W_n = \langle (n-1)d_j + 1, m | -q_e\vec{r} \cdot \vec{F} | np_j m \rangle$, coming from the existence of a nonzero permanent dipole, aligned with the static electric field $\vec{F}$, $\langle np_j, m, F | q_e\vec{r} | np_j, m, F \rangle = \vec{\mu}$. In the simple two-level approach the np Rydberg permanent dipole is $\mu \sim q_e a_0 n^2 \sin\theta$ and the single np excitation probability would have a value of $\cos^2(\theta/2)$ compared to the zero electric-field value. To be more accurate, for all the curves shown in this Letter, we

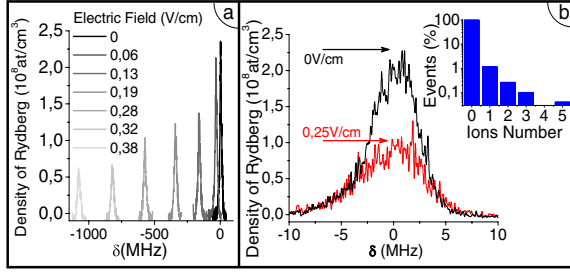


FIG. 2 (color online). (a) Excitation spectral lines of the $75p_{3/2}$ level recorded for different electric fields with $\sigma = 120 \mu\text{m}$. (b) Excitation spectral lines of the $70p_{3/2}$ level for two different fields, as a function of the detuning from the resonance frequency of the transition $7s \rightarrow 70p_{3/2}$ with $\sigma = 35 \mu\text{m}$. Events of MCP detected ions during the scan are also presented (inset, log scale).

did not use this simple model but we used the exact dipole moments calculated by considering the ensemble of the levels of the Stark diagram [15].

Figure 2(a) displays an ensemble of spectra of the excitation of the level, $75p_{3/2}$, for different values of the static electric field F , indicating the limitation of the excitation induced by the electric field. Figure 2(b) displays two spectra of the resonance line for the excitation of the level, $70p_{3/2}$, at zero field and at $F = 0.25 \text{ V/cm}$. A clear effect appears at the center of the resonance line with a large decreasing of the intensity of the line. It is worth noting that this effect is much stronger than the one due to the reduction of the np character of this state when the electric field increases. At this point, it is very important to determine if this reduction of the excitation can be attributed to DB or to ion blockade. In the present experiment, for evacuating the role of any ions, we have performed the experiment with conditions where the observed number of ions is on average well below unity as shown in the inset of Fig. 2(b). This absence of ions is confirmed in the simulation of Fig. 1(b) by the fact that the appearance of ions would have been correlated with the Rydberg signal.

We can then safely attribute the limitation of the excitation to a DB and not to an ion blockade. We stress here that the wings of the resonance should not be affected (and are not) by the DB because the number of excited Rydberg atoms is reduced. However, in our experiment an apparent increasing of the linewidth (FWHM) is observed because the line no longer has a Lorentzian shape.

Figure 3(a), similarly to Fig. 2(a), demonstrates the DB effect for the excitation of different levels, $np_{3/2}$, with n equal to 60, 70, and 85, but here the signal is normalized to the single atom probability excitation. In this study, the intensity of the Ti:Sa laser is set to be inversely proportional to the oscillator strength of the transition, $7s \rightarrow np$, meaning a n^3 dependence. Figure 3(b) shows the decrease of the Rydberg excitation for $np_{3/2}$ states, with n equal to

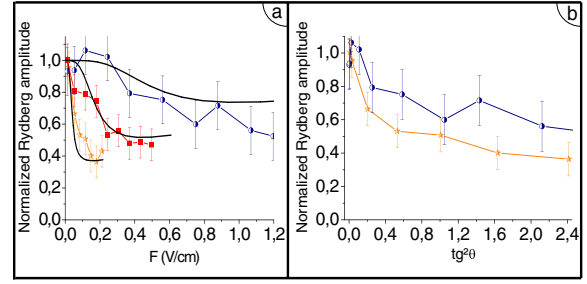


FIG. 3 (color online). (a) Probability, as a function of the electric field, of Rydberg atoms excitation in our sample compared to the single atom probability excitation. n is equal to 60 (circles), 70 (squares), and 85 (stars). The Ti:Sa laser intensity is given by $(n/85)^3 \times 560 \text{ W/cm}^2$. Solid lines are given by the reduced density matrix model. (b) Data for $n = 60$ and $n = 85$ [same as (a)], characterized by $\tan^2 \theta$ (see text).

60 and 85, versus $\tan^2 \theta$. We observe a more efficient DB effect for $n = 85$ than for $n = 60$.

To model our data, we have developed a model based on the interaction of each atom i , with its Rydberg neighbors j (more details can be found in [14]). If atom i could be excited to the Rydberg state its energy shift due to the presence of an already excited j atom would be

$$W_{ij} = \frac{\vec{\mu}_i \cdot \vec{\mu}_j - (\vec{\mu}_i \cdot \vec{r}_{ij})(\vec{\mu}_j \cdot \vec{r}_{ij})}{4\pi\epsilon_0 R_{ij}^3},$$

where $\vec{\mu}_{ij} = \vec{R}_{ij}/R_{ij}$ with R_{ij} the interatomic distance between the Rydberg atoms i and j . Because of the $1 - 3\cos^2\psi$ variation of the W_{ij} , where ψ is the angle between the internuclear axis and the dipoles (i.e., the external field), the angular averaging of W_{ij} would lead to zero. Therefore, we need to discretize the averaging. We found by the Monte Carlo simulation that the nearest neighbor interaction dominates. We then model the dipole-dipole interaction using only the nearest neighbor Rydberg atom j and neglect the mean-field interaction. On the contrary, for the van der Waals interaction, the simulation indicates that the nearest neighbor interactions can be neglected compared to the mean field one. W_{ij} is significant only when both atoms are in the Rydberg state. We find

$$\text{Tr}_{\neq i}[W_{ij}, \rho] \simeq \frac{\mu^2 n_{\text{Ry}}(\vec{r}_i)}{4\pi\epsilon_0} [|np\rangle_i \langle np|, \rho_i],$$

which corresponds for the atom i to a shift of the Rydberg level np proportional to the local Rydberg density $n_{\text{Ry}}(\vec{r}_i)$. Here ρ is the density matrix for the ensemble of atoms, and $\rho_i = \text{Tr}_{\neq i} \rho$ is the reduced density matrix for the single atom i . For a given atom i , we solve the evolution equation of the partial density matrix

$$i\hbar \frac{d\rho_i}{dt} = [H_i, \rho_i] + \text{Tr}_{\neq i}[W_{ij}, \rho]$$

PRL **99**, 073002 (2007)

PHYSICAL REVIEW LETTERS

week ending
17 AUGUST 2007

H_i is the (Bloch equation type) Hamiltonian describing the 3-steps excitation. The spontaneous emission relaxation terms are taken into account but not written here for the sake of simplicity. Moreover, this model allows us to explain that the residual asymmetry observed in the line shapes of the Fig. 1(b) comes from off-resonant two and three photons excitation.

Figure 3(a) shows a good agreement between the calculated curves and the experimental ones.

The DB condition $W_{ij} < h\Delta_L$ can be simply evaluated using the 2-level approach. Using $W_{ij} \sim (\mu^2/4\pi\epsilon_0 R_{ij}^3)$ it gives a limitation to the excitation corresponding to a density $n_{\text{Ry}} \sim h\Delta_L 4\pi\epsilon_0/\mu^2$. Such a density limitation is illustrated by Fig. 4(a), showing the evolution of the DB versus the Ti:Sa laser intensity in the case of the $70p_{3/2}$ Rydberg level, where the simple DB condition gives $N \sim 700$ Rydberg atoms and fits well to the experiment ($\sigma \sim 50 \mu\text{m}$). We observe a power saturation for intensities larger than 250 W/cm^2 explaining why the maximum DB efficiency is reached when the intensity is close to 250 W/cm^2 . For higher intensity an optical broadening occurs so Δ_L increases and the DB efficiency decreases. For the zero field case, taking into account the van der Waals coupling between the atoms modifies the theoretical curve, giving a better agreement with the experimental data. The DB efficiency, evaluated by comparison with the zero field case, is also presented in Fig. 4(b) from two data sets taken at two different $6p$ (and so two different $7s$) atomic densities. In Fig. 4(b) the slope of 0.85 represents the excitation probability of the np state, $\cos^2(\theta/2)$ at $F = 0.25 \text{ V/cm}$. The DB appears not to be dependent on the $6p$, $7s$ densities but only on the number of excited Rydberg atoms. This result shows also that the ionization rate of Rydberg atoms from $6p$ or $7s$ atoms is negligible here.

To conclude, we have presented the evidence for an efficient (60%) DB controlled via the Stark effect, of the Rydberg excitation in a cold cesium atomic sample. The observation of the DB is challenging because almost no ions should be present during the short excitation pulse. An analytical model based on the preferential role of the nearest neighboring Rydberg atoms, confirmed by Monte Carlo simulations, has been derived and provides a good account of the data. The control of the DB with an external field is a promising method and a microwave field instead of Stark effect or Förster may be used to produce the dipole moments and to control the DB [16,17]. A particularly promising direction of research is now the observation of the total DB, meaning the collective excitation of a single atom. The coherence time of the excitation will, however, need to be longer for such manipulations (limited to 30 ns in our experiment). DB mechanism can also be used to realize a quantum gate with, for instance, two interacting atoms in microdipole traps [18].

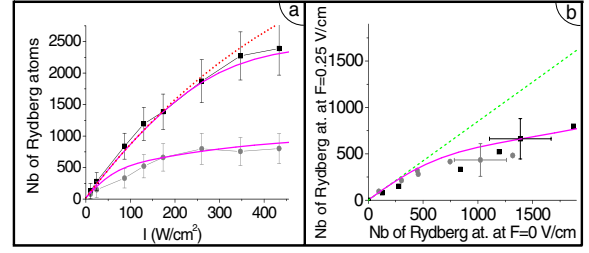


FIG. 4 (color online). Number of Rydberg atoms excited versus the Ti:Sa laser intensity, in the case of the $70p_{3/2}$ state, for (a) $7s$ -atom density $D \sim 4 \pm 2 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$ and in the presence of two different electric fields, 0 V/cm (squares) and $F_1 = 0.25 \text{ V/cm}$ (circles); (b) number of Rydberg atoms excited in the presence of the electric field F_1 is plotted versus the number of Rydberg atoms excited at zero field, for two $6p$ $7s$ -atom densities, D (squares) and $D/2.7$ (circles). The DB efficiency is the ratio between the experimental points and the straight dashed line. In (a) and (b): solid lines are theoretical calculations taking into account the van der Waals blockade at zero field and the DB in the presence of the electric field F_1 . In (a), for comparison, we have also presented the curve with no van der Waals coupling (dotted curve).

The prospect for quantum gate devices and control of ultracold Rydberg atoms in this quantum regime is still a challenge.

This work is in the frame of “Institut francilien de recherche sur les atomes froids” (IFRAF). The authors thank and acknowledge very fruitful discussions with Thomas F. Gallagher, Duncan A. Tate, Etienne Brion, Marcel Mudrich, Nassim Zahzam, and Vladimir Akulin.

- [1] A. Fioretti *et al.*, Phys. Rev. Lett. **80**, 4402 (1998).
- [2] I. Mourachko *et al.*, Phys. Rev. Lett. **80**, 253 (1998).
- [3] W.R. Anderson *et al.*, Phys. Rev. Lett. **80**, 249 (1998).
- [4] A. Fioretti *et al.*, Phys. Rev. Lett. **82**, 1839 (1999).
- [5] D. Jaksch *et al.*, Phys. Rev. Lett. **85**, 2208 (2000).
- [6] M.D. Lukin *et al.*, Phys. Rev. Lett. **87**, 037901 (2001).
- [7] D. Tong *et al.*, Phys. Rev. Lett. **93**, 063001 (2004).
- [8] T. Cubel Liebisch *et al.*, Phys. Rev. Lett. **95**, 253002 (2005).
- [9] K. Singer *et al.*, Phys. Rev. Lett. **93**, 163001 (2004).
- [10] T. Vogt *et al.*, Phys. Rev. Lett. **97**, 083003 (2006).
- [11] W. Li *et al.*, Phys. Rev. Lett. **94**, 173001 (2005).
- [12] T. Amthor *et al.*, Phys. Rev. Lett. **98**, 023004 (2007).
- [13] A. P. J. Jansen, arXiv:cond-mat/0303028.
- [14] T. Vogt, Ph.D. thesis, Université Paris Sud XI, 2006.
- [15] M. Zimmerman *et al.*, Phys. Rev. A **20**, 2251 (1979).
- [16] P. Pillet *et al.*, Phys. Rev. A **36**, 1132 (1987).
- [17] P. Bohlouli-Zanjani *et al.*, Phys. Rev. Lett. **98**, 203005 (2007).
- [18] B. Darquie *et al.*, Science **309**, 454 (2005).

Dipole Blockade at Förster Resonances in High Resolution Laser Excitation of Rydberg States of Cesium Atoms

Thibault Vogt,^{*} Matthieu Viteau, Jianming Zhao,[†] Amodsen Chotia, Daniel Comparat, and Pierre Pillet

Laboratoire Aimé Cotton, CNRS, Bâtiment 505, Campus d'Orsay, 91405 Orsay, France

(Received 5 March 2006; published 24 August 2006)

High resolution laser excitation of np Rydberg states of cesium atoms shows a dipole blockade at Förster resonances corresponding to the resonant dipole-dipole energy transfer of the $np + np \rightarrow ns + (n+1)s$ reaction. The dipole-dipole interaction can be tuned on and off by the Stark effect, and such a process, observed for relatively low $n(25-41)$, is promising for quantum gate devices. Both Penning ionization and saturation in the laser excitation can limit the range of observation of the dipole blockade.

DOI: 10.1103/PhysRevLett.97.083003

PACS numbers: 32.80.Rm, 32.80.Pj, 34.20.Cf, 34.60.+z

Rydberg atoms have long been known to have huge polarizabilities leading to exaggerated collisional properties of room temperature atoms, in particular, large cross sections and long interaction times [1]. These properties have stimulated great interest in the possibility of controlling the strong long-range interactions between cold atoms [2–4], which could be particularly exciting for quantum information applications [5,6]. One interesting process is the possibility of the dipole blockade in the Rydberg excitation of atoms, due to the dipole-dipole interaction shifting the Rydberg energy from its isolated atomic value. The use of the dipole blockade of the excitation has been proposed as a very efficient realization of a scalable quantum logic gate [6]. In a large ensemble of atoms, the first excited Rydberg atoms shift the resonance for their non-excited neighbors and prevent their excitation with a narrow-bandwidth laser. A partial, or local, blockade of the Rydberg excitation is expected. If the volume of the laser excitation is small enough, no two-atom collective excitation can occur, producing an atomic ensemble in a singly excited collective state.

Up until now, there has been no evidence of a dipole blockade. In a zero electric field, atomic Rydberg states do not have permanent dipole moments, and no dipole blockade is expected. Second order dipole-dipole or van der Waals coupling between Rydberg atoms can occur, and a suppression of the excitation corresponding to a partial, or local, blockade has been reported in excitation of high Rydberg states ($n \sim 70-80$) using a pulsed amplified single mode laser [7]. Cw excitations have also been performed showing the suppression of the excitation [8] and studying the sub-Poissonian atom counting statistics [9]. It has been noticed that, for long-duration excitations, the appearance of ions can prevent the observation of the blockade [9]. Another limitation of the blockade which we underscore in this Letter is laser power broadening. For a broadband excitation, the suppression of the excitation is not expected. Rather a band of levels can be excited with a density-dependent broadening, which has been probed using microwave transitions [10,11], or laser depumping [12]. In the presence of an electric field, Rydberg atoms

can have a significant permanent dipole moment, but different couplings should be considered to understand the behavior of the excitation and of the blockade. A simpler situation is to use a configuration similar to Förster resonances [13] which corresponds to a strong and dominant dipole-dipole coupling at low electric field. The Förster (or fluorescence) resonance energy transfer is commonly used as a spectroscopic technique based on long-range dipole-dipole coupling to estimate small distances and dynamics between fluorescent molecules [14,15].

In this Letter, we report the observation of the dipole blockade of the cesium Rydberg excitation using cw lasers. We take advantage of the Förster resonance (FR)

$$np_{3/2} + np_{3/2} \rightarrow ns + (n+1)s, \quad (1)$$

obtained when the $np_{3/2}$ Stark level is Stark shifted midway in the energy diagram between the levels ns and $(n+1)s$ [2], which exists only for $n \leq 41$. The average dipole-dipole interaction is given by $W \sim \mu\mu'R^{-3}$, where $\mu, \mu' \sim n^2$ a.u. are the dipoles corresponding to the transitions $np_{3/2} \rightarrow ns$ and $np_{3/2} \rightarrow (n+1)s$, respectively, and R is the interatomic distance. At FR, we observe a significant decrease $\sim 30\%$ of the total number of excited (s and p) Rydberg atoms N_{tot} interpreted as the result of a dipole blockade.

The details of the experimental setup have been described in several papers [2,4,12]. Here three cw lasers provide a high resolution multistep scheme of excitation, as depicted in Fig. 1(a). The Rydberg atoms are excited from a cloud of 5×10^7 cesium atoms (temperature $200 \mu\text{K}$, characteristic radius $\sim 300 \mu\text{m}$, peak density $1.2 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$) produced in a standard vapor-loaded magneto-optical trap (MOT). The first step of the excitation, $6s, F=4 \rightarrow 6p_{3/2}, F=5$, is provided by the trapping lasers (wavelength $\lambda_1 = 852 \text{ nm}$). The density of excited, $6p_{3/2}$, atoms can be modified by switching off the repumper lasers before the excitation sequence. The second step, $6p_{3/2}, F=5 \rightarrow 7s, F=4$, is provided by an infrared diode laser in an extended cavity device (wavelength $\lambda_2 = 1.47 \mu\text{m}$, bandwidth 100 kHz , and available

PRL 97, 083003 (2006)

PHYSICAL REVIEW LETTERS

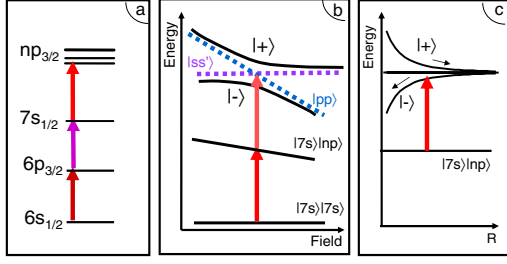
week ending
25 AUGUST 2006

FIG. 1 (color online). (a) Three-step scheme of excitation for $np_{3/2}$ Rydberg levels. (b) Excitation of a pair of atoms at the Förster resonance. The dipole-dipole coupling $W \sim \mu\mu'R^{-3}$ leads to an avoided crossing between the energy levels of the pair of atoms $pp \equiv |np_{3/2}\rangle \otimes |np_{3/2}\rangle$ and $ss' \equiv |ns\rangle \otimes |(n+1)s\rangle$. At resonance, the eigenstates are $|+\rangle = (pp + ss')/\sqrt{2}$ and $|-\rangle = (pp - ss')/\sqrt{2}$. (c) Internuclear energy dependence and excitation of the states $|+\rangle$ and $|-\rangle$ states corresponding to mutual repulsive and attractive forces between the two atoms, respectively.

power 20 mW). The experimental average intensity is ~ 3 mW/cm², twice the saturation one. The last step of the excitation, $7s, F = 4 \rightarrow np_{3/2}$ (with $n = 25-45$), is provided by a titanium:sapphire (Ti:Sa) laser. The wavelength λ_3 ranges from 770 to 800 nm, the bandwidth is 1 MHz, and the available power is 400 mW. The Ti:Sa laser is switched on during a time $\tau = 0.3$ μ s by means of an acousto-optic modulator. The beams of the infrared diode laser and Ti:Sa laser cross with an angle of 67.5° and are focused into the atomic cloud with waists of 105 and 75 μ m, respectively. Their polarizations are both linear and parallel to the direction of the applied electric field, leading to the excitation of the magnetic sublevel $np_{3/2} |m| = 1/2$. The spectral resolution $\Delta\nu_L$ of the excitation is of the order of 6 MHz, limited by the lifetime 56.5 ns of the $7s$ state and by the duration and the spectral width of the Ti:Sa laser pulse. The magnetic quadrupole field of the MOT is not switched off during the Rydberg excitation phase; it contributes less than 1 MHz to the observed linewidths. The Rydberg atoms are selectively ionized and then detected by applying, just after the Ti:Sa laser pulse, a high field pulse with a rise time of 700 ns.

The experimental procedure is based on spectroscopy of Stark $np_{3/2}$ states by scanning the optical frequency of the Ti:Sa laser pulse at a repetition rate of 80 Hz for different atomic densities and for different Ti:Sa laser intensities.

Figure 2(a) shows the field dependence of the total number of Rydberg atoms N_{tot} when the Ti:Sa laser is resonant with the transition $7s \rightarrow 38p_{3/2}$. At zero field, N_{tot} is about 4700, which gives an estimation of the peak density 3.0×10^9 cm⁻³. The figure exhibits a marked minimum of N_{tot} at FR (reaction 1) for $F = 1.46$ V/cm. Such a result is interpreted as the signature of the dipole blockade. It means that no pairs of close atoms can be excited at FR if the dipole-dipole coupling W exceeds the

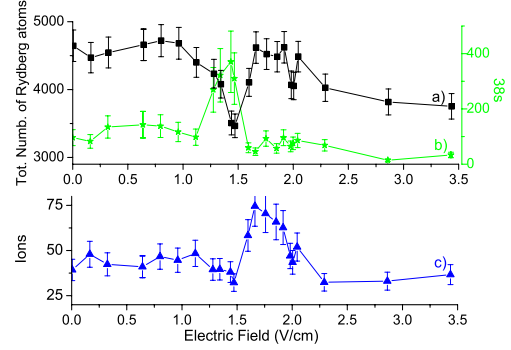


FIG. 2 (color online). Dipole blockade for the $38p_{3/2}$ level versus the applied electric field for a $7s$ -atom density $\sim 8 \pm 3 \times 10^9$ cm⁻³. For each recorded point of the curves, the Ti:Sa laser is resonant with the transition $7s \rightarrow 38p_{3/2}$, with a power ~ 8 mW corresponding to an average intensity of 45 W/cm². (a) Total number of Rydberg atoms, (b) number of $38s$ atoms, and (c) number of ions. (a)–(c) Error bars indicate measurement uncertainties.

resolution of the laser excitation $\Delta\nu_L \sim 6$ MHz, i.e., if the interatomic spacing $R \sim (\mu\mu'/W)^{1/3}$ is smaller than $R_{\text{min}} \sim (\mu\mu'/\Delta\nu_L)^{1/3}$. For $n = 38$, we obtain $R_{\text{min}} \sim 4$ μ m, which is compatible with the average interatomic distance in the center of the Rydberg cloud $R_{\text{av}} \sim 4.8$ μ m deduced from the measured Rydberg atom number and peak density 3400 and 2.2×10^9 cm⁻³, respectively (the corresponding mean dipole-dipole interaction is $W_{\text{av}} \sim 3.3$ MHz). Outside FR, N_{tot} is relatively constant at low fields but decreases at fields higher than 2.5 V/cm. As mentioned in the introduction, the $p, d, \dots$ characters in the Stark p level create a permanent atomic dipole and modify the excitation and interatomic couplings. Studies on these couplings are in progress and are not the subject of this Letter. Figure 2(b) shows the field evolution of the population transferred in the $38s$ level, selectively detected. The s transfer signal is maximum at FR with the same FR field width (FWHM) as the one observed in Fig. 2(a) for N_{tot} . Figure 2(c) corresponds to a weak ion signal which is recorded with the Rydberg one. Their number is less than 1% of N_{tot} , relatively constant except on the high field wing of FR, where the number of ions increases up to $\sim 2\%$. As shown in Fig. 1(c), on the high field wing of FR, pairs of close atoms are excited in a situation of a mutual attractive dipolar force [4,12], responsible for Penning ionization [16]. This weak number of ions adds no broadening to the Rydberg resonance lines. Similar features to those of Fig. 2 are obtained for FRs with $n = 25-41$. For $n \geq 42$, the FR no longer exists. A limitation of the excitation at zero field is, nevertheless, observed for $n = 42$ because the small energy gap -9.5 MHz between pp and ss' pairs corresponds to a quasi-Förster resonance.

The effect of the dipole blockade depends on the initial atomic density (here the $7s$ density), as it is analyzed for the $36p_{3/2}$ FR which occurs at $F = 2.52$ V/cm [Fig. 3(a)]. Figure 3(b) displays two spectra of the resonance line, one recorded far from FR at $F' = 0.86$ V/cm (labeled 1), the other one at FR (labeled 2). At FR, a clear effect of the dipole blockade appears in the center of the line with a 30% dipole blockade of the excitation. The dipole blockade does not occur in the wings of the resonance lines mostly due to the reduced number of excited Rydberg atoms. Figure 3(c) compares the total number of Rydberg atoms excited at FR versus the one outside FR (at 1.37 V/cm) for two different peak densities of $7s$ atoms, $D \sim 8 \pm 3 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$ (case also considered in Figs. 2 and 4) and $D/3 \sim 2.7 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$. For each density, the number of Rydberg atoms is increased by raising the Ti:Sa laser power. The effect of the dipole blockade is characterized by the gap between the experimental data and the straight line of slope 1. In both cases, it appears when more than 1000 Rydberg atoms are excited [see the solid line arrows

in Fig. 3(c)] and both curves present the same evolution up to 2000 Rydberg excited atoms at FR. Then the evolutions differ, the dipole blockade being much less efficient for the density $D/3$. This behavior is due to the laser power saturation of the excitation ($\propto n^3$), reached when the Rabi frequency associated with the $7s \rightarrow np_{3/2}$ transition is close to the spontaneous emission rate of the $7s$ level. For both densities, the maximum blockade is reached at a ~ 8 mW laser power [see the two dashed arrows in Fig. 3(c)] and becomes less efficient for a higher power. Figure 3(d) shows outside FR the appearance of the broadening of the Rydberg resonance lines with the laser power. The resolution of the laser excitation $\Delta\nu_L$ increases from 6 to 12 MHz. Thus, the excitation of pairs of closer atoms becomes possible at FR, preventing the dipole blockade. As mentioned before, at FR the dipole blockade is more efficient in the center of the line than on the wings, leading to an apparent broadening compared to the linewidths far from FR [see Figs. 3(b) and 3(d)]. To conclude, three kinds of conditions have to be fulfilled to realize the dipole blockade: the control of spurious effects (ions or stray fields), the nonsaturated laser excitation, and the highest possible spectral resolution. The measured dipole blockade rates depend on our experimental conditions and could be optimized especially at low $n \sim 25$, where they are strongly limited by the power saturation reached at ~ 2.5 mW. The dependence of the dipole-dipole interaction with the angular distribution of atoms [17] will provide the ultimate limit for the efficiency of the dipole blockade.

After conversion of the $38p_{3/2}$ and $38s$ FR widths [shown in Fig. 2(a)] to frequency by using the Stark shift of the p level [see Fig. 1(b)], we obtain 50 ± 10 MHz

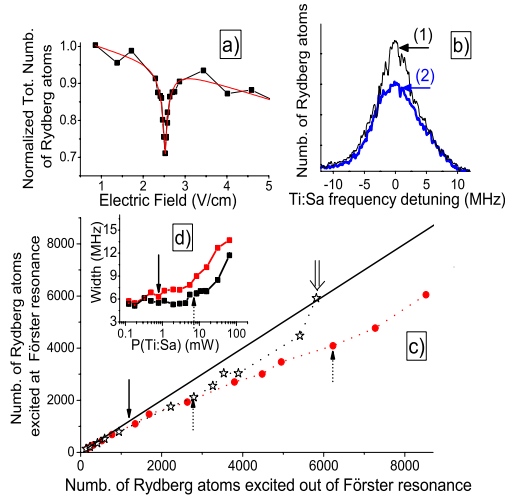


FIG. 3 (color online). Dipole blockade for the $36p_{3/2}$ level. Similar conditions as Fig. 2 are used in (a) and (b). (a) Field sweep of the FR. The signal is normalized to one at 0.86 V/cm. (b) Excitation spectral lines for two different fields: (1) at FR ($F = 2.52$ V/cm) and (2) off FR at 0.86 V/cm. (c) Total number of Rydberg atoms at FR versus the one off FR ($F' = 1.37$ V/cm), for the $7s$ -atom densities $D \sim 8 \pm 3 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$ (solid circles) and $D/3$ (empty stars). The Ti:Sa power ranges 0–14 and 0–67 mW for the D and $D/3$ densities, respectively. (d) Linewidths of the $7s \rightarrow 36p_{3/2}$ spectral line, versus the Ti:Sa power P at both fields F (upper curve) and F' (lower curve). (c) and (d) Solid line arrows indicate the beginning of the dipole blockade, dashed arrows the beginning of the line broadening due to the power saturation. (c) A double down arrow indicates the complete power saturation of the excitation [$P(\text{Ti:Sa}) > 60$ mW] in the case of the $D/3$ density (the blockade is no longer observed). A similar result is obtained for the D density when the number of Rydberg atoms reaches ~ 12000 .

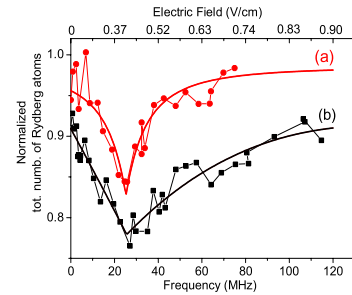


FIG. 4 (color online). Normalized total number of excited $41p_{3/2}$ Rydberg atoms versus the Stark shift (V/cm and MHz) of the $41p_{3/2}$ Stark level. The electric field has been converted to frequency using the experimental Stark shifts, in agreement with calculated ones. The two curves correspond to two different Rydberg atom number at Förster resonance, 3000 (circles) and 5000 (squares), obtained for laser powers 8 and 20 mW, respectively. The normalization factor is the number of atoms excited at a higher frequency (200 MHz). The fits use an empirical law not given here. The widths (FWHM) of the above Förster resonances are 20 ± 5 and 90 ± 30 MHz, respectively.

PRL **97**, 083003 (2006)

PHYSICAL REVIEW LETTERS

week ending
25 AUGUST 2006

(FWHM). In this experiment, the FR width is 1 order of magnitude larger than the mean dipole-dipole interaction W_{av} , limited by the resolution of excitation $\Delta\nu_L$. This result appears surprising but is in agreement with the measured FR widths of the s transfer in the experiments with a broadband laser excitation [2,3,12]. The interpretation of those experiments is based on the interplay between two-body and many-body effects [11,18,19]. The latter includes the migration of the s excitation [ns or $(n+1)s$] in the p state environment by excitation exchange due to dipole-dipole resonant exchange processes

$$ns + np_{3/2} \rightarrow np_{3/2} + ns$$

$$\text{and } (n+1)s + np_{3/2} \rightarrow np_{3/2} + (n+1)s. \quad (2)$$

The many-body effects have been experimentally investigated in detail [11] by modifying the Rydberg environment. They are roughly analogous to the diffusion of spins in glass. The role of reactions (2) probably has to be considered in our experiment. Figure 4 shows the FR plotted versus the Stark frequency shift in the case of the $41p_{3/2}$ level for two different numbers of Rydberg atoms at FR, 3000 (curve *a*) and 5000 (curve *b*). The dipole blockade leads, respectively, to $\sim 15\%$ and 25% suppression of the Rydberg excitation and the FR widths are 20 and 90 MHz, respectively. FR (a) presents a symmetric resonance shape, while FR (b) is asymmetric, indicating a different dynamics for pairs of excited atoms submitted to a mutual repulsive (weak electric field) or attractive (strong electric field) force [see Fig. 1(c)]. The full analysis will require consideration of the dynamics of the interacting atoms, the saturation of the excitation, and many-body effects occurring during the excitation.

To conclude, we have observed evidence of a 30% dipole blockade of the Rydberg excitation at Förster resonance, controlled via the Stark effect. The observation of the total dipole blockade, meaning a single atom collective excitation, is still a challenge. It implies a volume of the Rydberg sample with a radius of the order of R_{min} . Here we observe the Förster resonance up to $n = 41$, limiting R_{min} at the value of $4 \mu\text{m}$. The choice of another Förster configuration with n of the order of 100 or more increases R_{min} up to $20 \mu\text{m}$. This result is promising for future developments in quantum information. A microwave field instead of a static electric field can also be used to produce the dipole moments and to control the dipole blockade [20]. Understanding and controlling the dipole-dipole interaction are important to prevent the formation of ions in a cold Rydberg sample and to induce its evolution towards an ultracold correlated plasma [21,22]. The band of levels due to the Rydberg interactions can be probed by laser or microwave excitation, to test the decoherence in such

quantum complex systems [10–12]. The shape of the resonances can also be an excellent probe to test, for instance, the random character of the distribution of the pairs of atoms [23].

This work is in the frame of “Institut francilien de recherche sur les atomes froids” (IFRAF) and of the European Research and Training Networks COLMOL (No. HPRN-CT-2002-00290) and QUACS (No. HPRN-CT-2002-00309). One of the authors (J.Z.) is supported by IFRAF. The cw excitation development corresponds to a preliminary study for the CORYMOL experiment supported by an ANR grant (No. NT05-2 41884). The authors thank D. A. Tate for his helpful participation in preliminary work on this experiment and acknowledge very fruitful discussions with Thomas F. Gallagher, Marcel Mudrich, Nassim Zahzam, Paul Berman, and Vladimir Akulin. Laboratoire Aimé Cotton is associated to Université Paris-Sud and belongs to Fédération de Recherche Lumière Matière (LUMAT).

*Electronic address: thibault.vogt@lac.u-psud.fr

†Visiting scientist from College of Physics and Electronics Engineering, Shanxi University, China.

- [1] T. F. Gallagher, *Rydberg Atoms* (Cambridge University Press, Cambridge, England, 1994).
- [2] I. Mourachko *et al.*, Phys. Rev. Lett. **80**, 253 (1998).
- [3] W. R. Anderson *et al.*, Phys. Rev. Lett. **80**, 249 (1998).
- [4] A. Fioretti *et al.*, Phys. Rev. Lett. **82**, 1839 (1999).
- [5] D. Jaksch *et al.*, Phys. Rev. Lett. **85**, 2208 (2000).
- [6] M. D. Lukin *et al.*, Phys. Rev. Lett. **87**, 037901 (2001).
- [7] D. Tong *et al.*, Phys. Rev. Lett. **93**, 063001 (2004).
- [8] K. Singer *et al.*, Phys. Rev. Lett. **93**, 163001 (2004).
- [9] T. CubelLiebisch *et al.*, Phys. Rev. Lett. **95**, 253002 (2005).
- [10] K. Afrousheh *et al.*, Phys. Rev. Lett. **93**, 233001 (2004).
- [11] I. Mourachko *et al.*, Phys. Rev. A **70**, 031401(R) (2004).
- [12] M. Mudrich *et al.*, Phys. Rev. Lett. **95**, 233002 (2005).
- [13] T. F. Gallagher *et al.*, Phys. Rev. A **25**, 1905 (1982).
- [14] T. Förster, *Modern Quantum Chemistry* (Academic, New York, 1996).
- [15] T. Förster, Discuss. Faraday Soc. **27**, 7 (1959).
- [16] W. Li *et al.*, Phys. Rev. Lett. **94**, 173001 (2005).
- [17] T. G. Walker and M. Saffman, J. Phys. B **38**, S309 (2005).
- [18] W. M. Akulin *et al.*, Physica (Amsterdam) **131D**, 125 (1999).
- [19] J. S. Frasier *et al.*, Phys. Rev. A **59**, 4358 (1999).
- [20] P. Pillet *et al.*, Phys. Rev. A **36**, 1132 (1987).
- [21] M. P. Robinson *et al.*, Phys. Rev. Lett. **85**, 4466 (2000).
- [22] W. Li *et al.*, Phys. Rev. A **70**, 042713 (2004).
- [23] V. M. Akulin, *Coherent Dynamics of Complex Quantum Systems* (Springer, New York, 2006).

New Journal of Physics

The open-access journal for physics

Kinetic Monte Carlo modeling of dipole blockade in Rydberg excitation experiment

Amodsen Chotia¹, Matthieu Viteau, Thibault Vogt,
Daniel Comparat and Pierre Pillet

Laboratoire Aimé Cotton, CNRS, Université Paris-Sud, Bât. 505, 91405 Orsay,
France

E-mail: amodsen.chotia@lac.u-psud.fr and daniel.comparat@lac.u-psud.fr

New Journal of Physics **10** (2008) 045031 (21pp)

Received 11 February 2008

Published 30 April 2008

Online at <http://www.njp.org/>

doi:10.1088/1367-2630/10/4/045031

Abstract. We present a method to model the interaction and the dynamics of atoms excited to Rydberg states. We show a way to solve the optical Bloch equations for laser excitation of the frozen gas in good agreement with the experiment. A second method, the kinetic Monte Carlo (KMC) method, gives an exact solution of rate equations. Using a simple N -body integrator (Verlet), we are able to describe dynamic processes in space and time. Unlike more sophisticated methods, the KMC simulation offers the possibility of numerically following the evolution of tens of thousands of atoms within a reasonable computation time. The KMC simulation gives good agreement with dipole-blockade type of experiment. The role of ions and the individual particle effects are investigated.

¹ Author to whom any correspondence should be addressed.

Contents

1. Introduction	2
2. Experimental set-up	3
3. Dipole-blockade model	5
3.1. Reduced density matrix, mean field simulation	6
3.2. KMC simulations	7
3.3. KMC simulation of dipole–dipole interaction	9
4. Results	10
4.1. Field-induced dipole blockade	10
4.2. Effect of the ions	10
4.3. Role of the nearest neighbor	12
5. Conclusion	13
Acknowledgments	13
Appendix A. KMC method for solving rate equations	13
Appendix B. Simple method to solve the N-body problem	17
References	19

1. Introduction

From the seventies, physics of the Rydberg atoms has been an object of great interest. Most of the properties of Rydberg atoms are due to the dimension of the Rydberg orbit, typically in atomic units of the order of the square of the principal quantum number n . Possessing huge electric dipole moments, large lifetimes, . . . , Rydberg atoms have offered the opportunity of studying atoms in extreme experimental conditions, for instance, in the presence of high electric, magnetic or electromagnetic fields or approximating the conditions which correspond to (low n) atoms in the neighborhood of a star [1]. More recently, the physics of Rydberg states of atoms in cold gases has stimulated interest since they are at the frontier of atomic, molecular, solid-state and plasma physics. In an ensemble of cold Rydberg atoms many-body phenomena have been observed in a Förster configuration where the Rydberg atoms can exchange internal energy through long-range dipole–dipole interactions [2, 3]. The possibility of controlling those strong interactions between atoms has been demonstrated by using an external controllable electric field [4].

A basic difference between the experiments with cold Rydberg atoms and those with Rydberg atoms at room temperature is that cold Rydberg atoms on the ($\sim 1 \mu\text{s}$) timescale of the experiments can be approximately considered motionless. For example, in the case of cesium atoms, they move 100 nm, which is roughly the size of the atom, for $n \sim 30$. Such a cold gas is not expected to exhibit any collisions and presents totally different characteristics than does a thermal gas at room temperature. No collisions does not mean no interactions, and a frozen Rydberg gas can present novel properties, close to those of an amorphous solid. The frozen Rydberg gas approximation leads to considering the ensemble of Rydberg atoms as interacting at large distances by the van der Waals interaction or the dipole–dipole one. The Förster configuration leads to a situation very similar to the migration of excitons

[2, 3]. Thus, fascinating perspectives are expected with cold Rydberg atoms. Controllable long-range interactions are particularly exciting for quantum information applications, especially the so-called dipole blockade mechanism of the excitation due to the strong interactions between the Rydberg atoms [5, 6]. The energy of a pair of interacting Rydberg atoms is shifted by dipole–dipole interactions and is not twice the energy of one Rydberg atom. A limitation of the excitation is expected when the dipole–dipole energy shift exceeds the resolution of the laser excitation. The use of a dipole blockade of the excitation constitutes an efficient way for the realization of a CNOT quantum gate [5]–[10]. The possibility of observing the dipole blockade of laser excitation has been demonstrated for the first time with the van der Waals case [7, 8] and the Förster case [9]. Modeling the complex behavior of the dipole–dipole interaction in a frozen gas opens up interesting ways of understanding the role of each particle by switching on and off the different interactions or effects. The advantage offered by our simulation is the possibility of selectively adding effects/interactions depending on their rates with up to thousands of particles under reproducible conditions within a computational time of a few minutes. After a review of our experimental conditions, we describe the different methods we have been using to model the dipole-blockade effect observed in [9, 10]. We briefly explain the first method based on the solution of the optical Bloch equations, then we discuss the use of a kinetic Monte Carlo (KMC) simulation. We then present the results we obtained with the KMC model for different experimental situations. Due to the wide utility of algorithms used, we have presented in the appendices a review of the KMC method itself and the algorithm for the motion of the particles.

2. Experimental set-up

In many experiments with hot or cold Rydberg atoms, the experimental procedure is the following. The atoms are excited by a short laser pulse (~ 10 ns) to a Rydberg state, nl ($l = s, p, d$). Then, after a duration of a few microseconds, the Rydberg gas sample is selectively state-analyzed by using a high-voltage pulsed electric field with a risetime of the order of a microsecond. An important difference is observed between experiments realized at room temperature, using for instance a thermal atomic beam, and those realized with a cold atomic sample provided by a magneto-optical trap (MOT). In the case of cold atoms large fluctuations of the number of Rydberg atoms are generally observed between laser-shots. The reason is the very narrow linewidth (~ 1 kHz if excited from the ground state, ~ 5 MHz if excited from the $6p$ in cesium) of the Rydberg resonance, compared to the broad bandwidth multimode laser whose cavity modes oscillate randomly (multiple cavity modes spread over a few gigahertz). It leads to uncontrollable frequency shifts of ~ 500 MHz. In an atomic beam, the Doppler effect can be up to 1 GHz, which limits the fluctuations of the Rydberg population. In the case of the atoms in an MOT, there is no Doppler effect, which explains the strong fluctuations. In broadband experiments, the excitation of an ensemble of Rydberg atoms interacting altogether corresponds to the excitation of a band of energy levels, which can be excited by a short, thus broadband, laser pulse. The width of the band versus the Rydberg atomic density has been investigated by microwave spectroscopy [8] and laser spectroscopy [11]. Using monomode lasers for the excitation of cold atoms is a way to avoid the fluctuations of the Rydberg population from shot to shot.

Another important difference is expected between a broadband excitation and a high-resolution one. With narrow band, low-power excitation, only a small part of the band of levels can be excited, leading to the limitation of the excitation and corresponding to a

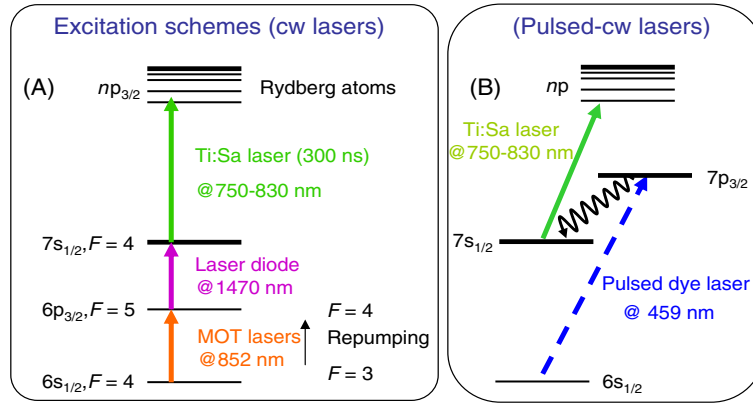


Figure 1. (A) Three-step excitation scheme for Cs Rydberg atoms. (B) Combined pulsed and cw-excitation.

van der Waals [7, 12] or dipole [10] blockade. The first excited Rydberg atoms shift the resonance of the non-excited neighbors and prevent their excitation in a narrow-bandwidth laser excitation.

The details of our experimental set-up have been described in several papers [2, 4, 9, 11]. The Rydberg atoms are excited in a cloud of up to 5×10^7 Cs atoms (temperature $200 \mu\text{K}$, characteristic radius $\sim 300 \mu\text{m}$, peak density $1.2 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$) produced in a standard vapor-loaded MOT at residual gas pressure of $3 \times 10^{-10} \text{ mbar}$ [2, 4]. At the trap position, a static electric field and a pulsed high-voltage field can be applied by means of a pair of electric field grids spaced by 15.7 mm . We consider an ensemble of cold cesium atoms excited in the Rydberg state, $np_{1/2}$ or $np_{3/2}$. Three cw lasers provide a high-resolution multistep scheme of excitation, as depicted in figure 1(A)).

The first step of the excitation, $6s, F=4 \rightarrow 6p_{3/2}, F=5$, is provided by the trapping lasers (wavelength: $\lambda_1 = 852 \text{ nm}$) or a diode laser to avoid the excitation of hot atoms. The density of excited, $6p_{3/2}$, atoms can be modified, for instance, by switching off the repumping lasers before the excitation sequence. The second step, $6p_{3/2}, F=5 \rightarrow 7s, F=4$, is provided by an infrared diode laser in an extended cavity device (wavelength: $\lambda_2 = 1.47 \mu\text{m}$, bandwidth: 100 kHz and available power: 20 mW). The average experimental intensity is $\sim 3 \text{ mW cm}^{-2}$, twice the saturation one. The last step of the excitation, $7s, F=4 \rightarrow np_{1/2,3/2}$ (with $n = 25\text{--}300$), is provided by a titanium : sapphire (Ti : Sa) laser. The wavelength λ_3 ranges from 770 to 800 nm , the bandwidth is 1 MHz and the available power is 400 mW . The Ti : Sa laser is switched on for a time, $\tau = 0.3 \mu\text{s}$, by means of an acousto-optic modulator at an 80 Hz repetition rate. The beams of the infrared diode laser and of the Ti : Sa laser cross with an angle of 67.5° and are focused into the atomic cloud with waists of 105 and $75 \mu\text{m}$, respectively. Their polarizations are both linear and parallel to the direction of the applied electric field, leading to the excitation of the magnetic sublevel, $np_{1/2}$ or $np_{3/2}|m| = 1/2$. The spectral resolution, $\Delta\nu_L$, of the excitation is $5\text{--}6 \text{ MHz}$, limited by the lifetime, 56.5 ns , of the $7s$ state and by the duration, i.e. by the spectral width of the Ti : Sa laser pulse. The magnetic quadrupole field of the MOT is not switched off during the Rydberg excitation phase, but it contributes less than 1 MHz to the observed linewidths. Just after the Ti : Sa laser pulse (between 0 and $1 \mu\text{s}$), the Rydberg atoms

are selectively ionized by applying a pulsed high-voltage field with a rise time of 700 ns and detected on a micro channel plate (MCP) detector. The experimental procedure is based on spectroscopy of Stark np states for different atomic densities, and for different Ti:Sa laser intensities.

3. Dipole-blockade model

Different approaches have been followed to study the problem of the excitation to a Rydberg state in the presence of already excited atoms [13]–[15]. We discuss hereafter some hypotheses and simplifications we made to model the blockade effect. The first simplification is made by considering the excitation to np states only. The dipole–dipole interactions are calculated for first and second orders between the np and all the neighboring states in the Stark diagram. When looking at a specific atom to be excited, the shift in energy is due to the already excited neighboring atoms, but not ground state atoms. As shown in the next section, the sum of each individual atom's contribution can be studied and the main effect is due to the nearest neighbor.

If a static electric field is present, either external or due to ions, Rydberg states are mixed, creating a permanent dipole moment for the Rydberg atoms. For instance, in cesium in the presence of an electric field $\vec{F}$, the np state is mainly mixed with the $(n-1)d$ state. We denote by $\mu_{pd} = \langle np_j, m_j = 1/2 | q_e z | (n-1)d_{j+1}, m_{j+1} = 1/2 \rangle$ the transition dipole moment of an atom in the state np ($j, m_j = 1/2$) toward $(n-1)d$ ($j+1, m_{j+1} = 1/2$). We introduce the scale parameter θ characterizing the dipole coupling for each level np defined by $\tan \theta = \frac{\mu_{pd} \cdot F}{h\Delta_{pd}/2}$, where $h\Delta_{pd}$ is the zero field energy difference between the $(n-1)d$ and np levels. Energies and dipoles are obtained following [16], and are calculated only for $|m_j| = 1/2$ states. The dipole of an atom in an np state aligned along the local electric field ($\vec{F}$) is given by (here z is the coordinate along the vector defined by $\vec{F}$)

$$\mu_{pd}(F) = \langle np(F) | q_e z | np(F) \rangle = \mu_{pd} \sin \theta, \quad (1)$$

where the basis ($|np(\vec{F})\rangle$, $|(n-1)d(\vec{F})\rangle$) are the eigenstates given by the diagonalization of the Hamiltonian matrix

$$\begin{pmatrix} E_p & -\mu_{pd}F \\ -\mu_{pd}F & E_d \end{pmatrix}, \quad (2)$$

where E_p and E_d are the energies of states np and nd in the absence of an electric field. The resulting shift in energy for np is $h\Delta_p(\vec{F}) = \frac{h\Delta_{pd}}{2} \left(1 - \sqrt{1 + \tan^2(\theta)} \right)$, where $h\Delta_{pd} = E_p - E_d$.

One can calculate the dipole–dipole interaction term V_{ij} between two atoms labeled i and j separated by $\vec{R}_{ij} = R_{ij}\vec{n}_{ij}$. The first-order dipole–dipole interaction is

$$V_{ij}^{\text{dip}} = \frac{\vec{\mu}(\vec{F}_i) \cdot \vec{\mu}(\vec{F}_j) - 3 \left(\vec{\mu}(\vec{F}_i) \cdot \vec{n}_{ij} \right) \left(\vec{\mu}(\vec{F}_j) \cdot \vec{n}_{ij} \right)}{4\pi\epsilon_0 R_{ij}^3}, \quad (3)$$

where $h\Delta_{pk}$ is the energy difference between states np and $n'k$, and $\vec{\mu}(\vec{F}_i) = \mu_{pd}(\vec{F}_i) \cdot \frac{\vec{F}_i}{\|\vec{F}_i\|}$ is the classical permanent electric dipole of atom i which is aligned along the local electric field $\vec{F}_i$. In the absence of an electric field, $\theta = 0$ and there is no permanent dipole moment and only the second order, so-called van der Waals interaction is nonzero. The potential energy of an np Rydberg atom is the sum of the energy of the state without electric field E_p plus the shift of the

6

IOP Institute of Physics Φ DEUTSCHE PHYSIKALISCHE GESELLSCHAFT

state in the local electric field $\Delta_p(\vec{F}_i)$ plus the sum of the dipole–dipole interactions with all the atoms. For the atom i , we then note

$$E_{\text{pot}}[i] = E_p + h\Delta_p(\vec{F}_i) + \sum_{j \neq i} V_{ij}$$

$$E_{\text{pot}}[i] = E_p + h \frac{\Delta_{\text{pd}}(i)}{2} \left(1 - \sqrt{1 + \tan^2(\theta_i)} \right) + \sum_{j \neq i} V_{ij}. \quad (4)$$

An important part of the computation time is used to calculate the local electric fields and the potentials.

3.1. Reduced density matrix, mean field simulation

The details of this work can be found in [17]. We just briefly review the main results. The process describing the three excitation steps (see figure 1(A)) for one atom can be described using the optical Bloch equations.

$$\frac{d\rho}{dt} = -\frac{i}{\hbar}[H, \rho] - \frac{1}{2}(\rho\Gamma + \Gamma\rho) + \gamma, \quad (5)$$

where the time evolution of the density matrix ρ is decomposed into three terms. The first term contains a Hamiltonian H being the sum of the individual potential energies, and the interaction of an atom with all the others $\sum V_{ij}$ in the presence of electric fields $H = \sum_i E_{\text{pot}}[i]$. The second term accounts for the relaxation of the populations and coherences where Γ gives the lifetime of the considered state. The third term γ takes into account the radiative relaxation to state l with energy E_l from states k with energy $E_k > E_l$ due to spontaneous emission. Taking the trace over all the atoms except the one labeled i in the optical Bloch equations, gives the evolution of the density matrix for the particle i . The interaction term or shift in energy for the atom i due to the interaction with its neighboring atoms is $\sum_{j \neq i} \text{Tr}_j[V_{ij}, \rho_{i,j}]$, with V_{ij} the dipole–dipole interaction and $\rho_{i,j}$ the two-body density matrix for atoms i and j . The coupling with all the other atoms becomes a mean field term proportional to the atom density. A similar treatment has been performed by [18].

As correlations appear during the excitation, the state of the system does not remain a product state. However, the probability of excitation of a ground state atom into a Rydberg state being on the order of a few per cent, and as long as the product of the individual density matrices is small, we can use the Hartree–Fock approximation. In this approximation, the two-body density matrix $\rho_{i,j}$ can be developed as the product of single atom density matrices. We start with one atom i in the ground state and atom j in the excited state, denoted as ge. After excitation, the system ends in a double excitation denoted as ee. The Hartree–Fock approximation allows us to write $\rho_{i,j\text{ge,ee}} = \rho_{i\text{ge}} \times \rho_{j\text{ee}}$.

Thus, the interaction term can be written as

$$\delta_{\text{dd}}(i) = \sum_{j \neq i} \text{Tr}_j[V_{ij}, \rho_{i,j}] = \left(\sum_{j \neq i} V_{ij} \rho_{j\text{ee}} \right) (\rho_{i\text{ge}} |g_i\rangle \langle e_i| - \rho_{i\text{eg}} |e_i\rangle \langle g_i|), \quad (6)$$

which is simply a shift of the Rydberg level for the atom i . As an illustrative example, we look at a weak interaction with $\tan^2(\theta) = 0.05$, and with a $70p_{3/2}$ state. The dipole-blockade

effect induces a shift of 6 MHz (exactly the excitation linewidth set by us), which prevents the excitation of two atoms at a distance of $5 \mu\text{m}$. At a density of 10^{11}cm^{-3} , a sphere of radius $5 \mu\text{m}$ contains 50 atoms. This means that only one excitation could be present for the 50 atoms, and the probability to excite the atom j would be uniform within this sphere. The population in the excited state ρ_{jee} is then replaced by a mean value $\overline{\rho_{ee}}$. Due to the inhomogeneity of the atomic density and laser intensity, a local $\overline{\rho_{ee}}(\vec{r})$ is considered at different positions $\vec{r}$ over the whole atomic cloud. A naive (mean field) estimation for ρ_{jee} could lead to wrong estimations. Indeed, a mean field interaction for an atom at the center of the cold atomic cloud could naively be written as the integral of the interaction term V_{ij} over all the possible directions Θ (the angle between the internuclear axis and the direction of the dipole (i)) $\int_0^\pi V_{ij} \sin \Theta d\Theta$ which is equal to zero, but is not the real value. In order to overcome this problem, a better way to evaluate the local interaction potential is to consider separately the nearest neighboring Rydberg atom from the other atoms. The shift in energy $\delta_{dd}(i)$ is decomposed into a sum over all the atoms j treated as a continuous distribution out of a sphere containing only one excited atom (the nearest neighbor of i) in its center, plus the contribution of the nearest neighboring Rydberg atom. The result from this calculation is that the local field contribution, associated with the nearest neighbor is dominant over the mean field contribution, if an electric field is present. The nearest neighboring Rydberg atom contribution is considered at the most probable distance given by the mean of the Erlang distribution² [19] from the atom i . The shift in energy relies on the local density (Gaussian distributed) $\rho_0(\vec{r})$ of the atoms in the ground state. We finally find that the shift for the atom i is given by

$$\delta_{dd}(i) \propto \overline{\rho_{ee}}(\vec{r}) \rho_0(\vec{r}). \quad (7)$$

We then solve equation (5) for an atom i using the result from equation (7). The result given in figure 2 reproduces the experiment well. We take into account multiphotonic excitations as well as the finite coherence time of the lasers in the model through a temporal phase variation of the electric field of the lasers in the three-step excitation represented in figure 1(A). Two results are given in figure 2, where the reduced density matrix approach is plotted versus the experimental data for different electric fields (A) and different intensities (B).

3.2. KMC simulations

The previous approach based on the reduced density matrix has some limitations. Despite correctly describing the excitation, it was not possible to look for the dynamics of the system, the orientation of the dipoles in a local electric field or the individual interactions between atoms instead of a mean field term or ionization. For these reasons we developed a KMC simulation. All the above mentioned limitations can then be overcome. However in KMC simulations the excitation has to be based on the solution of rate equations. A more detailed description of the KMC algorithm, and more generally of possible numerical solution of any kind of master or rate equations, is given in appendix A. Briefly, if a system is driven by a master equation

$$\frac{dP_k}{dt} = \sum_{l=1}^N \Gamma_{kl} P_l - \sum_{l=1}^N \Gamma_{lk} P_k \quad (8)$$

² The probability to find a k th nearest neighbor at a distance r of an atom is given by $4\pi r^2 * f(k, r)$, with $f(k, r) = \frac{3}{4\pi k!} \left(\frac{r^3}{Rd}\right)^{k-1} e^{-(r/Rd)^3}$ and $Rd = \left(\frac{4\pi\rho_0}{3}\right)^{-1/3}$.

8

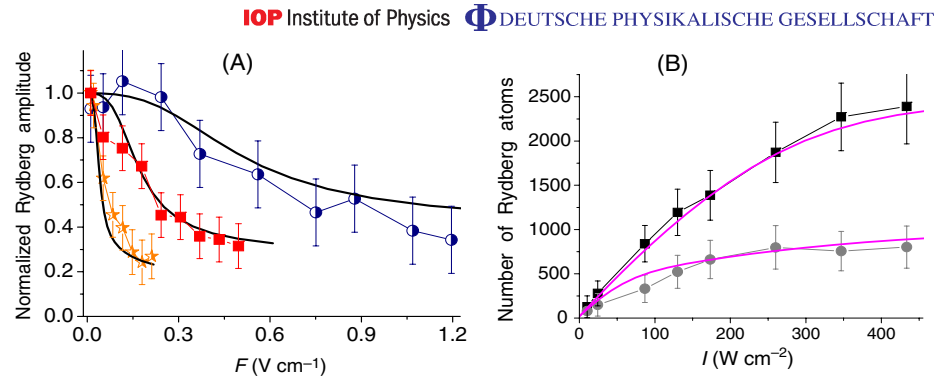


Figure 2. (A) Probability in our sample, as a function of the electric field $\vec{F}$, of an atom to be excited in Rydberg state compared to the isolated atom probability excitation; n is equal to 60 (circles), 70 (squares) and 85 (stars). The Ti : Sa laser intensity is given by $(n/85)^3 \times 560 \text{ W cm}^{-2}$. Symbols represent the experimental data and solid lines represent the reduced density matrix model. (B) Number of Rydberg atoms excited versus the Ti : Sa laser intensity, in the case of the $70p_{3/2}$ state, for $7s$ -atom density $D \sim 4 \pm 2 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$ and in the presence of two different electric fields, 0 V cm^{-1} (squares) and 0.25 V cm^{-1} (circles). Solid lines show the reduced density matrix model taking into account the van der Waals blockade at zero field and the dipole blockade in the presence of the electric field.

describing the time evolution of the probability P_k of a system occupying each one of a discrete set of states numbered by k . Each process occurs at a certain average rate Γ_{lk} , which may either be constant in time, or dependent on how the system has evolved up to that time.

The KMC algorithm is then the iteration of the following steps:

- Initializing the system to its given state called k at the actual time t .
- Creating a new rate list Γ_{lk} for the system, $l = 1, \dots, N$.
- Choosing a unit-interval uniform random number generator³ $r : 0 < r \leq 1$ and calculating the first reaction rate time t' by solving $\int_t^{t'} \sum_{l=1}^N \Gamma_{lk}(\tau) d\tau = -\ln r$.
- Choosing a unit-interval uniform random number generator $r' : 0 < r' \leq 1$ and searching for the integer l for which $R_{l-1} < r'R_N \leq R_l$, where $R_j = \sum_{i=1,j} \Gamma_{ik}(t')$ and $R_0 = 0$. This can be done efficiently using a binary search algorithm.
- Setting the system to state l and modifying the time to t' . Then go back to the first step.

One fundamental result is that the KMC method makes exact numerical calculations and cannot be distinguished from an exact molecular dynamics simulation, but is orders of magnitude faster. It is therefore indistinguishable from the behavior of the real system (if evolving through a master equation), reproducing for instance all possible data in an experiment including its statistical noise.

³ In our case, we use the free implementations by GSL (GNU Scientific Library) of the Mersenne twister unit-interval uniform random number generator of Matsumoto and Nishimura.

3.3. KMC simulation of dipole–dipole interaction

We consider a cloud with a Gaussian spatial density. Initially, thousands of atoms are in their ground state with a Maxwellian distribution for the velocity $\sigma_v = \sqrt{k_b T / m_{\text{at}}}$, where T , k_b and m_{at} are, respectively, the temperature of the frozen gas in the MOT, the Boltzmann constant and the mass of the atomic species under consideration. In such a system, considering coherent excitations would lead to solving the Schrödinger equation with $\approx 2^{100}$ states, which is obviously beyond our capability. Nevertheless, it is possible to obtain good agreement for the shift in energy and the dynamics of the system with a reasonable computation time using a simplified numerical treatment. We consider a two-level system for each atom so they can be either in their ground state ($6s_{1/2}$) or laser excited to a given ($np_{3/2}$) Rydberg state. Initially, the electric dipoles $\vec{\mu}$ of the atoms are aligned along the direction of polarization z of the exciting laser and the applied dc electric field, which is the quantization axis. During the evolution (ionization especially) the electric dipoles will be aligned along the local electric field. The shift $\delta_{\text{dd}}(i)$ of the Rydberg state of atom i is then $\sum_{j \neq i} V_{ij}$, where V_{ij} is given by equation (3). We start from the sets of Bloch equations for our two-level system [20]:

$$\frac{d\rho_{ee}}{dt} = -\Gamma_{\text{spont}}\rho_{ee} - \frac{i}{2}\Omega(\rho_{ge} - \rho_{eg}), \quad (9)$$

$$\frac{d\rho_{ge}}{dt} = -\left(\frac{\Gamma_{\text{laser}} + \Gamma_{\text{spont}}}{2} - i(\delta_{\text{laser}} + \delta_{\text{dd}})\right)\rho_{ge} + \frac{i}{2}(\rho_{gg} - \rho_{ee})\Omega, \quad (10)$$

$$\frac{d\rho_{gg}}{dt} = \Gamma_{\text{spont}}\rho_{ee} + \frac{i}{2}\Omega(\rho_{ge} - \rho_{eg}), \quad (11)$$

where ρ_{gg} and ρ_{ee} are the populations of ground state and excited state atoms, Γ_{spont} is the spontaneous decay rate, Γ_{laser} is the FWHM of the exciting laser ($\Gamma_{\text{spont}} \ll \Gamma_{\text{laser}}$), Ω is the local Rabi frequency of the transition and δ_{laser} is the detuning from the isolated and field free atom resonance. In order to end up with rate equations for each atom, we neglect the coherences $\dot{\rho}_{ge} = \dot{\rho}_{eg} = 0$. This is obviously the biggest assumption made here. Coherences are in fact tractable with a Monte Carlo method as described in [21]. We finally get pure rate equations for ρ_{ee} and ρ_{gg} :

$$\frac{d\rho_{ee}}{dt} = -(\Gamma_{\text{spont}} + \Gamma_{\text{exc}})\rho_{ee} + \Gamma_{\text{exc}}\rho_{gg}, \quad (12)$$

$$\frac{d\rho_{gg}}{dt} = -\Gamma_{\text{exc}}\rho_{gg} + (\Gamma_{\text{spont}} + \Gamma_{\text{exc}})\rho_{ee}, \quad (13)$$

$$\Gamma_{\text{exc}} = \cos^2(\theta_i/2) \frac{\Omega^2 \Gamma_{\text{laser}}}{\Gamma_{\text{laser}}^2 + 4(\delta_{\text{laser}} + \delta_{\text{dd}})^2}, \quad (14)$$

where the rate Γ_{exc} of excitation of atom i depends on the projection of $|np(\vec{F}_i)\rangle$ onto $|np\rangle$, which is $\cos^2(\theta_i/2)$, times the stimulated laser rate. The de-excitation rate is similar to the excitation rate plus the spontaneous decay of the np state. The great advantage offered by this ‘kinetic’ method, is the simplicity of adding phenomena or particles with evolution based on rates. In contrast to the previous model, the potential energy of an atom is the sum of the energies due to the Stark shift and the interactions with all the other atoms.

Numerical methods such as the ordinary Runge–Kutta methods are not ideal for integrating Hamiltonian systems, because they do not conserve energy. On the contrary, symplectic

integrators such as the Verlet integrator do conserve energy. Mechanical effects are then treated via classical movements of the atoms, and dipolar forces between the atoms are taken into account using the (leapfrog) Verlet–Störmer–Delambre algorithm (see appendix B). The computation is realized as follows. Ion formation is possible and creates an electric field felt by other atoms, thus the direction and strength of the dipoles can vary depending on local electric fields. Two main mechanisms for ionization exist. The first one is due to laser ionization or blackbody ionization and has a rate of ionization proportional to the atomic density. The second one happens if two Rydberg atoms move toward each other and reach a smaller internuclear distance than $4n^2a_0$ [22]. In the latter case, one Rydberg atom is ionized, the second atom falls to a lower state. Due to energy conservation, its binding energy is at least twice as large after the ionization, and as the final atomic states are often different from s or d, it does not interact with np atoms. Consequently, we assume for simplicity in the simulation that the atom state is changed to a noninteracting state.

Due to its time and spatial resolution, the KMC simulation takes into account all the dipolar interactions developed during the excitation and gives access to individual atoms. A dynamical evolution of the system is made except if a collision between the two atoms in np state is detected or if a reaction is detected. The time evolution of the simulation is incremented either with the KMC timestep or with a small fraction of the collisional timestep. After each change in the position or change of any particle state, the fields and potentials are recalculated over all the atoms. Then operations are repeated until the end of the excitation.

4. Results

4.1. Field-induced dipole blockade

As described in the experiment reported in [10], the dipole moment of np states increases with the strength of the coupling field and reaches a maximum when $\tan \theta$ is equal to 1. Indeed, as the strength of the field increases, the blockade radius increases and the number of excited atoms in a given volume gets smaller. It is worth noting that the dipole-blockade condition in a 2-level approach is $\sum_{j \neq i} V_{ij} > h\delta_{\text{laser}}$.

Figure 3(A) represents the result of a Monte Carlo simulation for different np states, where the number of Rydberg atoms present at the end of the excitation is given as a function of the detuning. The parameters are close to those described in [10]. Figure 3(B) shows the results from the experiment.

4.2. Effect of the ions

At a distance of $10 \mu\text{m}$ the electric field due to an ion is 150 mV cm^{-1} , which represents a shift of 150 MHz for an atom in state 70p. The contribution to the blockade of the excitation of such an ion in the sample during the excitation is so important that it completely hides the observation of the dipole-blockade effect. In the experiment, the ions present before and during the excitation can be discriminated from the ionized Rydberg atom in the time of flight signal. In the simulation, we simply monitor the number of ions at the end of the the excitation time. This ionic effect is shown in figure 4. In figure 4(A), we increase the laser intensity to ten times the saturation intensity and apply the excitation laser for $20 \mu\text{s}$ in the absence of the external electric field. One can see that the number of excited atoms is important, but also that

11

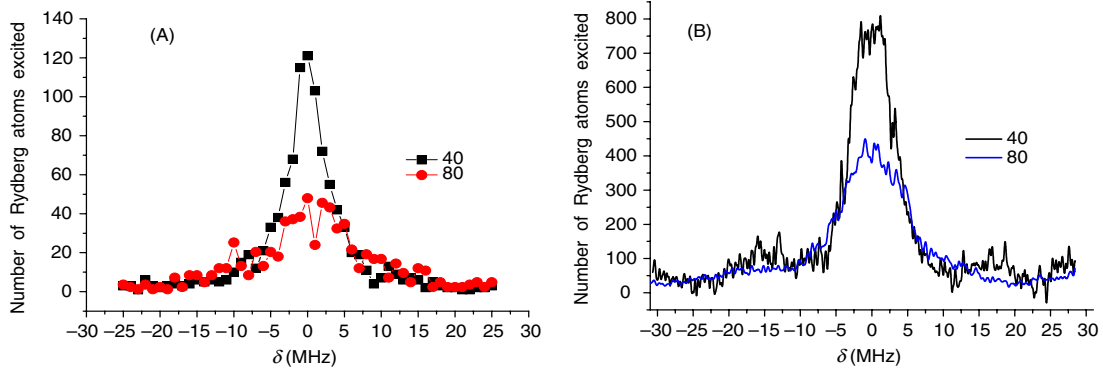
IOP Institute of Physics Φ DEUTSCHE PHYSIKALISCHE GESELLSCHAFT

Figure 3. (A) Number of Rydberg atoms excited versus the detuning of the excitation laser for $n = 40$ and 80 . Monte Carlo simulations with 2000 atoms at a density $D = 2 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ and an external electric field of 50 mV cm^{-1} . This result is taken after a laser excitation time of 300 ns , $I = 0.7 I_{\text{sat}}$, where I_{sat} is the saturation intensity of the transition $7s \rightarrow np$. The mean number of ions formed during the simulation varies from 0.5 for $n = 40$ to 1.3 for $n = 80$. (B) Experimental data for $n = 40$ ($P = 20 \text{ mW}$) and 80 ($P = 100 \text{ mW}$) at $D = 2 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$, excitation time 300 ns . The mean number of ions formed per shot is less than 2 .

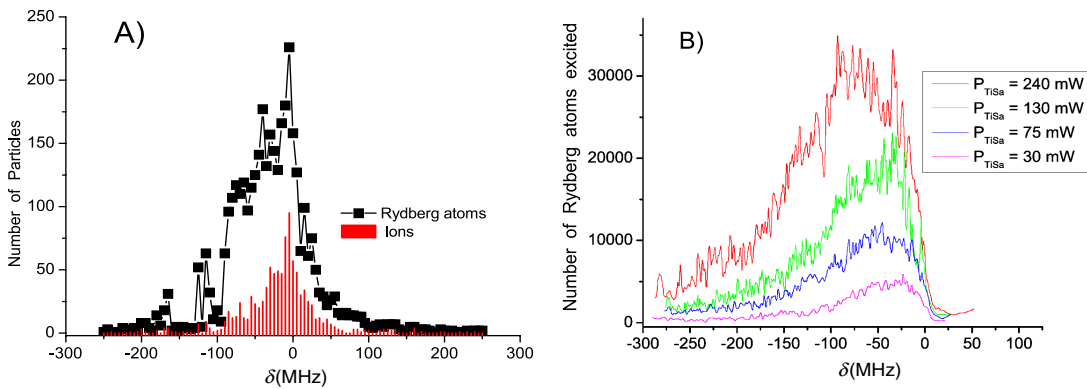


Figure 4. (A) Monte Carlo simulation. Number of Rydberg atoms and ions versus the laser detuning. For $n = 81$, excitation time $20 \mu\text{s}$, 2000 atoms, $D = 2 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$, $I = 10 I_{\text{sat}}$. (B) The experimental result, see figure 1(B) and [11] for details on the excitation scheme. Number of Rydberg atoms versus the laser detuning in a combined pulsed ($7 \text{ ns}, 15 \mu\text{J}$) and cw-excitation (Ti : Sa) at different powers for the excitation of $37p_{1/2}$. Excitation time (Ti : Sa) = 400 ns .

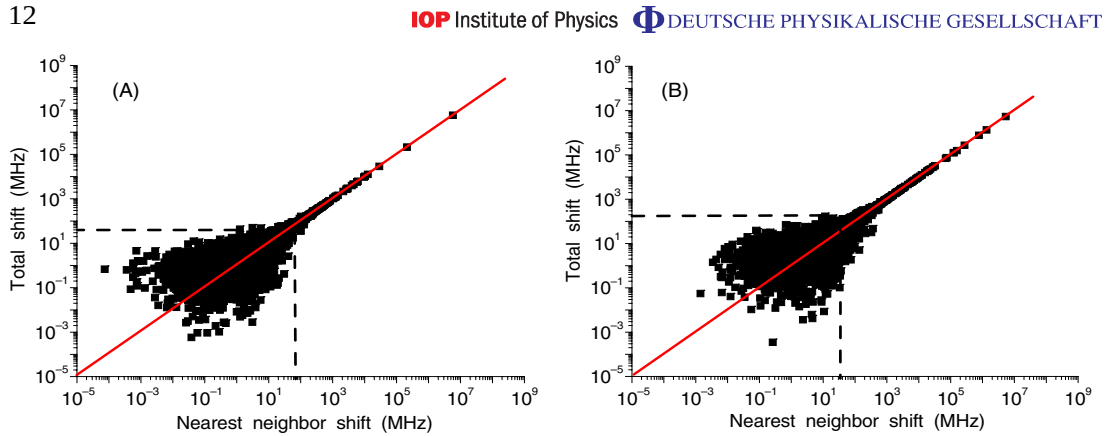


Figure 5. Shift of the level of a randomly chosen ground state atom due to the nearest neighboring Rydberg atom compared to the total shift due to all the Rydberg atoms in the Monte Carlo simulation. Simulations are realized for 2000 atoms in a Gaussian volume, for an excitation time of 300 ns in $n = 70$, with a laser intensity of $0.7 I_{\text{sat}}$. (A) $D = 5 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$ and (B) $D = 5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$. Along the red line, the contribution of the nearest neighbor to the total blockade effect is equal to one. The dashed lines intersection gives roughly a value where the energy shift is only due to the nearest neighbor Rydberg atom.

the resonance is broadened to the low frequency side of the atomic resonance. This result is similar to the one obtained in the experiment [12]. Ions are formed due to the high laser power but also by collisions during the interaction time due to the long-range attractive dipole force between atoms. The number of ions produced during the excitation is so important that it allows for the excitation of Rydberg atoms on a 100 MHz range, red detuned from the center of the line. This is due to the fact that np states can only be shifted to the red of the resonance when no external electric field is present. In figure 4(B) is shown an experimental curve obtained in a combined pulsed and cw-excitation (see figure 1(B)). In this case, the main source of broadening is the inhomogeneous electric fields due to the ions formed by the pulsed laser.

4.3. Role of the nearest neighbor

As the dipole–dipole interaction term V_{ij} strongly depends on the distance between the two atoms, the energy shift due to the nearest neighbor Rydberg atom has to be distinguished from the mean field shift due to all the other atoms in a Rydberg state. In some cases, the contribution of the nearest neighbor can be dominant.

In figure 5 is represented for two different densities, but with no ions to avoid the extra effects, the nearest neighbor Rydberg atom shift versus the sum of the shifts of all the Rydberg atoms in the sample. Above the solid line, the contribution of the nearest neighbor Rydberg atom to the blockade effect is dominant. The nearest neighbor Rydberg atom shift is twice as important as the shift from all the other Rydberg atoms for 66% of the ground state atoms at a density of $D = 5 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$ (figure 5(A)), whereas at $D = 5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ (figure 5(B)) it is 73%. This confirms the fact that the energy shift is dominated by the effect of the nearest neighbor. This result has been used to derive the local mean field approximation in the single atom density matrix model previously described.

5. Conclusion

In this paper, we have presented different methods used to model the dipole-blockade effect in a manner as close as possible to an experimental situation. We have first shown that a nearest neighbor mean field analytical approach, based on the solution of the Bloch equations for the partial density matrix equations of one atom of interest, gives results in good agreement with the experiment if no ions are present. Secondly the KMC simulation based on rate equations is able to introduce all the electric dipole interactions. Furthermore, we have included N -body spatial dynamics using the Verlet integrator, but the overall code remains very simple. This allows us to look at the important role of the ions formed during the excitation. If ions are present during the excitation, they may mimic the dipole-blockade effect and lead, in extreme cases, to a broadening of the lines. We have shown that the two models reproduce our experiments well. It is observed that the number of excited atoms for a given ground state density decreases with the principal quantum number and with the intensity of the electric field which creates the permanent dipole. The effects associated with the experiment, such as the shift of the resonance, the density effect, the broadening of the line and the artifact due to the ion blockade, are reproduced with the simulations we describe. For varying initial atomic densities, the amplitude of the energy shift due to the nearest neighbor is monitored which confirms its dominant role in the dipole shift. We could also use the KMC model to analyze other experiments than ours as in figure 4(A) [12]. As another simple example, the number of atoms excited to a Rydberg state in our simulation is analyzed using the the Mandel Q parameter and the statistics follow a sub-Poissonian distribution as described in [13, 18, 23, 24]. The density matrix model can be a good tool to model recent experiments of coherent excitation of the Rydberg atoms [25]–[28]. The next step will be the modeling of the Förster case [9], where the coherences between pairs of atoms are expected to play a dominant role.

Acknowledgments

This work is in the frame of ‘Institut francilien de recherche sur les atomes froids’ (IFRAF). This theoretical development could also be applied to the CORYMOL experiment supported by an ANR grant (no NT05-2 41884). The authors thank Thomas F Gallagher and Jianming Zhao.

Appendix A. KMC method for solving rate equations

A.1. The master, kinetic or (reaction-)rate equation

There are innumerable instances, in physics and in other sciences, where a system evolves in time through many competing internal stochastic processes. For instance, many classical and quantum physical problems can be reduced to the form of a master equation

$$\frac{dP_k}{dt} = \sum_{l=1}^N \Gamma_{kl} P_l - \sum_{l=1}^N \Gamma_{lk} P_k. \quad (\text{A.1})$$

This master equation, sometimes called the kinetic or (reaction-)rate equation, is a phenomenological set of coupled first-order differential equations describing the time evolution of the probability P_k of a system to occupy each one of a discrete set of states numbered by k . In the probability theory, this identifies the evolution as a continuous-time Markov process. Each

process occurs at a certain average rate Γ_{lk} , which may either be constant in time, or dependent on how the system has evolved up to that time. The goal of this appendix is to describe why the KMC methods are the standard means of modeling such problems, especially when one wishes to model the evolution of the system over periods of time much longer than those accessible by direct simulation.

A.2. Solving the master equation

Following Gillespie [29], we can distinguish, among several competing methods commonly used to solve the master equation, two major approaches: the *deterministic approach* which regards the time evolution as a continuous, wholly predictable process governed by a set of coupled, ordinary differential equations (the reaction-rate equations) and the *stochastic approach* which regards the time evolution as a kind of random-walk process which is governed by a single differential equation (the master equation) governing the time-dependent behavior rather than a fixed probability distribution.

A.2.1. Deterministic approach. The deterministic approach is based on the fact that equation (A.1) can be written as a matrix of ordinary differential equations $\frac{d\mathbf{P}}{dt} = \mathbf{\Gamma}\mathbf{P}$. The formal solution

$$\mathbf{P}(t) = \mathbf{P}(0) \exp \left(\int_0^t \mathbf{\Gamma}(t') dt' \right) \quad (\text{A.2})$$

can be obtained for instance by using direct diagonalization algorithms [30]. A second deterministic approach to the time-dependent population distribution comes from the integrand form of the master equation:

$$\mathbf{P}(t) = \mathbf{P}(0) + \int_0^t \mathbf{\Gamma}(t') \mathbf{P}(t') dt'. \quad (\text{A.3})$$

Explicit numerical integration can, in principle, be achieved by different numerical integration schemes. All these methods require the explicit formation of the matrix and the computational effort is dominated by N^3 terms [30].

The deterministic approach is simply the exact time-evolution for the function $\mathbf{P}$. However, the stochastic probabilistic formulation often has a stronger physical basis, especially in the quantum world or for nonequilibrium systems, than the deterministic formulation. Instead of the deterministic approach which deals only with one possible ‘reality’ of how the process might evolve with time, in a stochastic or random process there is some indeterminacy in its future evolution described by probability distributions. This means that even if the initial condition (or starting point) is known, there are many possibilities where the process might go, but some paths are more probable and others less. This approach correctly accounts for the inherent fluctuations and correlations that are necessarily ignored in the deterministic formulation. In addition, as we shall see, this point of view opens the way to stochastic simulation algorithms, such as the KMC one, making exact numerical calculations which are much faster $O(N)$ than the deterministic reaction-rate algorithms.

A.2.2. Monte Carlo algorithms. Monte Carlo refers to a broad class of algorithms that solve problems through the use of random numbers [31, 32]. They first emerged in the late 1940s and 1950s as electronic computers came into use. The most famous of the Monte Carlo methods

is the Metropolis algorithm (sometimes called Monte Carlo Markov chain methods), offering an elegant and powerful way to generate equilibrium properties of physical systems [33]. For many years, researchers thought that Monte Carlo methods could not be applied to molecular dynamics simulations, because it seems necessary to follow individual motion and/or interactions [34]–[36]. However, some Monte Carlo algorithms of this type exist; they are sometimes called coarse-grained methods [37]. The simplest algorithm of this kind, sometimes called fixed timestep algorithm [38], is based on the first-order formula $\mathbf{P}(t + dt) = \mathbf{P}(t) + \mathbf{\Gamma}(t)\mathbf{P}(t) dt$, i.e.

$$P_k(t + dt) = P_k(t) - \sum_{l=1}^N \Gamma_{lk}(t) P_k(t) dt + \sum_{l=1}^N \Gamma_{kl}(t) P_l(t) dt.$$

A similar scheme is, for instance, used in stochastic quantum simulation in the quantum Monte Carlo wavefunction approach [39], because the Lindblad equation in quantum mechanics is a generalization of the master equation describing the time evolution of a density matrix.

To illustrate the fixed timestep method [38], let us assume that at time t the system is in state k : $P_k = 1$ and $P_l = 0$ for $l \neq k$. The algorithm consists of choosing a small dt , and for each possible reaction $k \rightarrow l$ generating a random number r between 0 and 1. If $r < \Gamma_{lk}(t) dt$, the system changes configuration and evolves to state l at time $t + dt$ (a quantum jump occurs in the stochastic quantum simulation terminology). The main disadvantage is that dt has to be small enough to maintain accuracy and such that at the most one reaction occurs during each time step: meaning $\Gamma_{lk}(t) dt \ll 1$. Several steps are then needed before effectively doing the evolution. As we shall see, especially for time-independent Γ_{lk} rates, this Monte Carlo algorithm is very inefficient compared to the KMC algorithm which ensures an evolution of the system at each timestep.

A.3. The KMC method

A.3.1. Derivation. The KMC algorithm is also known as the residence-time algorithm, the n -fold way, the Bortz–Kalos–Liebowitz (or BKL) algorithm [40], the dynamical Monte Carlo method [41], the Gillespie algorithm [29, 42], the variable step size method (VSSM) [38] (by comparison with the fixed timestep method) . . . , depending on the physical or chemical context. For other reviews of the KMC algorithm, see [32, 33, 38, 43]. Some minor subtle changes between these algorithms exist, but we will describe here only three types of KMC algorithms, namely, the KMC algorithm, the first reaction method (FRM) and the random selection method (RSM).

The KMC method is a Monte Carlo method intended to simulate the time evolution of independent (non-correlated) Poisson processes [38, 44]. This means that the KMC method solves the master equation and is therefore of great interest, for instance for relaxational processes and transport processes on mesoscopic to macroscopic timescales. Indeed, the KMC algorithms are able to model the evolution of the system over periods of time much longer than those accessible by direct simulation such as molecular dynamics. Surprisingly enough, till now it has been more or less limited to the study of chemical reactions, surface or cluster physics (diffusion, mobility, vacancy motion, transport process, epitaxial growth, dislocation, coarsening, etc).

Due to the Markovian behavior, the system loses its memory of how it entered state k at time t . Therefore, in order to simulate the stochastic time evolution of such a reacting

system, i.e. in order to move the system initially at time t in state k forward in time, we just need to know when the next reaction will occur, and what kind of reaction it will be [29]. We then need to determine the probability distribution function $p(t)$ for the time of the first system change. From equation (A.2), the probability that the system has not yet escaped from state k at time t' is given by $p_{\text{survival}}(t') = \exp(\int_t^{t'} \Gamma_k(\tau) d\tau)$, where $\Gamma_k = \sum_l \Gamma_{lk}$ is the total rate from state k . Thus $1 - p_{\text{survival}}(t')$ gives the probability that the system has been modified at time t' , which is exactly the integral $\int_t^{t'} p(\tau) d\tau$. The first-passage-time distribution is then found by differentiation

$$p(t') = \Gamma_k(t') \exp\left(-\int_t^{t'} \Gamma_k(\tau) d\tau\right), \quad (\text{A.4})$$

which is characteristic of the Poissonian nature of the process and is the starting point of the KMC algorithm. We then know when the next reaction will occur. We just have to find what kind of reaction it will be. At time t' a reaction takes place, so just before t' the system is still in state k and according to the master equation (A.1), the probability that the system will be in configuration l at time $t' + dt'$ is $\Gamma_{lk}(t') dt'$, where dt' is a small time interval. We therefore have to generate a new configuration l by picking it out of all possible new configurations with a probability proportional to $\Gamma_{lk}(t')$.

The algorithm is based on our ability to generate time t' from equation (A.4), when the first reaction actually occurs and on our ability to choose the correct reaction l .

The t' choice can be done by the inverse transform method [45] which is based on the fact that if t' is chosen with probability density $p(t')$, then the integrated probability up to point t' , $\int_t^{t'} p(\tau) d\tau = 1 - p_{\text{survival}}(t')$, is itself a random variable which will occur with uniform probability density on $[0, 1]$. In conclusion, to generate time t' with probability density $p(t')$, we just have to solve for t' the equation $r = \exp(-\int_t^{t'} \Gamma_k(\tau) d\tau)$ where r is a unit interval uniform random number. This is exact and totally trivial when the rates are time independent explaining why the KMC method is so powerful in this case. The following choice of the reaction l is done by randomly choosing $r' \in [0, 1]$ and by finding the l for which $R_{l-1} < r'R_N \leq R_l$ where $R_j = \sum_{i=1,j} \Gamma_{ik}(t')$. At this time t' , we are in the same situation as when we started the simulation, and we can proceed by repeating the previous steps. The resulting algorithm is not reproduced in this appendix because it is described in section 3.2.

A.3.2. Algorithms. This KMC algorithm is clearly $O(N)$, since at least the third step has a sum over N elements. It is beyond the scope of this appendix to discuss all alternative methods, but it is sometimes possible to improve the speed of the algorithm, for instance, if several rates are similar, using a binning or weighted method to reduce for instance to $O(\log N)$ the complexity [38], [46]–[48].

It is of interest to mention at least the FRM and the RSM [38]. Depending on the type of reaction in the system these algorithms can be useful. The FRM, also called discrete event simulation in computer science, consists of choosing the first occurring reaction, meaning choosing the smallest time t'_i , and the corresponding reaction number l , from the formula $\int_t^{t'_i} \Gamma_{lk}(\tau) d\tau = -\ln r_l$ where the $r_l \in [0, 1]$ are N independent random numbers. As for the KMC one this algorithm generates an exact evolution of the system, but is usually less efficient because it necessitates a random number for each possible reaction, whereas the KMC advances the system to the next state with just two random numbers.

The RSM can be used only when the rates $\Gamma_{lk}(t) = \Gamma_{lk}$ are time independent, as for Poisson processes (such as radiative lifetime, radiative decay rate, etc). The RSM consists of evolving the system up to the time $t' = t - (\ln r)/\Gamma_{\max}$, where $r \in]0, 1]$ is a random number and $\Gamma_{\max} = \max_l \Gamma_{lk}$ is the maximal possible rate, then choosing randomly a possible reaction $l \in [1, N]$ and accepting the reaction with probability $\Gamma_{lk}/\Gamma_{\max}$. If the reaction is accepted, the configuration is changed. In contrast to the FRM or the KMC algorithms, it does not necessarily imply a system evolution at each timestep. But, here again this algorithm generates an exact evolution of the system. The RSM is optimized for a system having just one (or a small number of) type of reaction because it is then of $O(1)$ complexity!

Following [38], KMC is generally the best method to use unless the number of reaction types is very large. In that case, use FRM. If you have a type of reaction that occurs almost everywhere, RSM should be considered. Simply doing the simulation with different methods and comparing is of course the best.

A.4. Conclusion

The KMC algorithm is a stochastic algorithm generating quasi-classical trajectories, i.e. creating a Markov chain representing the exact evolution of the system in the sense that it will be statistically indistinguishable from an exact dynamics simulation. Indeed, each system configuration l is reached with its real physical probability. Unlike most procedures, such as the often-used fixed timestep method for numerically solving the deterministic reaction-rate equations, this algorithm never approximates infinitesimal time increments dt by finite time steps $\Delta t = t' - t$.

The fact that the mechanisms and so the rates have to be known in advance is the main limitation of the use of the KMC method. If the rates have to be modified in an unpredictable fashion during the free time evolution of the system, i.e. between two reactions, the fixed timestep method has to be preferred. However, for several physical system, this is not the case and the KMC or FRM algorithms can be used. As the interaction between the particles of a system depends often on the distance between the particles, the KMC methods can be advantageously used when the motion of the particles is slow. Ultimately, when the rates are time independent (which does not mean that they are constant, because they often have to be recalculated after each system evolution), KMC and RSM approaches are very powerful.

Appendix B. Simple method to solve the N -body problem

B.1. Introduction

A large number of physical systems can be studied by simulating the interactions between the particles constituting the system. In a typical system each particle influences every other particle. The interaction is often based on an inverse square law such as Newton's law of gravitation or Coulomb's law of electrostatic interaction but, as in our case, a more complex anisotropic interaction with an inverse higher power law-dependence might exist. Examples of such physical systems can be found in astrophysics, plasma physics, molecular dynamics and fluid dynamics. Since the simulation involves following the trajectories of motion of a collection of N particles, the problem is termed the N -body problem.

Since it is not possible to solve the equations of motion for a collection of many particles in closed form, iterative methods are used to solve the N -body problem. At each discrete time

interval, the force on each particle is computed and this information is used to update the position and velocity of each particle. A straightforward computation of the forces requires $O(N^2)$ work per iteration. The rapid growth with N limits the number of particles that can be simulated by this method. Several approaches, especially that by Aarseth [49], have been used to reduce the complexity per iteration and to speed up the calculation, for instance each particle is followed with its own integration step. Non-full N -body codes also exist, transforming the problem imposing for instance a grid on the system of particles and computing cell–cell interactions. These are known as hierarchical methods, or tree methods such as the Barnes–Hut one where a Ahmad–Cohen neighbor-type of scheme is used which updates the nonneighbor force less frequently than the neighboring one. Finally, multipole expansion methods have also been developed as well as Monte Carlo algorithms for very large number of particles using a set of representative ‘macro’ particles (not point-masses) like in Fokker–Planck or gaseous methods with smooth potentials after the pioneering work of Hénon [50]. The required CPU time scales with the number N of particles as $N \ln(N)$ (for a given number of relaxation times), while the scaling is N^k with k of order 2–3 for direct N -body codes. It is beyond the scope of our article to discuss all the methods: particle–particle (PP), particle–mesh (PM), particle–particle/particle–mesh (P3M), particle–multiple–mesh (PM2), nested grid particle–mesh (NGPM), tree-code (TC) top down or bottom up, fast-multipole-method (FMM), tree-code–particle–mesh (TPM), self-consistent field (SCF), symplectic method, ... Good references discussing also their stability or their complexity can be found on the website <http://www.manybody.org/> or in the references [49, 51, 52].

B.2. Choice of an N -body integrator

We have based our code on a series of books centered around N -body simulations, ‘*The Art of Computational Science*’ by Piet Hut and Jun Makino (<http://www.artcompsci.org>). Because of the small number of particles involved we have used a very simple algorithm. Another reason is that the KMC algorithm is the one which limits the CPU time. Finally, the forces we use (see equation (3)) are not accurate for all interparticle distances. Therefore, it is not necessary to have a very powerful N -body code. In order to deal with a very simple and versatile code, the code is written in C++ in a completely stand-alone fashion based on the N -body ‘Starter Code for N -body Simulations’.⁴

The key part of our code is the N -body integrator. Hamiltonian systems are not structurally stable against non-Hamiltonian perturbations [53, 54]. The ordinary numerical approximation to a Hamiltonian system obtained from an ordinary numerical method does introduce dissipation, with completely different long-term behavior, since dissipative systems have attractors and Hamiltonian systems do not. This problem has led to the introduction of methods of symplectic integration for Hamiltonian systems, which do preserve the features of the Hamiltonian structure by arranging that each step of the integration be a canonical or symplectic transformation. Many different symplectic algorithms have been developed and discussed [55]. Symplectic integrators tend to have much better total energy conservation in the long run. Finally, to save computational cost, most often one must adopt a quite large Δt step and higher order (local truncation error) algorithm. However, because of the computational round-off error and due to their smaller stability domain than the lower order algorithm at practical Δt , high order algorithms push

⁴ <http://www.ids.ias.edu/~piet/act/comp/algorithms/starter/index.html>. In order to use the 3D vector formulation, we have based our code on the CERN library CLHEP (Class Library for High Energy Physics).

the machine precision limit [53] and algorithms are generally not good to go beyond the third or fourth order. Finally, high-order predictor–corrector integrators usually have better performance than symplectic integrators at large integration timestep.

For all these reasons one very popular N -body integrator is the fourth-order (local) ‘Hermite’ predictor–corrector scheme by Makino and Aarseth [49, 52, 56].

However, the Hermite algorithm requires knowledge of the time derivatives of the acceleration (sometimes known as jerk), which can be difficult to evaluate. For that purpose we use a simple but efficient algorithm, the so-called leapfrog–Verlet–Störmer–Delambre algorithm used in 1791 by Delambre, and rediscovered many times, and recently by the French physicist Loup Verlet in the 1960s for molecular dynamics. The position Verlet method does not store explicit velocities, allowing it to be extremely stable in cases where there are large numbers of mutually interacting particles. It is of $O((\Delta t)^4)$ for local truncation error for position and $O((\Delta t)^2)$ for velocity. We are interested in having accuracy in position and velocity, so we use the so-called velocity Verlet method which is of $O((\Delta t)^3)$ accuracy for both position and velocity for a Δt timestep. This leapfrog integrator often turns out to be more accurate than expected from a simple second-order integrator [57]. The ‘unreasonable’ accuracy stems from its symmetry properties under time invariance due to its symplectic structure. The scheme of the algorithm is the following:

$$\mathbf{r}_i(t + \Delta t) = \mathbf{r}_i(t) + \mathbf{v}_i(t)\Delta t + \frac{1}{2}\mathbf{a}_i(t)(\Delta t)^2, \quad (\text{B.1})$$

$$\mathbf{v}_i(t + \Delta t) = \mathbf{v}_i(t) + \frac{1}{2}(\mathbf{a}_i(t) + \mathbf{a}_i(t + \Delta t))(\Delta t). \quad (\text{B.2})$$

This has also the big advantage that accuracy can be improved by using higher order symplectic integrators such as the one by Yoshida [58].

References

- [1] Gallagher T F 1994 *Rydberg Atoms* (New York: Cambridge University Press)
- [2] 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** 253–6
- [3] 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** 249–52
- [4] Fioretti A, Comparat D, Drag C, Gallagher T F and Pillet P 1999 Long-range forces between cold atoms *Phys. Rev. Lett.* **82** 1839–42
- [5] 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** 2208–11
- [6] 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** 037901
- [7] 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** 063001
- [8] 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** 233001
- [9] Vogt T, Viteau M, Zhao J, Chotia A, Comparat D and Pillet P 2006 Dipole blockade through Rydberg Forster resonance energy transfer *Phys. Rev. Lett.* **97** 083003
- [10] Vogt T, Viteau M, Chotia A, Zhao J, Comparat D and Pillet P 2007 Electric-field induced dipole blockade with Rydberg atoms *Phys. Rev. Lett.* **99** 083003

- [11] 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** 233002
- [12] 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** 163001
- [13] Robicheaux F and Hernández J V 2005 Many-body wave function in a dipole blockade configuration *Phys. Rev. A* **72** 063403
- [14] Ates C, Pohl T, Pattard T and Rost J M 2007 Many-body theory of excitation dynamics in an ultracold Rydberg gas *Phys. Rev. A* **76** 013413
- [15] Amthor T, Reetz-Lamour M, Giese C and Weidemüller M 2007 Modeling many-particle mechanical effects of an interacting Rydberg gas *Phys. Rev. A* **76** 054702
- [16] 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** 2251–75
- [17] Vogt T 2006 Blocage de l'excitation d'atomes froids vers des états de Rydberg: contrôle par champ électrique et résonance de Förster *PhD Thesis* Université Paris Sud XI
- [18] Ates C, Pohl T, Pattard T and Rost J M 2006 Strong interaction effects on the atom counting statistics of ultracold Rydberg gases *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **39** L233–9
- [19] Torquato S, Lu B and Rubinstein J 1990 Nearest-neighbour distribution function for systems on interacting particles *J. Phys. A: Math. Gen.* **23** L103–7
- [20] Blushs K and Auzinsh M 2004 Validity of rate equations for Zeeman coherences for analysis of nonlinear interaction of atoms with broadband laser radiation *Phys. Rev. A* **69** 063806
- [21] Minami T, Reinhold C O and Burgdörfer J 2003 Quantum-trajectory Monte Carlo method for internal-state evolution of fast ions traversing amorphous solids *Phys. Rev. A* **67** 022902
- [22] Robicheaux F 2005 Ionization due to the interaction between two Rydberg atoms *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **38** 333
- [23] 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** 253002
- [24] Liebisch T C, Reinhard A, Berman P R and Raithel G 2007 Erratum: Atom counting statistics in ensembles of interacting Rydberg atoms *Phys. Rev. Lett.* **98** 109903
- [25] Heidemann R, Raitzsch U, Bendkowsky V, Butscher B, Löw R, Santos L and Pfau T 2007 Evidence for coherent collective Rydberg excitation in the strong blockade regime *Phys. Rev. Lett.* **99** 163601
- [26] Raitzsch U, Bendkowsky V, Heidemann R, Butscher B, Löw R and Pfau T 2008 Echo experiments in a strongly interacting Rydberg gas *Phys. Rev. Lett.* **100** 013002
- [27] Heidemann R, Raitzsch U, Bendkowsky V, Butscher B, Löw R and Pfau T 2008 Rydberg excitation of Bose–Einstein condensates *Phys. Rev. Lett.* **100** 033601
- [28] Reetz-Lamour M, Amthor T, Deiglmayr J and Weidemüller M 2007 Rabi oscillations and excitation trapping in the coherent excitation of a mesoscopic frozen Rydberg gas *Preprint* 0711.4321v2
- [29] Gillespie D T 1977 Exact stochastic simulation of coupled chemical reactions *J. Phys. Chem.* **81** 2340–61
- [30] Frankcombe T J and Smith S C 2003 Fast, scalable master equation solution algorithms. IV. Lanczos iteration with diffusion approximation preconditioned iterative inversion *J. Chem. Phys.* **119** 12741–8
- [31] Amar J G 2006 The Monte Carlo method in science and engineering *Comput. Sci. Eng.* **8** 9–19
- [32] Gardiner C W 2004 *Handbook of Stochastic Methods: For Physics, Chemistry and the Natural Sciences* 3rd edn (Berlin: Springer)
- [33] Siepmann J I 2007 An introduction to the Monte Carlo method for particle simulations *Monte Carlo Methods in Chemical Physics (Advances in Chemical Physics vol 105)* (New York: Wiley)
- [34] Allen M P 2004 Introduction to molecular dynamics simulation *Computational Soft Matter: From Synthetic Polymers to Proteins (NIC Series vol 23)* ed N Attig, K Binder, H Grubmüller and K Kremer (Julich: John von Neumann Institut für Computing)
- [35] Sutmann G 2004 Classical molecular dynamics *Computational Soft Matter: From Synthetic Polymers to Proteins (NIC Series vol 10)* ed N Attig, K Binder, H Grubmüller and K Kremer (Julich: John von Neumann Institut für Computing)

- [36] Gibbon P and Sutmann G 2004 Long-range interactions in many-particle simulation *Computational Soft Matter: From Synthetic Polymers to Proteins* (NIC Series vol 10) ed N Attig, K Binder, H Grubmüller and K Kremer (Julich: John von Neumann Institut für Computing)
- [37] Attard P 2002 Stochastic molecular dynamics: a combined Monte Carlo and molecular dynamics technique for isothermal simulation *J. Chem. Phys.* **22** 2002
- [38] Jansen A P J 2003 An introduction to Monte Carlo simulations of surface reactions *Preprint cond-mat/0303028*
- [39] Dalibard J, Castin Y and Molmer K 1992 Wave-function approach to dissipative processes in quantum optics *Phys. Rev. Lett.* **68** 580
- [40] Bortz A B, Kalos M H and Lebowitz J L 1975 A new algorithm for Monte Carlo simulation of Ising spin systems *J. Comput. Phys.* **17** 10
- [41] Fichtthorn K A and Weinberg W H 1991 Theoretical foundations of dynamical Monte Carlo simulations *J. Chem. Phys.* **95** 1090–6
- [42] Gillespie D T 1976 A general method for numerically simulating the stochastic time evolution of coupled chemical reactions *J. Comput. Phys.* **22** 403
- [43] Chatterjee A and Vlachos D G 2007 An overview of spatial microscopic and accelerated kinetic Monte Carlo methods *J. Computer-Aided Mater. Des.* **14** 253–308
- [44] Voter A 2007 Introduction to the kinetic Monte Carlo method *Radiation Effects in Solids* ed K E Sickafus *et al* (Berlin: Springer) pp 1–23
- [45] Cowan G 2006 Review of particle physics *J. Phys. G: Nucl. Part. Phys.* **33** 1
- [46] Maksym P A 1988 Fast Monte Carlo simulation of MBE growth *Semicond. Sci. Technol.* **3** 594–6
- [47] Blue J L, Beichl I and Sullivan F 1995 Faster Monte Carlo simulations *Phys. Rev. E* **51** 867
- [48] Ovcharenko A M, Golubov S I, Woo C H and Huang H 2003 GMIC++: grouping method in C++; an efficient method to solve large number of master equations *Comput. Phys. Commun.* **152** 208–26
- [49] Aarseth S J 2006 *Gravitational N-body Simulations: Tools and Algorithms* (Cambridge Monographs on Mathematical Physics) (Cambridge: Cambridge University Press)
- [50] Hénon M 1971 Monte Carlo models of star clusters (Part of the *Proc. IAU Coll. No. 10* (Cambridge, UK, 12–15 August 1970) *Astrophys. Space Sci.*
- [51] Heggie D C 2005 The classical gravitational N-body problem *Preprint astro-ph/0503600*
- [52] Heggie D and Hut P 2003 *The Gravitational Million-Body Problem* (Cambridge: Cambridge University Press)
- [53] Li J 2005 Basic molecular dynamics *Handbook of Materials Modeling: Collection Physics and Astronomy* (Berlin: Springer)
- [54] Leimkuhler B and Reich S 2005 *Simulating Hamiltonian Dynamics* (Cambridge: Cambridge University Press)
- [55] Cartwright J H E and Piro O 1992 The dynamics of Runge–Kutta methods *Int. J. Bifurcation Chaos* **2** 427–49
- [56] Portegies Zwart S, McMillan S, Groen D, Gualandris A, Sipior M and Vermin W 2007 A parallel gravitational N-body kernel *Preprint 0711.0643*
- [57] Hut P 1986 Numerical computations in stellar dynamics *Part Accel.* **19** 37–42
- [58] Yoshida H 1990 Construction of higher order symplectic integrators *Phys. Lett. A* **150** 262–8

PHYSICAL REVIEW A 71, 013416 (2005)

Ionization of Rydberg atoms embedded in an ultracold plasma

Nicolas Vanhaecke, Daniel Comparat,* Duncan A. Tate,[†] and Pierre Pillet
Laboratoire Aimé Cotton, CNRS II, Bâtiment 505, Campus d'Orsay, 91405 Orsay cedex, France
 (Received 16 September 2004; published 19 January 2005)

We have studied the behavior of cold Rydberg atoms embedded in an ultracold plasma. We demonstrate that even deeply bound Rydberg atoms are completely ionized in such an environment, due to electron collisions. Using a fast pulse extraction of the electrons from the plasma we found that the number of excess positive charges, which is directly related to the electron temperature T_e , is not strongly affected by the ionization of the Rydberg atoms. Assuming a Michie-King equilibrium distribution, in analogy with globular star cluster dynamics, we estimate T_e . Without concluding on heating or cooling of the plasma by the Rydberg atoms, we discuss the range for changing the plasma temperature by adding Rydberg atoms.

DOI: 10.1103/PhysRevA.71.013416

PACS number(s): 32.80.Pj, 52.25.Dg, 98.10.+z

One challenge in ultracold plasma physics is to reach the correlated regime where the Coulomb energy dominates the kinetic energy. One suggested way, unfortunately limited to non-alkali-metal ions, is to cool the plasma ions by lasers [1]. An alternative way might be to use the binding energy of Rydberg states as “ice cubes” to cool the plasma. The physics of ultracold Rydberg gases [2,3] and ultracold plasmas [4] formed by laser excitation of a cold atomic sample have strong similarities. Indeed, Rydberg atom formation in an ultracold plasma [5] and spontaneous evolution of an ultracold Rydberg gas to plasma [6] have been demonstrated. The Rydberg ionization process starts with blackbody photoionization and initial electrons leave the cloud region. A second phase occurs when the positive ion potential is deep enough to trap subsequent electrons, which then collide with Rydberg atoms, creating more electrons in an avalanche ionization process [7–9]. However, other relevant processes have been proposed whose effects need to be investigated, such as continuum lowering [10] and many-body effects or long-range interactions [11], which can lead to autoionization of Rydberg atom pairs [12].

In this paper, we report the behavior of a mixture of an almost *neutral* ultracold plasma and a cold Rydberg atom sample. A related experiment has been reported, but in the case of rubidium Rydberg atoms created in a purely *ionic* plasma [13]. We analyze the fast avalanche ionization of deeply bound Rydberg states embedded in a quasineutral plasma. We also study, with a theory based on analogy with globular star cluster dynamics, the evolution of the temperature of the plasma when Rydberg atoms are added.

The cesium magneto-optical trap (MOT) apparatus has been described in a previous paper [6]. Two dye lasers pulses (Coumarin 500) that are focused to the cold atom cloud diameter excite atoms initially in the $6p_{3/2}$ state. The time origin of the experiment is the first laser (L_1) pulse, with typical energy $P_1 = 10 \mu\text{J}$, which creates a quasineutral plasma of $N_i \approx 4 \times 10^5$ ions with peak density 10^{10} cm^{-3} . The second

laser (L_2) pulse [amplified spontaneous emission (ASE) $<1\%$] has an 18 ns delay and excites typically 4×10^5 Rydberg atoms. The Rydberg number fluctuates from pulse to pulse due to the changing overlap of the dye laser mode structure with the narrow $6p_{3/2} \rightarrow$ Rydberg resonance [6]. However, the plasma created by the first laser, which is tuned just above the ionization limit, is affected only by negligible laser intensity fluctuations. The MOT trapping lasers are turned off and a resonant 852-nm diode laser pulse excites the Cs $6p_{3/2}$ state just before the dye laser pulses arrive. Because of the Doppler effect, this pulse ensures that all the $6p_{3/2}$ atoms are cold [6]. We have verified that 6s atoms have no effect on our experimental results by pushing them away using this laser light pressure after the pulse dye laser excitation.

The first part of our analysis concerns the ionizing effect of the plasma on the Rydberg atoms. In order to study the evolution of the cloud we applied, after a variable time $t_1 = 0\text{--}20 \mu\text{s}$, a positive top-hat voltage pulse (voltage V_1) to one of the two parallel grids ($d = 1.57 \text{ mm}$ separation) that surround the cloud. This pulse is used to pull all the electrons from the plasma (hereafter termed “free” electrons) toward a microchannel plate (MCP) detector, leaving no further electrons trapped in the ion space charge in the situation where the laser L_2 is blocked. The MCP signal is monitored using a gated integrator (GI1) (see inset in Fig. 1). The effect of the Rydberg atoms on the plasma is monitored using a second voltage pulse applied on the opposite grid, at time t_2 typically 700 ns delay from the first voltage pulse. The early part of this second pulse extracts additional electrons that are monitored using a second integrator (GI2). If the second voltage pulse is large enough, it will also field ionize Rydberg states, leading to a signal on the MCP that is monitored using a third integrator GI3. Figure 1 shows the results, for $t_1 = 4 \mu\text{s}$, versus the wavelength of L_2 . L_1 is blocked by a mechanical shutter half of the time so that we obtained spectra with, and without, the plasma under otherwise similar conditions. The results are illustrated using the case of the $30d$ state. When only $30d$ atoms are created, almost no electrons are detected in GI1 or GI2. However, when the plasma is created, some electrons appear in GI2 but the electron number in GI1 is unchanged. This indicates that more free

*Electronic address: Daniel.Comparat@lac.u-psud.fr

[†]Permanent address: Department of Physics and Astronomy, Colby College, Waterville, ME 04901, USA.

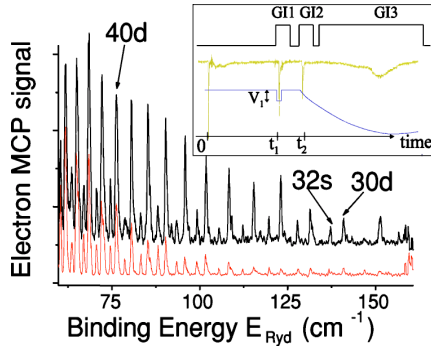


FIG. 1. (Color online) Electron signal GI2 monitored at $t_1 = 4.7 \mu\text{s}$ after plasma creation when scanning the Rydberg laser. Upper curve: plasma present. Lower curve: plasma absent. In the inset: Lower trace: a schematic view of the voltage between the two grids. Middle trace: MCP signal (the first peak is noise from the laser shot). Upper trace: integrator gates.

electrons are formed when the Rydberg laser is present. These electrons must come from the Rydberg atoms, indicating that the plasma accelerates the ionization of the Rydberg atoms.

Looking at Rydberg ionization efficiency (GI3 signal) as a function of plasma density and binding energy of the Rydberg state leads to the more quantitative results shown in Fig. 2. The denser the plasma, the more efficient the ionization. Furthermore, Rydberg atoms which do not ionize spontaneously can be ionized by the plasma. Long plasma–Rydberg-atom interaction times favor the Rydberg ionization process. For instance, we were able to ionize Rydberg states with the plasma down to the dye limit of $n=19$ at delays of 10–20 μs . The maximum effective evolution time is 20 μs , since after this delay plasma expansion leads to too small a density to have efficient ionization. It is also worthwhile noting that similar results are obtained when the plasma is much smaller in size (~ 0.1 mm diameter) than the Rydberg sample (~ 0.6 mm diameter). The Rydberg sample is still completely ionized (for long interaction time), presumably as a consequence of the plasma expansion.

All of these observations agree with the model based on avalanche ionization due to collisions between plasma elec-

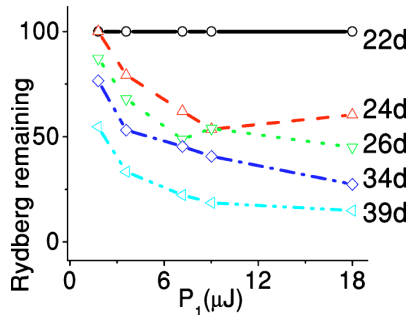


FIG. 2. (Color online) Rydberg ionization efficiency (in percent) versus plasma laser power ($P_1 = 10 \mu\text{J}$ corresponds roughly to 4×10^5 ions) at $t_1 = 1 \mu\text{s}$. The GI3 remaining Rydberg atom signal is monitored.

trons and Rydberg atoms. Some further observations help to understand the role of the other processes mentioned in the introductory paragraphs. First, the effect of continuum lowering, which reflects the fact that the zero of energy of the isolated atoms is shifted by long-range Coulomb interactions with neighbors in the presence of the plasma, will ionize only $n \geq 40$ at short delays for the highest density we could achieve [10]. This is in contradiction with the ionization of the $19d$ state we observed after 10 μs . Second, the efficiency of plasma-induced Rydberg ionization is strongly dependent on the plasma density but insensitive to the Rydberg density, ruling out any possible effect of autoionization of Rydberg pairs on the ionization process. Third, we have checked, up to 100 cm^{-1} above the ionization limit, that the ionization process does not depend strongly on the plasma electron energy. Finally, if we remove all the free electrons just after plasma creation (at $t_1 = 0.1 \mu\text{s}$), preliminary results on small numbers of $30d$ Rydberg atoms show that after 10 μs , 0% are ionized if $P_1 < 15 \mu\text{J}$. However, for $P_1 = 30 \mu\text{J}$, 50% are ionized, whereas 100% are ionized if the electrons are not removed at $t_1 = 0.1 \mu\text{s}$. At first glance, this seems incompatible with the scenario in which Rydberg ionization is caused by electron collisions. However, for $P_1 = 30 \mu\text{J}$ when the free electrons are removed at $t = 0.1 \mu\text{s}$, the small number of electrons subsequently formed by blackbody radiation or autoionizing atom pairs are trapped in the positive ion potential. We suggest that in such an environment, they are able to ionize a large number of Rydberg atoms. In addition, the creation rate for autoionizing pairs may increase when electrons are present because they can stabilize the cloud expansion and because of the effect of attractive induced dipole-charge or dipole-dipole long-range forces [11]. More quantitative experiments, to be published in [9], which have been carried out at Colby College in collaboration with Laboratoire Aimé Cotton and with a group at University of Virginia, have observed a redistribution to Rydberg states other than that initially populated by the laser. This seems to confirm the model in which Rydberg ionization is caused primarily by electron collisions because the Rydberg redistribution is a necessary part of this process [7].

The second part of this paper is devoted to an important question concerning energy conservation during the evolution of Rydberg atoms to plasma [14]. Electron collisions with very highly excited Rydberg atoms gradually decrease the binding energy of the Rydberg atoms until they ionize. On the other hand, electron collisions with lower-lying Rydberg states increase their binding energy (superelastic collisions). The interface between these two regimes occurs roughly when the Rydberg binding energy equals a few times the kinetic energy of the plasma electrons [7,15]. In the first scenario the Coulomb space charge is not affected and the electrons are probably cooled, so T_e should decrease. However, in the second scenario the colliding electron is heated or is ejected out of the plasma, and T_e should increase. To experimentally discriminate between these two mechanisms, we need to determine the electronic temperature of the plasma, T_e . The basic idea to experimentally determine the temperature is to have an instantaneous picture of the electron energy distribution using the short voltage pulse V_1 to extract electrons. In order to adequately accelerate the elec-

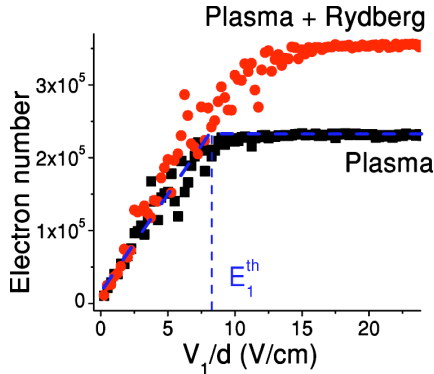


FIG. 3. (Color online) Number of electrons ejected (GI1) when varying the voltage V_1 for the plasma alone and for $45d$ Rydberg atoms embedded in the plasma after $t_1 = 1 \mu\text{s}$ of evolution time. The dashed lines are a guide for the eye to interpret Eq. (1). Each datum has been calibrated to the multiple shots average electron number $\bar{N}_e$; i.e., the signal shown is $\bar{N}_e \times \text{GI1}/(\text{GI1} + \text{GI2})$.

trons when the pulse amplitude is small, its duration must be longer than 50 ns. This is close to the electron thermalization time and we probably also extract some rethermalized electrons. A similar technique has been used in neutral atom Bose-Einstein condensation experiments in a static external potential [16]. Our case—electrons in the plasma—is more complex due to the fact that our potential ϕ (sum of the electronic, ionic, and external potential) depends on the number of particles trapped via Poisson's equation. Our experiment is similar to “runaway electron” experiments, except that we have an inhomogeneous plasma, which leads to theoretical complexities [17]. The number of electrons ejected by the voltage V_1 is plotted in Fig. 3 both for the plasma-only and for the plasma-plus-Rydberg-atom sample. Our lasers are not strongly focused, so the cylindrical cloud is well approximated by a spherical Gaussian symmetry for the ion density $n_i(r, t) = n_i^0 e^{-r^2/[2\sigma^2(t)]}$. For the data presented in Fig. 3 the sample is still Gaussian (see [7]) with $\sigma = \sigma(t=0) \approx 250 \mu\text{m}$.

We first determine $n_i^0 = N_i/(2\pi\sigma^2)^{3/2}$ using the threshold value E_1^{th} (see Fig. 3), which is necessary to remove all the free electrons. Indeed, assuming there are always a few electrons with zero velocity in the ion potential well, the maximum electric field created by the ionic space charge is exactly

$$E_1^{\text{th}} = \frac{V_1^{\text{th}}}{d} \approx 2.38 \frac{q_i}{4\pi\epsilon_0} n_i^0 \sqrt{2\sigma^2}. \quad (1)$$

Preliminary comparison with ion numbers coming from an ionic detection on the MCP detector are in agreement with this measurement.

We then determine the plasma state, immediately before we apply V_1 (time delay t_1), using the Poisson-(Landau)-Fokker-Planck (FP) kinetic equation for electrons [18]. The cold and heavy ions lead to a negligible contribution in the electrons FP equation which is then formally identical to the one governing globular cluster star dynamics

[19,20] except that, in the noncollisional part, there is a repulsive electron-electron potential versus the attractive gravitational field. The system reaches a quasiequilibrium within a few times the electron-electron thermal momentum relaxation time τ_{ee} , which is typically a few tens of nanoseconds. The main result obtained with our analogy with globular clusters is then that the phase-space density function f for this quasiequilibrium is close to a (Kramers-Michie-) King-type distribution [21]:

$$f \propto (e^{-E/k_B T_e} - e^{-E_t/k_B T_e}),$$

where k_B is Boltzmann's constant, $E = q_e \phi + \frac{1}{2} m_e v_e^2$, and E_t is the potential energy at infinity [22]. This defines what we call the uniform (r -independent) King's electronic temperature T_e , which is not the same as the inhomogeneous velocity average temperature. Fitting the Monte Carlo simulations of Figs. 1 and 2 of Ref. [7] confirms that such King's type distribution is a better choice than a Maxwell-Boltzmann distribution.

The plasma temperature determination is then based on the solution of the self-consistent Poisson equation

$$\frac{1}{r} \frac{\partial^2}{\partial r^2} [r \eta_t(r, t)] = \frac{q_e}{k_B T_e(t)} \left[\frac{q_i n_i(r, t) + q_e n_e(r, t)}{\epsilon_0} \right], \quad (2)$$

where $\eta_t(r, t) = [E_t(t) - q_e \phi(r, t)]/k_B T_e(t)$ and the electron density $n_e(r, t)$ is

$$n_e = \int_0^{+\infty} f 4\pi v^2 dv \propto e^{\eta_t} \text{Erf}(\sqrt{\eta_t}) - \frac{2}{\sqrt{\pi}} \left(\eta_t^{1/2} + \frac{2}{3} \eta_t^{3/2} \right), \quad (3)$$

where the proportionality factor is straightforwardly linked to the electron density at the cloud center, n_e^0 , and to $\eta(t) = \eta_t(r, r=0)$. More precisely σ and n_i^0 are known from Eq. (1) and we add the following conditions: (i) $n_e(r)$ should be nonzero at infinity [22], because even for small V_1 values some electrons are removed, and (ii) the total number of calculated electrons, $N_e(t) = \int_0^{+\infty} n_e(r, t) 4\pi r^2 dr$, should reproduce the observed number $\bar{N}_e$. This determines the values for the two remaining parameters n_e^0 and T_e as a function of the unknown η parameter. The nonanalytical final results may be approximated by the following intuitive results: the trapping depth $\eta k_B T_e$ has to be roughly equal to the trap depth, calculated assuming a Gaussian shape for ions and electrons: $\sqrt{2} q_e / (\sqrt{4\pi\epsilon_0})$ times $(N_i - N_e)/\sigma$ [4]. The experimental results (see Fig. 3) indicate that $N_i - N_e$ is not strongly affected by the Rydberg ionization. This might be an indication that the superelastic collisions, which would lead to electron evaporation, are not a dominant process. This is also an indication that the sample is not strongly heated when Rydberg atoms are ionized. We cannot give a more definitive answer because the plasma temperature is mainly given by the ratio $N_i - N_e$ divided by the unknown parameter η . Determination of η from the shape of the curves in Fig. 3 is beyond the scope of this article, but this problem may probably be tackled using the collisionless Poisson-Vlasov “violent relaxation” theory. Nevertheless, $4 < \eta < 12$ is a reasonable choice, and for plasma alone, analysis of Fig. 2 of Ref. [7]

indicates that η increases with time and that $\eta \approx 10$ for our experiment with $t = 1 \mu\text{s}$ (see also Fig. 10 of Ref. [23]). Without any simulation it seems difficult to know η when Rydberg atoms are present in plasma. Adding to the fact is that σ and $N_i - N_e$ are not strongly affected by Rydberg ionization. We could conclude that the temperature should not increase or decrease by more than a factor 5 when Rydberg atoms are added to plasma.

To conclude, we have studied the ionization of excited atoms in an ultracold plasma. We have observed the fast ionization of Rydberg atoms embedded in the plasma. Deeply bound Rydberg atoms ($n = 19$) are ionized using a dense plasma after some 10–20 μs interaction time. The only mechanism able to explain a Rydberg ionization efficiency of close to 100% is Rydberg electron collisions from electrons trapped in the ion space-charge potential. Nevertheless, the role of long-range forces cannot be ruled out and should be checked with further experiments. Finally, in analogy with globular cluster dynamics, we found that the plasma is always in a Michie-King quasiequilibrium distribution. This will be further discussed in a subsequent paper. T_e is mainly

given by $N_i - N_e$ which is experimentally determined by a forced fast electron extraction. These preliminary experiments, with a low-temperature plasma, indicate that Rydberg atoms cannot drastically change the plasma temperature, so this technique does not provide a path to reach the strongly coupled plasma regime. Measuring the electron evaporation rate with a static field or a voltage ramp is a natural evolution of the theory. Similar ideas have been published recently [24], but based on a Maxwellian distribution, which we believe not to be appropriate in this system. We hope the analogy with globular clusters will be useful for the future of ultracold plasma physics and will stimulate links with the astrophysics community.

The authors thank Tom Gallagher for many helpful discussions. This work was supported by the European Research Training Network “Quantum Complex Systems” and by Colby College. Laboratoire Aimé Cotton is associated with Université Paris-Sud (website: www.lac.u-psud.fr) and is part of the federation of research, “LUMAT.”

-
- [1] T. C. Killian *et al.*, J. Phys. A **36**, 6077 (2003).
 - [2] W. R. Anderson *et al.*, Phys. Rev. Lett. **80**, 249 (1998).
 - [3] I. Mourachko *et al.*, Phys. Rev. Lett. **80**, 253 (1998).
 - [4] T. C. Killian *et al.*, Phys. Rev. Lett. **83**, 4776 (1999).
 - [5] T. C. Killian *et al.*, Phys. Rev. Lett. **86**, 3759 (2001).
 - [6] M. P. Robinson *et al.*, Phys. Rev. Lett. **85**, 4466 (2000).
 - [7] F. Robicheaux and D. Hanson, Phys. Plasmas **10**, 2217 (2003).
 - [8] T. Pohl *et al.*, Phys. Rev. A **68**, 010703 (2003).
 - [9] W. Li *et al.*, Phys. Rev. A **70**, 042713 (2004).
 - [10] Y. Hahn, Phys. Lett. A **293**, 266 (2002).
 - [11] A. Fioretti *et al.*, Phys. Rev. Lett. **82**, 1839 (1999).
 - [12] Y. Hahn, J. Phys. B **33**, L655 (2000).
 - [13] D. Feldbaum *et al.*, Phys. Rev. Lett. **89**, 173004 (2002).
 - [14] T. F. Gallagher *et al.*, J. Opt. Soc. Am. B **20**, 1091 (2003).
 - [15] A. N. Tkachev and S. I. Yakovlenko, Quantum Electron. **31**, 1084 (2001).
 - [16] J. M. Doyle *et al.*, J. Opt. Soc. Am. B **6**, 2244 (1989).
 - [17] R. M. Kulsrud *et al.*, Phys. Rev. Lett. **31**, 690 (1973).
 - [18] M. N. Rosenbluth *et al.*, Phys. Rev. **107** (1957).
 - [19] J. Lyman Spitzer, *Dynamical Evolution of Globular Clusters* (Princeton University Press, Princeton, 1987).
 - [20] G. Meylan and D. C. Heggie, Astron. Astrophys. Rev. **8**, 1 (1997).
 - [21] J. Binney and S. Tremaine, *Galactic Dynamics*, Princeton Series in Astrophysics (Princeton University Press, Princeton, 1987).
 - [22] More generally E_t is the truncated energy above which the particles are extracted from the sample. In our experiment the magnetic field gradient ($B' = 1.5 \text{ mT/cm}$) of the MOT ejects electrons for $r \gtrsim 12\sigma$. We use this value (and not infinity) to solve the Poisson's equation.
 - [23] S. G. Kuzmin and T. M. O'Neil, Phys. Plasmas **9**, 3743 (2002).
 - [24] J. L. Roberts *et al.*, Phys. Rev. Lett. **92**, 253003 (2004).

Star cluster dynamics in a laboratory: electrons in an ultracold plasma

D. Comparat,^{★†} T. Vogt, N. Zahzam, M. Mudrich and P. Pillet

Laboratoire Aimé Cotton, Bât. 505, Campus d'Orsay, 91405 Orsay cedex, France

Accepted 2005 May 30. Received 2005 May 21; in original form 2005 January 5

ABSTRACT

Electrons in a spherical ultracold, quasi-neutral plasma at temperature in the Kelvin range can be created by laser excitation of an ultracold, laser-cooled atomic cloud. The dynamical behaviour of the electrons is similar to the one described by conventional models of star cluster dynamics. The single mass component, the spherical symmetry and no star evolution are here accurate assumptions. The analogue of binary star formations in the cluster case is a three-body recombination in Rydberg atoms in the plasma case with the same Heggie's law: soft binaries get softer and hard binaries get harder. We demonstrate that the evolution of such an ultracold plasma is dominated by Fokker–Planck kinetics equations formally identical to the ones controlling the evolution of a star cluster. The Virial theorem leads to a link between the plasma temperature and the ions and electron numbers. The Fokker–Planck equation is approximate using gaseous and fluid models. We found that the electrons are in a Kramers–Michie–King type quasi-equilibrium distribution as stars in clusters. We suggest that the evaporation rate can be used to determine the temperature. As an example, knowing the electron distribution and using forced fast electron extraction, in a ‘violent extraction’ way, we are able to determine the plasma temperature knowing the trapping potential depth.

Key words: atomic processes – plasmas – stellar dynamics – (stars:) binaries: general.

1 INTRODUCTION

A challenge of astrophysics is to understand the dynamics of globular star clusters (for a review see Meylan & Heggie 1997) because they are test systems for dynamical theoretical models such as N -body modelling, Monte Carlo simulations of Fokker–Planck equations, gas model, scaling models, etc. (Binney & Tremaine 1987; Lyman Spitzer 1987). The evolution of globular clusters is dominated by two-(or three)-body relaxation, evaporation of stars, tidal truncation and star evolution. This leads to a very complex evolution, and the theoretical models are thus simplified with many approximations, sometimes far from reality. Furthermore, it is not possible to observe the evolution of a given cluster because observation gives only an instantaneous picture.

In this paper, we propose to study a real system that corresponds to the most usual assumptions used in conventional models of star clusters: a single mass component, an almost perfect spherical symmetry and no star evolution. This system, which can then be efficiently compared with theory, namely, an ultracold plasma, is realized, controlled and studied in a small laboratory. An ultracold plasma can be formed by laser excitation of an ultracold ($T \approx 100 \mu\text{K}$) atomic sample and has been first realized by Killian et al. (1999). The

physics of ultracold plasmas has strong similarities with the physics of globular star clusters. Both systems are spherically symmetric, radially limited due to tidal forces for clusters or due to applications of an external magnetic or electric field for plasma. The key point, developed in the whole article, is that both systems are driven by the same kinetic equations. Indeed, they are subject to the same inverse square-type forces if one uses, for the plasma case, a new strong negative ‘gravitational constant’ G' defined by

$$G' = -\frac{q_e^2/m_e^2}{4\pi\epsilon_0} \approx -2.78 \times 10^{32} \text{ m}^3 \text{ kg}^{-1} \text{ s}^{-2}. \quad (1)$$

Analogue of binary stars is excited Rydberg atoms, and three-body recombinations (TBR) play the same role in both systems. For instance, in a cluster the energy source, in post-collapse evolution, is provided by binary formation. Similarly in expanding plasma, heating is provided by TBR and Rydberg atoms formation. However, some aspects are not perfectly matched in both systems. For instance, a globular cluster orbits around its host galaxy and is therefore submitted to centrifugal and tidal forces. On the contrary, the plasma is not orbiting. Nevertheless, external field (electric or magnetic) might mimic such forces. In fact, the main goal of this article is to demonstrate that, in an ultracold plasma, the electron dynamics confined by the ionic potential is almost identical to equal mass non-evolving star dynamics in a globular cluster.

The analogy has already been used in N -body simulation by Kuzmin & O’Neil (2002a,b) who simulated the plasma behaviour

[★]E-mail: Daniel.Comparat@lac.u-psud.fr

[†]Laboratoire Aimé Cotton is associated with Université Paris-Sud (website: www.lac.u-psud.fr)

using a modified Aarseth's code usually devoted to cluster studies. In fact, modifications are needed (S. V. Kuzmin, personal communication) before using globular clusters N -body system equations to completely study the ultracold plasma system using only physical constant replacement. It is nevertheless possible to precisely study electron behaviour (mass m_e , charge $q_e < 0$, spatial density n_e) within the ionic external potential (ion mass m_i , ion charge $q_i = -q_e > 0$, spatial density n_i) using a true analogy with a two mass component globular cluster. Vanhaecke et al. (2005) were the first to note a formal analogy. They have developed a close analogy using a lowered Maxwellian–King type distribution for the electrons in the plasma. Similar distribution has been used by Pohl, Pattard & Rost (2004a, 2005). This article is devoted to an extension of the analogy. The article has been written to be accessible to the ultracold plasma community as well as the stellar dynamics community. Lots of ideas, equations or models are not fully solved in this paper. Nevertheless, we have thought that it is fair and interesting to present preliminary equations in order to stimulate further works. The outline of the paper is as follows. In Section 2, we discuss the analogy between the plasma and the cluster system through scaling relation in mass, length and time units. In Section 3, we present the basics of ultracold plasma physics and the role of the three-body mechanism. In Section 4 we show that the Fokker–Planck equation is exactly identical for plasma and cluster system. In Section 5, we briefly study the evolution of the quasi-equilibrium distribution using gaseous and fluid model for ions and electrons. Section 6 is devoted to the orbit average Fokker–Planck equation. We discuss some physical consequences as an electron evaporation rate. We also detail some approximate solution as a King-type equilibrium distribution for electrons in the plasma in analogy with globular star cluster dynamics. In Section 7 we detail some experimental results. For instance, we experimentally extract electrons trapped in an ionic cloud by an external electric field to estimate the electron temperature of the plasma. We finally summarize our results and their implications for both astrophysics and plasma physics.

2 DYNAMICAL ANALOGY THROUGH SCALE UNITS

In Table 1 we give the typical parameters of both the systems. It is then obvious that the natural units (mass, size, crossing time) for both systems are several tens orders of magnitudes different. But, if we use the units $m_p = m_e$, $r_p = 200 \mu\text{m}$, $t_p = 100 \text{ ns}$ for plasma and $M_c = M_\odot$, $R_c = 1 \text{ pc}$, $T_c = 10 \text{ Myr}$ for clusters, the systems look quite similar. Indeed, the k th electron evolution in the plasma is described by Newton's law, with dimensionless scaled notations $\tilde{r} = r/r_p$, $\tilde{t} = t/t_p$ and $\tilde{m}_e = m_e/m_p$:

$$\tilde{m}_e \frac{d^2 \tilde{r}_k}{d\tilde{t}^2} \approx - \frac{q_e^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{t_p^2}{m_p r_p^3} \left[\sum_{k_1 \neq k} \frac{\tilde{r}_{kk_1}}{\tilde{r}_{kk_1}^3} + \frac{q_i}{q_e} n_p r_p^3 \frac{\partial}{\partial \tilde{r}_k} \left(\int \frac{\tilde{n}_i(\tilde{r})}{\|\tilde{r} - \tilde{r}_k\|} d^3 \tilde{r} \right) \right], \quad (2)$$

where $n_p \tilde{n}_i = n_i$ is the ion density.

By comparison, the full dynamics for an M_1 mass star in a two-component cluster (stars mass M_1 and M_2 only) in uppercase di-

Table 1. Typical unit values for globular system and for ultracold plasma.

	Star cluster	Electrons in plasma
Number of particles	5×10^5	10^6
System mass	$5 \times 10^5 M_\odot \approx 10^{36} \text{ kg}$	$10^6 m_e \approx 9 \times 10^{-25} \text{ kg}$
Size (core radius)	$1 \text{ pc} \approx 3 \times 10^{16} \text{ m}$	$200 \mu\text{m} = 2 \times 10^{-4} \text{ m}$
Peak density	$8 \times 10^3 M_\odot \text{ pc}^{-3}$	10^{10} cm^{-3}
Crossing time	$10 \text{ Myr} \approx 3 \times 10^{15} \text{ s}$	$100 \text{ ns} = 10^{-7} \text{ s}$
Velocity dispersion σ_v	7 km s^{-1}	50 km s^{-1}
Relaxation time	10 Gyr	10 ns
Coulomb logarithm: $\ln \Lambda$	10	4

mensionless units $\tilde{R} = R/R_c$, $\tilde{T} = t/T_c$ and $\tilde{M}_1 = M_1/M_c$ is given by

$$\tilde{M}_1 \frac{d^2 \tilde{R}_k}{d\tilde{T}^2} \approx G M_1^2 \frac{T_c^2}{M_c R_c^3} \left[\sum_{k_1 \neq k} \frac{\tilde{R}_{kk_1}}{\tilde{R}_{kk_1}^3} + \frac{M_2}{M_1} N_c R_c^3 \frac{\partial}{\partial \tilde{R}_k} \left(\int \frac{\tilde{N}_2(\tilde{R})}{\|\tilde{R} - \tilde{R}_k\|} d^3 \tilde{R} \right) \right] \quad (3)$$

providing $\tilde{r} = \tilde{R}$, $\tilde{m} = \tilde{M}$ and $\tilde{t} = \tilde{T}$. The equation is exactly identical with similar coupling constant: $G' m_e^2 \frac{t_p^2}{m_p r_p^3}$ and $G M_1^2 \frac{T_c^2}{M_c R_c^3}$ on the order of unity (see equation 1 and values in Table 1).

However, it is not possible to simply use globular clusters N -body code, without any change, to study ultracold plasma system. This is due to the poor behaviour of the second type of particles: ions or M_2 . The first solution is to modify an existing code devoted to cluster studies as done by Kuzmin & O'Neil (2002a,b). In a similar manner, Pohl et al. (2004a) have used a molecular dynamic simulation with ionic correlations based on the treecode originally designed for astrophysics problems by J. E. Barnes. Another strategy is to use a Monte Carlo method. Detail of one Monte Carlo method used for ultracold plasma with TBR process and radiative atomic lifetime is given by Robicheaux & Hanson (2003). Analogy with cluster code as discussed in the MODEST group (MODElling DENSE STellar systems, <http://www.manybody.org/modest/>) is obvious. The relation between codes used in cluster physics and the ones, not as well developed, used in ultracold plasma physics would be probably very fruitful for further studies.

3 ULTRACOLD PLASMA

3.1 Ultracold plasma formation

The ultracold neutral plasma physics experimentally began at the National Institute of Standards and Technology (NIST) in 1999 with laser photoionization of a laser-cooled (in the microKelvin or milliKelvin range) sample. Since then, several groups have done similar work with trapped metastable xenon, cesium or rubidium atoms (for a review see Gallagher et al. 2003; Killian et al. 2003). Recently, strontium atoms have also been used by Simien et al. (2004). This is a promising experiment because the strontium ion can be further laser cooled. This might be a way to control the ion motions. A typical experimental setup is presented in Fig. 1. Due to the small electron over ion mass ratio, the electrons have an initial kinetic energy $k_e^\gamma \equiv 3k_B T_e^\gamma/2$ (k_B is the Boltzmann constant) which is, at the first glance, believed to be approximately equal to the difference between the photon energy and the ionization threshold. T_e^γ might be called the photoionization electronic temperature. Parameters can easily be experimentally tuned in the following

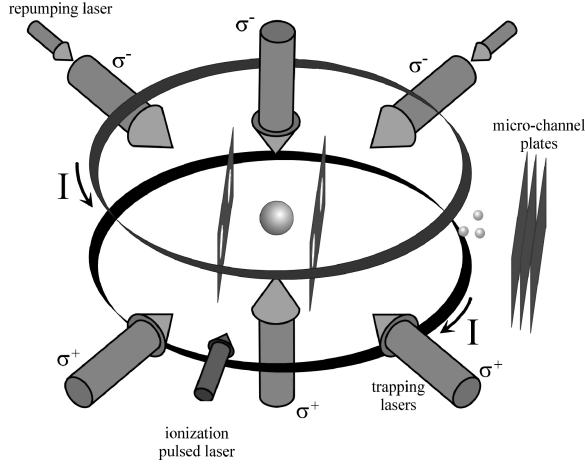


Figure 1. Schematics of a typical experimental setup (typical size 10 cm) used to produce an ultracold plasma. The whole chamber is under vacuum, only filled by a very low pressure atomic vapour. The coil (radius of a few centimetres), the trapping and repumping lasers are used to laser cool the atoms. The pulsed dye laser excites the atoms into the ionization continuum or into Rydberg states. The electrons and (or) ions can be extracted by applying electric field on the grid surrounding the plasma. They are then collected by the charged particle detectors MCP.

range: $N_e < 10^8$ electrons at temperature $T_e^\gamma < 1000$ K embedded in $N_i < 10^8$ ions (initial temperature $T_i \approx 1$ mK). As indicated in Fig. 1, the spherical Gaussian atomic sample is ionized by a Gaussian laser with an intensity profile given by $I = I_0 e^{-2(\sigma^2 + z^2)/w^2}$. This leads to a cylindrical initial plasma shape with σ Gaussian radius along the longitudinal (x) laser propagation axe, $\sigma(t=0) = \sigma_0 \approx 250 \mu\text{m}$, and with $\sqrt{\sigma^2 \omega^2 / (4\sigma^2 + \omega^2)}$ Gaussian radius along the radial (y, z) axes. Experiments are sometimes done with $w \approx \sigma$ so the spherical symmetry is not at all perfect. In the following, we will assume $\omega \gg \sigma$ to restore the Gaussian spherical symmetry. We then have $n_i(r, t) = n_i^0 e^{-r^2/(2\sigma^2(t))}$, with density $n_i^0 < 10^{11} \text{ cm}^{-3}$. With typical initial value $T_e = 50$ K, $n_i^0 \approx n_e^0 = 10^9 \text{ cm}^{-3}$, the plasma parameters are the following: ion (or electrons) number $N_i = N_e \approx 250\,000$, Debye screening length $\lambda_D = \sqrt{\epsilon_0 k_B T_e / (q_e^2 n_e^0)} \approx 15 \mu\text{m}$, the Wigner-Seitz radius (interparticle spacing) $a_{WS} = (4\pi n_i^0 / 3)^{-1/3} \approx 6 \mu\text{m}$, the Landau length $r_L = q_e^2 / (4\pi \epsilon_0 k_B T_e) \approx 0.3 \mu\text{m}$ and the Coulomb logarithm $\ln \Lambda = \ln(2 \lambda_D / r_L) = \ln(8\pi q_e^{-3} (\epsilon_0 k_B T_e)^{3/2} (n_e^0)^{-1/2}) \approx 4$. There are several definitions for the electron relaxation time with slightly different numerical factor (as for cluster Louis & Spurzem 1991). We choose here the relaxation times t_e to be defined by $t_e = 9v_e^3 / (16\sqrt{\pi} G^2 m_e^2 n_e^0 \ln \Lambda) \approx 15$ ns for electron with velocity v_e , chosen for the numerical results at its r.m.s. one-dimensional dispersion value $\sigma_v \approx 50 \text{ km s}^{-1}$. The relaxation time is fast enough to have electrons always in quasi-equilibrium. On the contrary, the ions are almost never thermalized with the electrons during the typical $100 \mu\text{s}$ plasma expansion lifetime. In the previous definitions, the temperature has to be understood as the radially dependent thermodynamic (velocity average) temperature $\frac{1}{2} m_e \sigma_v^2 = \frac{1}{2} k_B T_e(r)$. It is worth noting that the plasma is a kinetic plasma because the thermal energy is higher than the Coulomb interaction energy ($r_L < a_{WS}$). In fact, one major goal of the ultracold plasma community is to reach the opposite situation, the so-called strong-coupled regime, where crystallization or correlation can occur. This regime has already been achieved for non-neutral purely ionic (or purely electronic) plasma in trapped system Dubin & O'Neil (1999).

Star clusters dynamics in a laboratory 1229

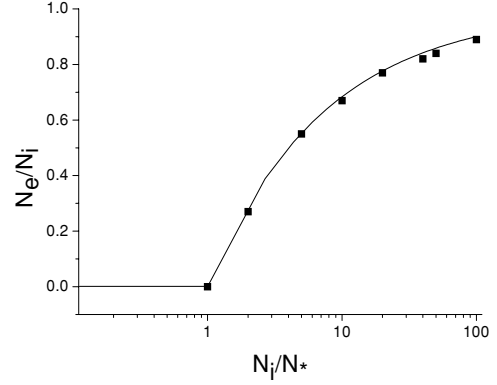


Figure 2. Experimental results by Killian et al. (1999) fitted with solid line by equation (5).

The physics of ultracold plasma is very rich and only some aspects will be discussed here. Right after the plasma creation, electrons that move faster than ions leave the sample within nanosecond time-scale (Tkachev & Yakovlenko 2001a). This very complex stage has not yet been experimentally studied, but it is related to the Langmuir paradox, which is merely the ‘violent relaxation’ process in astrophysics (Chavanis 2002). This probably leads to almost a Maxwellian distribution for electrons in a sub-nanoseconds time-scale, which is the inverse of the electron Langmuir angular frequency $\omega_L \approx \sqrt{4\pi q_e^2 n_e / (\epsilon_0 m_e)}$. Similar collisionless process occurs for ions, created in a spatially disordered state, but at hundreds of nanoseconds time-scale given by the inverse of the Einstein angular frequency $\omega_E \approx \sqrt{4\pi q_e^2 n_i / (\epsilon_0 m_i)}$ (Pohl et al. 2004a,b; Simien et al. 2004). The laser ionization creates a plasma from where electrons escape, creating a net positive space charge. When the potential depth becomes equal to the electron kinetic energy, occurring for an ion number equal to,

$$N_* = k_e^\gamma \sigma \frac{4\pi\epsilon_0}{q_e^2} \sqrt{\frac{\pi}{2}} \approx 1500, \quad (4)$$

the space charge form a trapping potential for the new-formed electrons. In fact, the experimental results by Killian et al. (1999), taken for T_e^γ ranging from 4 to 800 K, lead to a more complex result for the final population distribution. We found that Killian et al. (1999) results can be well fitted (see Fig. 2) by the important formula

$$N_i - N_e \approx N_* \left(\frac{N_i}{N_*} \right)^{0.5} \quad (5)$$

yielding to $N_i - N_e \approx 20\,000 \ll N_i$, which indicates that the plasma is usually quasi-neutral. With our experimental setup, we have obtained similar results, but with a slightly bigger numerical factor in formula (4). Equations (4) and (5) can be written in a more convenient form

$$T_e^\gamma (\text{K}) = \frac{8.9}{\sigma (\mu\text{m})} \frac{(N_i - N_e)^2}{N_i}. \quad (6)$$

The electronic pressure finally leads to the expansion of the Gaussian plasma. Kulin et al. (2000) have experimentally studied this expansion. They monitored the evolution of the mean electron density $\bar{n}_e$ using electron ejection induced by forced electron plasma oscillations (angular frequency $\omega_{pl} = \sqrt{q_e^2 \bar{n}_e / (\epsilon_0 m_e)}$) created by an external radio-frequency (RF) electric field (Bergeson & Spencer 2003). The time dependence of the plasma size was then analysed by Monte Carlo method by Robicheaux & Hanson (2002) and may

be represented by a typical plasma-expansion time $t_{\text{PE}} = \sigma_0/v_0$ and an expansion given by

$$\sigma^2(t) \approx \sigma_0^2 + v_0^2 t^2, \quad v_0^2 = \frac{k_B T_e^\gamma}{m_i}. \quad (7)$$

In fact after typically a few microseconds an ionic density spike appears (Robicheaux & Hanson 2003) and formula (7) is no more valid but seems to be restored for much longer time (Pohl et al. 2004a). One major experimental result (Kulin et al. 2000) concerns the fact that even for laser ionization at threshold, where a near zero electron velocity is naively expected, the velocity v_0 is no more given by formula (7) but is experimentally found to be always greater than 40 m s^{-1} and greater than $\sqrt{k_B^\gamma/m_i}$ (Kulin et al. 2000). One gets the fundamental result that the electron temperature T_e is higher than 5 K independently of the experimental initial parameters. The plasma is therefore always in a non-coupled regime where $r_L < a_{\text{WS}} < \lambda_D$. This is due to instantaneous initial increase electron kinetic energy while moving towards ions (Kuzmin & O'Neil 2002b) and due to continuum lowering (Hahn 2002; Mazevet, Collins & Kress 2002), which reflects the fact that the energy of the isolated atoms is shifted by a long-range Coulomb interaction with neighbours when embedded in a plasma. Another heating process, which acts at longer times, results from a huge TBR rate. In such a collision between two electrons and one ion, (Rydberg) atoms are formed in the plasma when one electron recombines with the ion. Killian et al. (2001) have indeed observed this TBR in ultracold plasma. Rydberg atom formation is the analogue of binary system formation through three-body encounters in globular cluster; this is a large energy source for the free remaining electron, which strongly heats the sample (Robicheaux & Hanson 2002).

3.2 TBR processes, binary system and Rydberg atoms

The reverse process, namely spontaneous evolution of an ultracold excited (Rydberg) gas to an ultracold plasma, has been demonstrated by our group and by a group at University of Virginia simultaneously in 2000 (Robinson et al. 2000). The Rydberg ionization process probably starts with blackbody photoionization, high energetic collisions with hot surrounding atoms and, for highly excited Rydberg states, to Rydberg–Rydberg collision induced by long-range attractive forces (Li et al. 2004). The so-formed initial electrons leave, almost instantaneously, the interaction region. One attempted analogy with cluster might be the dissociation of primary binary system due to external supernovae explosion but with a much higher probability rate. A second phase occurs when the positive ion potential is deep enough to trap subsequent electrons, which then collide with Rydberg atoms creating more electrons in an avalanche ionization process (Pohl, Pattard & Rost 2003; Robicheaux & Hanson 2003). This is perfectly identical to binary collision in star clusters when collision with a third star leads to the destruction of the binary system. However, other relevant processes have been proposed whose effects need to be investigated, such as autoionization of Rydberg atom pairs (Hahn 2000) is similar to the destruction of binary system through binary–binary collisions in globular clusters. Vanhaecke et al. (2005) have reported the total ionization of a cold Rydberg atomic sample embedded in an almost neutral ultracold plasma. This experiment is the analogue of primordial binary system present initially inside a globular cluster. As in the astrophysical point of view, this has strong influence on the energetic story of the sample. Rydberg atoms have finite lifetime (typically tens of microsecond) induced by photon spontaneous emission or

by blackbody photon absorption; these processes can be seen as the analogue of stellar evolution. Some other works have shown that high-angular-momentum (circular electron orbit) Rydberg atoms, with order, of magnitude longer lifetime (several millisecond), are created by eccentricities change through collision with electrons in an ultracold plasma (Dutta et al. 2001; Walz-Flannigan et al. 2004). This kind of process has also been mentioned in case of zero kinetic energy photoelectron spectroscopy (HQ, JL & L 2001). The high-angular-momentum Rydberg atoms are the analogue of circular binaries in cluster environments, which is still an open study (Giersz & Spurzem 2003). Walz-Flannigan et al. (2004) also note that there is an unexpected large population of deeply bound (hard) Rydberg atoms; this is probably due to Penning ionization where two binaries collide leading to the disruption of one of them and increase in the binding energy of the second. This Penning ionization is the exact analogue of the disruptive collision in binary–binary scattering in the cluster case (Lyman Spitzer 1987; Hut et al. 1992). Indeed, the collisions during binary–binary and binary–single interactions still need a lot of investigations (Fregeau et al. 2004). Another interesting study is related to the binding energy distribution. Starting from a pure plasma, the binding energy distribution, resulting in the TBR process, is modified during the plasma expansion (Robicheaux & Hanson 2002). The centre of mass Rydberg velocity is the one of the ion at the time the recombination occurs and should therefore be linked with the Rydberg binding energy: the slower atoms tend to have larger binding energies (Robicheaux & Hanson 2003). This is also linked to the so-called excitation freezing (Tkachev & Yakovlenko 2001b) and needs to be experimentally studied. There are, however, differences between Rydberg atoms and binary stellar systems (Hut & Bahcall 1983) (see also the review on binaries in globular star clusters by Hut et al. 1992). Indeed, Rydberg are dipolar but neutral atoms. Therefore, the Rydberg binary system interacts with neighbours only through charge–dipole or dipole–dipole interaction scaling, respectively, as a_{WS}^{-2} and a_{WS}^{-3} but in the cluster case binary system interact through Coulomb interaction scaling a_{WS}^{-1} . Furthermore, the dissipation of the relative kinetic energy of two strongly interacting stars through tidal effect that leads to the formation of tightly bound binaries (so-called tidal binaries) has no simple analogue in the plasma case. The goal of this article is to give an overview of the analogy between both systems, but it is beyond its scope to detail all the processes involving binaries. We will mainly focus on results that are of interest for the free electron distribution.

When Rydberg gas is formed, there is competition between the de-excitation rate and the excitation rate for Rydberg atoms. In fact, very highly excited Rydberg atoms, for which binding energy is less than the single-electron plasma kinetic energy, are analogue to soft binary stars and, as in the cluster case, encounters lead to the disruption of the system by gradually increasing the binding energy until it becomes positives. This is a similar law than Heggie's law (we will use this terminology even if this law was known in atomic physics much earlier than in cluster physics): hard binaries get harder and soft binaries get softer (Heggie 1975). Indeed, the probability of excitation for a Rydberg atom equals the probability of deexcitation when its binding energy is given by $3.82k_B T_e$ (Mansbach & Keck 1969; Robicheaux & Hanson 2003). A similar formula but with a bottleneck point nearer to $k_B T_e$ has been given by Tkachev & Yakovlenko (2001b); see also Stevefelt, Boulmer & Delpech (1975) or Vriens & Smeets (1980) for other formulae. This is exactly the same behaviour than the one noted in star cluster physics. This process has been studied experimentally (Killian et al. 2001; Li et al. 2004; Walz-Flannigan et al. 2004).

As previously mentioned, in both systems, the binary formation comes from TBR. For cluster, the rate Γ_{TBR} is (Binney & Tremaine 1987) (8–7) and (Lyman Spitzer 1987) (6–37)

$$\Gamma_{\text{TBR}} \approx \frac{n^2 G^5 M^5}{\sigma_v^9},$$

where $\sigma_v^2 = k_B T_e / m_e$ is the one-dimensional velocity dispersion. And for electrons plus ions, we have (Mansbach & Keck 1969; Tkachev & Yakovlenko 2001b)

$$\frac{1}{n_e} \left(\frac{dn_e}{dt} \right)_{\text{TBR}} = -\Gamma_{\text{TBR}} \approx \frac{n_e n_i G^5 m_e^5}{(k_B T_e / m_e)^{9/2}} \approx -100 \text{ s}^{-1}. \quad (8)$$

In both formulae, we have omitted numerical factor of the order of unity. The analogy is obvious but the $T_e^{-9/2}$ behaviour leads to a major difference between the cluster case and the ultracold plasma case. For an ultracold plasma, the TBR rate can be huge but it is almost negligible for clusters. We mention that the analogy could be pursued further on. Indeed, formula given by Sigurdsson & Phinney (1998) (see also Hut & Bahcall 1983; Lyman Spitzer 1987), which concerns the energy change between stars, is similar to the rate function (Mansbach & Keck 1969) (III-12) between atomic energy states $\mathcal{E}_i = k_B T_e \epsilon_i$ to energy state $\mathcal{E}_f = k_B T_e \epsilon_f$ given by

$$\begin{aligned} k(\epsilon_i, \epsilon_f) &= k_0 (-\epsilon_f)^{-4.83} (-\epsilon_i)^{2.5}, \quad \epsilon_i > \epsilon_f \\ k(\epsilon_i, \epsilon_f) &= k_0 (-\epsilon_i)^{-2.33} e^{-(\epsilon_i - \epsilon_f)}, \quad \epsilon_i < \epsilon_f, \end{aligned} \quad (9)$$

where $k_0 = 11 \left(\frac{q_e^2}{k_B T_e} \right)^2 \left(\frac{k_B T_e}{m} \right)^{1/2}$ and the zero of energy is taken as the ionization threshold.

In the cluster case, the energy heating rate due to binary formation is

$$\dot{\mathcal{E}} \approx 100 n^2 G^5 m^6 \sigma_v^{-7} \approx 100 \Gamma_{\text{TBR}} m \sigma_v^2.$$

The factor hundred (which is a very approximate one) comes from the fact that every binary liberates in the cluster an energy of a few hundred times $k_B T$ through encounters with other stars before being ejected out of the cluster by a very energetic reaction (Cohn, Hut & Wise 1989). This non-negligible flux of escaping binaries is a well-known effect in cluster case (Meylan & Heggie 1997). But, flux of escaping binaries is probably negligible in the plasma case because the binding energy of the binary increases mainly due to radiative lifetime and not much due to collisions. The bottleneck between radiative and collisional decay occurs when its energy becomes lower than $\epsilon^* \approx k_B \times 500 \text{ K} \times (T_e / 1 \text{ K})^{-2/9} \times (n_e / 10^9 \text{ cm}^{-3})^{1/9}$ (Tkachev & Yakovlenko 2001b). Therefore in the plasma case, we do not have such simple results for $\dot{\mathcal{E}}$ because the radiative lifetime combined with the expansion plays a complex role, but we could estimate (Tkachev & Yakovlenko 2001b) (12)

$$\dot{\mathcal{E}} \approx 5.4 \left(\frac{n_e^0}{10^9 \text{ cm}^{-3}} \frac{t_{\text{PE}}}{3 \mu\text{s}} \right)^{-2/9} \Gamma_{\text{TBR}} k_B T_e. \quad (10)$$

The analogy holds because the process evolve as $\dot{\mathcal{E}} \propto \Gamma_{\text{TBR}} k_B T$ in both cases.

Finally, it might be useful, for further studies, to note that if the time-dependent Rydberg binding energy distribution is complex (see Robicheaux & Hanson 2003; Pohl et al. 2004a), we found that the results can be well fitted by a binding energy $\mathcal{E}_{\text{Ryd}} > 0$ distribution of the Rydberg states proportional to

$$e^{-\mathcal{E}_{\text{Ryd}} / (k_B T_{\text{Ryd}})} \left(\frac{\mathcal{E}_{\text{Ryd}}}{k_B T_{\text{Ryd}}} \right)^{-\alpha} \quad (11)$$

where α and T_{Ryd} are time-dependent parameters and α is always smaller than its equilibrium value of 5/2.

4 FOKKER-PLANCK EQUATION

4.1 Symmetry consideration

Rosenbluth, MacDonald & Judd (1957) already indicated that the Fokker-Planck equation is formally identical for electrons in plasma or for stars in stellar systems. We thus expect similar behaviour for our system or for an isolated cluster. Velocity anisotropy is generated by two-body relaxation in the outer part of a globular system (Lyman Spitzer 1987). We expect similar results here but, to simplify the discussion, we will use isotropic symmetry. Using Lynden-Bell's improved strong Jean's theorem for a spherically symmetric plasma system (Binney & Tremaine 1987) or assuming ergodicity in our ionic non-harmonic trapping potential (Surkov, Walraven & Shlyapnikov 1996), we could assume further on that the electronic phase density function $f(\vec{r}, \vec{v}, t)$ in the ultracold plasma depends only on energy $\mathcal{E} = q_e \phi + \frac{1}{2} m_e v_e^2$ where $\phi = \phi_e + \phi_i$ is the sum of the electronic and ionic potential. To be able to compare with stellar dynamics, it is more convenient to use energy per mass notation $E = \mathcal{E} / m_e = \Phi + \frac{1}{2} v_e^2$. The potential energy (per mass units) is $\Phi = \Phi_i + \Phi_e = q_e (\phi_i + \phi_e) / m_e$. Using the Poisson's equation, one gets

$$\begin{aligned} \Delta \Phi &= \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial \Phi}{\partial r} \right) = -\frac{q_e}{m_e} \frac{q_e n_e + q_i n_i}{\epsilon_0} = 4\pi G' (\rho_e + \tilde{\rho}_i) \\ \frac{\partial \Phi}{\partial r} &= \frac{G' M_r^{\text{tot}}}{r^2} = G' m_e \frac{N_e(r) - N_i(r)}{r^2} > 0 \\ \Phi(r) &= \Phi_\infty - 4\pi G' \left(\frac{1}{r} \int_0^r \rho^{\text{tot}}(r') r'^2 dr' + \int_r^\infty \rho^{\text{tot}}(r') r' dr' \right), \end{aligned} \quad (12)$$

where $\rho_e = m_e n_e$ is the mass density for electrons, $\rho^{\text{tot}} = \rho_e + \tilde{\rho}_i$ and $\tilde{\rho}_i = -m_e n_i$ is not the ionic mass density which is $\rho_i = m_i n_i$. The artificial 'total' mass is $M^{\text{tot}} = (M_e + \frac{q_i m_e}{q_e m_i} M_i) = m_e (N_e - N_i) = M_e + \tilde{M}_i < 0$. $N_e(r) = M_r / m_e$ (respectively $N_i(r)$) is the number of electrons (respectively ions) inside a sphere of radius r :

$$N_i(r) = \left[\text{Erf} \left(\sqrt{\frac{r^2}{2\sigma^2}} \right) - \sqrt{\frac{2r^2}{\pi\sigma^2}} e^{-\frac{r^2}{2\sigma^2}} \right] N_i. \quad (13)$$

Erf is the error function and

$$\Phi_i(r) = G m_e N_i \frac{\text{Erf} \left(\frac{r}{\sqrt{2}\sigma} \right)}{\sqrt{2}\sigma}. \quad (14)$$

The magnetic field (see coils in Fig. 1) is usually turned off during an experiment or its effect is small and can be neglected in first approximation. The Fokker-Planck equation for the electron space phase density distribution $f = f_e$, which can be seen as a series in $\ln \Lambda$ and is then no more valid in the strongly coupled case ($\Lambda < 1$), is (Mitchner & Kruger 1992; Delcroix & Bers 1994)

$$\begin{aligned} \frac{df}{dt} &= \sum_f \frac{\Gamma_f}{v^2} \frac{\partial}{\partial v} \left[f \frac{m_e}{m_f} \int_0^v f_i 4\pi v_i^2 dv_i \right. \\ &\quad \left. + \frac{v}{3} \frac{\partial f}{\partial v} \left(\frac{1}{v^2} \int_0^v v_i^2 f_i 4\pi v_i^2 dv_i + v \int_v^\infty \frac{1}{v_i} f_i 4\pi v_i^2 dv_i \right) \right] \end{aligned} \quad (15)$$

with

$$\frac{df}{dt} = \frac{\partial f}{\partial t} + \vec{v} \cdot \frac{\partial f}{\partial \vec{r}} - \frac{\partial \Phi}{\partial \vec{r}} \cdot \frac{\partial f}{\partial \vec{v}},$$

1232 *D. Comparat et al.*

where the subscript f indicates the type of field particles (electrons or ions). $\Gamma_f = 4\pi G^2 m_f^2 \ln \Lambda$ for clusters becomes $\Gamma_f = 4\pi G^2 m_e^2 \ln \Lambda = \frac{q_e^2 q_i^2}{4\pi m_e^2 \epsilon_0^2} \ln \Lambda = \Gamma$ in the plasma case which, in this case, is independent of the field particle mass.

If we use the so-called thermal bath (i.e. Maxwellian) approximation for the field distribution function f_f , one gets

$$\frac{df}{dt} = \sum_f \frac{\Gamma_f n_f}{v^2} \frac{\partial}{\partial v} \left[\tilde{G} \left(\frac{\sqrt{3}v}{\sqrt{2\langle v_f^2 \rangle}} \right) \left(f \frac{m_e}{m_f} + \frac{\langle v_f^2 \rangle}{v^2} \frac{v}{3} \frac{\partial f}{\partial v} \right) \right], \quad (16)$$

where $\tilde{G}(x) = \text{Erf}(x) - x \frac{d\text{Erf}}{dx}(x)$ tends to 1 when x tends to infinity and is proportional to x^3 for small x values. Using relations $T_i \ll T_e$ (or $\langle v_i^2 \rangle \ll \langle v_e^2 \rangle$) and $n_i \frac{m_e}{m_i} \ll n_e$, we found that in equation (16) the collisional ionic terms are negligible, in the field particles collisional part, compared to the electronical ones. Collisional ion effect then can be summarized mainly as $n_i \frac{m_e}{m_i}$ added to n_e and $\langle v_i^2 \rangle$ terms added to $v^2 = v_e^2$ in the electronical part. The arguments also hold for non-Maxwellian distributions and the key result is that we can always safely neglect ions in the collisional part. Finally, the (Landau)–Poisson–Fokker–Planck equation for electrons is then (Delcroix & Bers 1994; Mitchner & Kruger 1992)

$$\begin{aligned} \frac{\partial f}{\partial t} + \vec{v} \cdot \frac{\partial f}{\partial \vec{r}} - \frac{\partial \Phi}{\partial \vec{r}} \cdot \frac{\partial f}{\partial \vec{v}} &= \frac{4\pi\Gamma}{v^2} \frac{\partial}{\partial v} \left[f \int_0^v f' v'^2 dv' \right. \\ &\quad \left. + \frac{v}{3} \frac{\partial f}{\partial v} \left(\int_0^v f' \frac{v'^4}{v^2} dv' + \int_v^\infty f' v' dv' \right) \right], \end{aligned} \quad (17)$$

where the prime indicates that the quantity depends on the encounter field velocity v' , not on v . This equation contains only electrons and is thus completely identical (using equation 1) to the Fokker–Planck equation for a single mass stars system. The only change is within the potential Φ , which is usually slowly variable and is therefore not of major interest in the Fokker–Planck equation. Let us stress that the fact that there is no difference between the cluster and the plasma equation is one of the key points of the article.

4.2 The Virial theorem

There is fundamental uncertainties in the value of $\ln \Lambda$. Formula $\ln \Lambda = \ln(8\pi q_e^{-3} (\epsilon_0 k_B T_e)^{3/2} (n_e^0)^{-1/2})$ is only correct for homogeneous systems where $n_e(r) = n_e^0$. For a star system, a usual approximation is (Lyman Spitzer 1987) (2–14), $\Lambda \approx 2 \frac{1.5 r_h}{\tilde{r}_L}$ where r_h is the radius containing half mass of the system and $\tilde{r}_L = \frac{G m^2}{k_B T}$. Similar to what is done for stellar dynamics (Binney & Tremaine 1987), we define for plasma a (global) temperature $\tilde{T}_e$ by

$$2K_e \equiv 3k_B \tilde{T}_e N_e \equiv 2 \int d^3\vec{r} d^3\vec{v} \frac{1}{2} m_e \vec{v}^2 f(\vec{r}, \vec{v}, t),$$

where K_e is the total electron kinetic energy. By analogy, in the plasma case, we can write $\Lambda = 2 \frac{\tilde{r}_L}{r_L}$ with $r_L = -G' m_e^2 / k_B \tilde{T}_e$. The equations are then perfectly identical for both systems except for the presence of the Debye screening distance in the Coulomb logarithm for plasma but the radius limit distance for cluster. One usual average value, used in single mass globular clusters, is to evaluate r_h using the potential energy

$$W^{\text{tot}} = \frac{1}{2} \int_0^\infty 4\pi r^2 \rho^{\text{tot}}(r) \Phi(r) dr \approx -0.4 \frac{GM^2}{r_h}, \quad (18)$$

where the constant 0.4 is a reasonable approximation for most systems (0.44 for Gaussian density distribution where $r_h \approx 1.54\sigma$)

(Lyman Spitzer 1987). The static Virial theorem $2K = -W^{\text{tot}}$ leads to $\Lambda \approx 0.4 N$ where N is the number of stars in the cluster. The total energy of the system is then $E = K + W^{\text{tot}} = -K = -3k_B \tilde{T}_e N/2$, which indicates that the system possesses a negative specific heat. In the plasma case, the Virial theorem (Binney & Tremaine 1987) is

$$\begin{aligned} 2K_e &= \int_0^\infty \rho_e(r) r \frac{\partial(\Phi^e + \Phi^i)}{\partial r} 4\pi r^2 dr \\ &= -(W_{ee} + \tilde{W}_{ei}), \end{aligned} \quad (19)$$

where $\tilde{W}_{ei} = \int_0^\infty \rho_e(r) r \frac{\partial \Phi^i}{\partial r} 4\pi r^2 dr$ can be seen as an external ‘potential’ energy (due to the ions) and $W_{ee} = \frac{1}{2} \int \rho_e \Phi_e$ is the internal potential energy between electrons. A naive extrapolation, based on quasi-neutrality approximation ($n_e - n_i$ constant), of the cluster case would lead, in the plasma case, to

$$2K_e = 3k_B \tilde{T}_e N_e \approx 0.4 \frac{G' M^{\text{tot}} M_e}{r_h} \quad (20)$$

$$\tilde{T}_e(K) \approx 1.6(N_i - N_e)/\sigma(\mu\text{m}), \quad (21)$$

which have to be compared to formulae (18) and (6). Finally, using this naive evaluation of the Virial theorem we could extend for the plasma the formula $\Lambda \approx 0.4 N$ valid for clusters in

$$\begin{aligned} \Lambda &= 0.4(N_i - N_e) \frac{2\lambda_D}{3r_h} \\ &\approx 0.1(N_i - N_e) \sqrt{\frac{N_i - N_e}{N_e}}, \end{aligned} \quad (22)$$

where we have used formula (21) and the Gaussian approximation $\lambda_D \approx \sqrt{(2\pi\sigma^2)^{3/2} \epsilon_0 k_B \tilde{T}_e / (q_e^2 N_e)}$ to derive the final formula. We will see later that electrons are not in a Gaussian distribution and that these naive formulae have to be corrected. Nevertheless, they indicate three very important results. First, the final temperature $\tilde{T}_e$ is on the same order to the one expected from the laser wavelength T_e^γ . Secondly, the ions minus electron number, divided by the size, is directly related to the temperature. Thirdly, the coupled regime ($\Lambda < 1$) can then be reached only for almost pure neutral plasma with numerous electrons.

5 FLUID AND GAS MODELS

5.1 Gaseous equations

One of the easiest way towards an approximate solution of the electron Fokker–Planck equation (17) is to use the velocity moment equation. Here again, to avoid confusion and to be able to use equations derived for star dynamics, we define the mass density distribution $f_m = m_e f$. It is simple to use dimensionless equations where $r = r_0 r^*$, $t = t_0 t^*$, $\rho(r, t) = \rho_0 \rho^*(r^*, t^*)$, $M_r(r, t) = M_0 M^*(r^*, t^*)$, ... or the self-similar form where $r = r_c(t) r_*$, $\rho(r, t) = \rho_c(t) \rho_*(r_*)$, ... (Louis & Spurzem 1991). We then define the mass density $\rho = \rho_e = m_e n_e = \langle 0 \rangle = \int d^3\vec{v} f_m(\vec{v}) = \int_0^{+\infty} 4\pi v^2 f_m(v) dv$ related to $M_r = m_e N_e(r)$ the mass contained in a sphere of radius r . We also define the velocity of mass transport u by $\rho u = \langle 1 \rangle = \int v_r f_m(\vec{v}) d^3\vec{v}$, where v_r is the radial velocity, the kinetic energy density k_E by $2k_E = \langle 2 \rangle = \int_0^{+\infty} 4\pi v^2 v^2 f_m(v) dv$. This also defines the pressure p by $3p + \rho u^2 = 2k_E$, which is linked to the temperature T_e , the one-dimensional velocity dispersion σ_v (isothermal sound speed) through $p = n_e k_B T_e = \rho \sigma_v^2$.

The moment equations are the following:

(i) The mass integration

$$\frac{\partial M_r}{\partial r} = 4\pi r^2 \rho, \quad (23)$$

which can be written as

$$\frac{\partial \ln M^*}{\partial \ln r^*} = r^{*2} \rho^* \quad (24)$$

for the choice $M_0 = 4\pi r_0^3 \rho_0$.

(ii) The continuity equation (with $u_0 = r_0/t_0$)

$$\begin{aligned} 0 &= \frac{\partial \rho}{\partial t} + \text{div}(\rho u) = \frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{1}{r^2} \frac{\partial r^2 \rho u}{\partial r} \\ 0 &= \frac{\partial \rho^*}{\partial t^*} + \frac{u^*}{r^*} \frac{\partial \ln \rho^*}{\partial \ln r^*} + \frac{\partial u^*/r^*}{\partial \ln r^*} + 3 \frac{u^*}{r^*}. \end{aligned} \quad (25)$$

(iii) The hydrodynamical (Euler) equation

$$0 = \frac{Du}{Dt} + \frac{1}{\rho} \frac{\partial p}{\partial r} + \frac{\partial \Phi}{\partial r}, \quad (26)$$

where $\frac{D}{Dt} = \frac{\partial}{\partial t} + u \frac{\partial}{\partial r}$ is the co-moving (Lagrangian or convective) derivative following the mass evolution $\frac{DM_r}{Dt} = 0$.

The third momentum equation is

(iv) The kinetic energy transport equation

$$\frac{\partial k_E}{\partial t} + \frac{1}{2} \text{div}(3) + \rho u \frac{\partial \Phi}{\partial r} = 0. \quad (27)$$

The fact that all these equations do not contain right-hand side collisional terms is a verification that the Fokker–Planck equation conserves the mass and the energy. Therefore, there is no difference between the use of the collisionless Boltzmann (also called Vlasov) equation and the use of the collisional Fokker–Planck equation at this stage.

5.2 Self-similar collisionless quasi-neutral plasma evolution

The main goal of this paper is electron evolution, but similar gaseous equations hold for the ions in the plasma. In the ion case, the pressure is negligible ($T_i \approx 0$) and the system of gaseous equation is closed with equation (26)

$$0 = \frac{Du_i}{Dt} + \frac{1}{m_i n_i} \frac{\partial p_i}{\partial r} + \frac{q_i}{m_i} \frac{\partial \Phi}{\partial r} \approx \frac{Du_i}{Dt} + \frac{q_i m_e}{q_e m_i} \frac{\partial \Phi}{\partial r} = 0. \quad (28)$$

The quasi-neutrality equations: $q_i n_i + q_e n_e \approx 0$ and $q_i \frac{Du_i}{Dt} + q_e \frac{Du_e}{Dt} \approx 0$ can be used, with the Euler equations for ions and electrons, to lead to a useful relation between the potential and the pressure

$$\frac{\partial \Phi}{\partial r} \approx \frac{\frac{q_i}{m_i} \frac{\partial p_i}{\partial r} + \frac{q_e}{m_e} \frac{\partial p_e}{\partial r}}{\frac{q_e^2 n_e}{m_e} + \frac{q_i^2 n_i}{m_i}}. \quad (29)$$

Furthermore, we can simplify the solution by assuming Maxwell–Boltzmann electron distribution f . We then found

$$-\frac{\partial \Phi}{\partial r}(r, t) \approx r \frac{k_B T_e(t)}{m_i \sigma(t)}.$$

The dimensionless equations are very similar to the self-similar ones used in clusters physics (Louis & Spurzem 1991). The self-similar ionic evolution is easy to determine and verify (Robicheaux & Hanson 2002, 2003):

$$u_i(r, t) \approx tr \frac{v_0^2 \sigma_0^2}{1 + \frac{v_0^2}{\sigma_0^2} t^2} \quad (30)$$

Star clusters dynamics in a laboratory 1233

for the ion mass transport velocity, which is merely equation (7). Dorozhkina & Semenov (1998) have demonstrated that this result is in fact more general. Using Vlasov equations for f_e and f_i , assuming a quadratic form for the potential, a self-similar homological evolution, quasi-neutrality and equation (29) they also found equation (30). In fact, this result has been recently improved. The most general form for a self-similar quasi-neutral collisionless plasma expansion into vacuum, without any other assumption, is (Kovalev & Bychenkov 2003)

$$f_i = f_i(I_i); \quad I_i = \frac{\vec{v}^2 + \Omega^2(\vec{r} - \vec{v}t)^2}{2} + \frac{q_i}{m_i} \phi \left(\frac{\vec{r}}{\sqrt{1 + \Omega^2 t^2}} \right). \quad (31)$$

Using $\Omega = v_0^2/\sigma_0^2$ we recover equations (30) and (7), which are then shown to be the most general self-similar solutions for a quasi-neutral plasma.

5.3 Temperature evolution

One important question concerns the temperature evolution in this self-similar solution. This might be done using energy conservation equation. Evolution of the potential density energy (see equation 18) $w^{\text{tot}} = -\frac{1}{8\pi G} (\frac{\partial \Phi}{\partial r})^2(r)$ is derived from the time derivative of the square of equation (12) (Ampere's law):

$$\frac{\partial w^{\text{tot}}}{\partial t} = \frac{\partial \Phi}{\partial r} (\rho_e u_e + \rho_i u_i),$$

where the continuity equations have been used. When added to equation (27) and spatially integrated, we then derived the energy conservation laws: $K_E + K_i + W^{\text{tot}}$ is conserved. For our systems with $T_i \ll T_e$, $m_e \ll m_i$ and $N_i - N_e \ll N_i$ the energy conservation leads to

$$\begin{aligned} \frac{3}{2} k_B \bar{T}_e(0) &= \frac{3}{2} k_B \bar{T}_e(t) + \frac{1}{2} m_i \int_0^\infty u_i^2(r, t) n_i(r, t) 4\pi r^2 dr \\ &= \frac{3}{2} k_B \bar{T}_e(t) + \frac{3}{2} m_i v_0^2 \left(\frac{t v_0}{\sigma(t)} \right)^2, \end{aligned}$$

where we did not take into account the ionic correlation energy (Pohl, Pattard & Rost 2004a,c) or the heating due to the TBR (see Robicheaux & Hanson 2003 and equation 10). We see that during the plasma expansion, electronic adiabatic cooling occurs and the ionic distribution function becomes a Schwarzschild–Boltzmann one given by equation (31). Similar cooling occurs for the ions and might lead to such a low ionic temperature, then the degree of order in the system might be very high (Pohl et al. 2005). However, the expansion of the plasma becomes faster than the relaxation of correlations, and the system does not reach ionic thermodynamic equilibrium anymore.

5.4 Analytic ion spike evolution

The collisionless theory, we have just developed, was based on several assumptions and has the usual drawback of all self-similar solutions predicting unphysical results as, for instance, a velocity increasing without limit for r going to infinity. Furthermore, the theory is only valid before the ionic spike appears.

We know from Monte Carlo (Robicheaux & Hanson 2003) and molecular (Pohl et al. 2004a) simulations that the quasi-neutrality is violated and that the ionic front shows a density spike after a few microseconds. Some theoretical predictions (Pohl et al. 2004a) are that the ionic spike, where the quasi-neutrality is violated, disappears. This result has to be related with the work on non-ultracold

plasma where it can be shown that the ion front moved at a velocity varying logarithmically in time (Mora 2003).

Following Kaplan, Dubetsky & Shkolnikov (2003) who studied a non-neutral plasma, we would like, in this section, to describe the r -radius (with $N_i(r)$ ions) ion shell evolution. We assume that along an r -shell trajectory $r(r_i, t)$ starting at the initial point r_i , the total number of ions in the r -radius sphere remains unchanged: $N_i(r(r_i, t)) = N_i(r_i)$. The ion density is then given by $n_i(r, t) = n_i(r_i, t = 0) \frac{\partial r_i}{\partial r} \frac{t_i^2}{r^2}$. The condition that no particle trajectories cross each other is violated when the shock formation appears creating an infinite local ionic density. As a natural expansion of the Kaplan et al. (2003) work, we will assume $N_e(r(r_i, t)) = N_e(r_i)$. This might be seen as an extension of the quasi-neutrality condition: $N_e(r) \approx N_i(r)$. The ion Newton equation is

$$m_i \frac{\partial^2 r}{\partial t^2} = \frac{q_i^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{N_i(r_i) - N_e(r_i)}{r^2}$$

integrating $\frac{dr}{dt}$ times. This equation leads to the conservation of energy equation and to the analytical implicit solution for $r(r_i, t)$:

$$\frac{t}{r_i^{3/2}} \sqrt{2 \frac{q_i^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{N_i(r_i) - N_e(r_i)}{m_i}} = \sqrt{\frac{r}{r_i} \left(\frac{r}{r_i} - 1 \right)} + \ln \left(\sqrt{\frac{r}{r_i}} + \sqrt{\frac{r}{r_i} - 1} \right). \quad (32)$$

A typical result with Gaussian $\sigma \approx 250 \mu\text{m}$ approximation for n_i and n_e and with $N_i - N_e = 20\,000$ is given in Fig. 3.

The typical ‘Coulomb Explosion’ time-scale is then $t_{\text{CE}} = \sqrt{4\pi\epsilon_0/q_e^2} \sqrt{m_i/n_i^0 - n_e^0} \approx 3.5 \mu\text{s}$ where $n_i^0 = n(r_i = 0, t = 0)$. At early time $t \ll t_{\text{CE}}$ the evolution equation (32) leads to an evolution given by

$$\frac{r}{r_i} = 1 + t^2 \frac{v_0^2}{r_i^2} \frac{3}{4} \sqrt{\frac{\pi\sigma}{2r_i}} \frac{N_i(r_i) - N_e(r_i)}{N_*},$$

where we have used equation (4). With equation (5), and with the Gaussian approximation (13), this might be written as (for $r = \sigma$)

$$\frac{\sigma}{\sigma_0} \approx 1 + 0.28 \left(\frac{N_i}{N_*} \right)^{0.5} t^2 \frac{v_0^2}{\sigma_0^2}, \quad (33)$$

which is, with $(\frac{N_i}{N_*})^{0.5}$ on the order of 10, very similar to equation (7) for early times. Even if the hypothesis $N_e(r(r_i, t)) = N_e(r_i)$ is probably worse than the one for ions, the final results should not be too badly affected by this assumption. Indeed, the only requirement

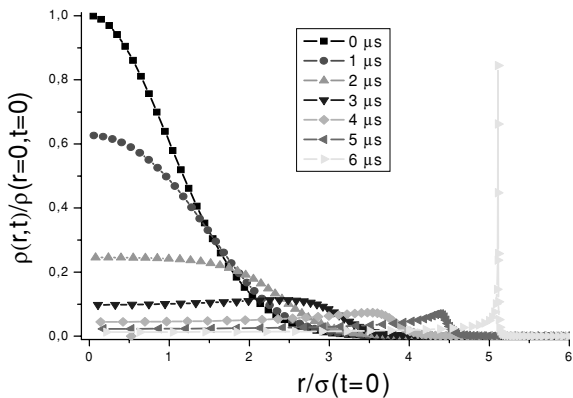


Figure 3. Ion-density evolution based on equation (32) for $\sigma \approx 250 \mu\text{m}$ and $N_i - N_e = 20\,000$.

for equation (33) is the time independence of $N_i(\sigma(t)) - N_e(\sigma(t))$, which is probably a better assumption.

5.5 Closure relations for the electrons

Let us go back to the electron evolution to find the time-dependent evolution equations for the electron distribution. According to the ambipolar diffusion and due to the quasi-neutral plasma behaviour we have (especially in the core region) $u \approx u_i$ so that (in absolute value)

$$\frac{Du}{Dt} \approx \frac{Du_i}{Dt} \approx \frac{m_e}{m_i} \frac{\partial \Phi}{\partial r} \ll \frac{1}{\rho} \frac{\partial p}{\partial r}.$$

Therefore, we need to go at least one step further to close the moment equations for the electrons. For our isotropic quasi-stationary evolution $3p = \langle 2 \rangle$, we define (see Louis & Spurzem 1991) the velocity energy transport v by $5pv = \langle 3 \rangle = \int v_r v^2 f_m(\vec{v}) d^3\vec{v}$ which is linked to the heat flux (different from the energy flux across a constant radius sphere) $F = 5p(v - u)/3 = L/(4\pi r^2)$ where L is the luminosity. The hydrodynamical equation becomes with $M_i^* = m_e N_i / M_0$:

$$\frac{\partial \ln p^*}{\partial \ln r^*} - \lambda \frac{\rho^*}{p^*} \frac{M^* - M_i^*}{r^*} = 0, \quad (34)$$

where $\lambda = N_e/(N_i - N_e)$ and we have assumed $p_0 = (-G')(N_i - N_e) m_e \rho_0 / r_0 = \rho_0 \sigma_v^2$. $\lambda = -1$ is the case without any ions and, in this case, equations are identical to the cluster case.

The energy transport equation becomes

$$\begin{aligned} 0 &= \frac{\partial p}{\partial t} + \frac{5}{3} \text{div}(pv) + \frac{2}{3} u \rho \frac{\partial \Phi}{\partial r} \\ &= \frac{\partial \ln p^*}{\partial t^*} + \frac{5v^*}{3r^*} \frac{\partial \ln p^*}{\partial \ln r^*} + \frac{5}{3} \frac{\partial v^*/r^*}{\partial \ln r^*} \\ &\quad + 5 \frac{v^*}{r^*} - \frac{2}{3} \lambda \frac{u^* \rho^*}{p^*} \frac{M^* - M_i^*}{r^{*2}}, \end{aligned} \quad (35)$$

which can be written in a first thermodynamical law form:

$$\frac{\partial L}{\partial r} = -4\pi r^2 \rho \left\{ \frac{D}{Dt} \frac{3k_B T_e}{2m} + p \frac{D}{Dt} \frac{1}{\rho} \right\}. \quad (36)$$

The most delicate assumption is the form of the closure relation. A simple one is the thermal conductivity assumption given by (Lynden-Bell & Eggleton 1980; Louis & Spurzem 1991)

the thermal conductivity closure relation

$$F = -K \frac{\partial T}{\partial r} = -\Lambda_c \frac{\partial \sigma_v^2}{\partial r}, \quad (37)$$

where $K = k_B \Lambda_c / m_e$ is the thermal conductivity coefficient. The theory of heat flux in gases indicates that Λ_c should be on the order of $\rho l^2 / t_{\text{col}}$. Where l is the mean free path and t_{col} is the time between collisions better to be taken as the relaxation time t_e (with velocity σ_v) see Lyman Spitzer (1987) and Lynden-Bell & Eggleton (1980) for the cluster case and Majumdar, Adhikari & Lahiri (1973) for the plasma case. When Λ is not too small, the mean free path $l \approx 3t_e \sigma_v$ (typically 2 mm) is comparable or larger than the size of the sample σ . This indicates that the electrons make several orbits before colliding with neighbours. Hence, it is better to use for l a typical radial distance l_r between encounters given, for instance, when the mean velocity σ_v is the circular velocity $l_r \sqrt{4\pi(-G')\rho/3}$ defined for local homogeneous system. Using dimensionless values, we can see that $t_0 = t_{e0} = 9\sigma_{v0}^3 / (16\sqrt{\pi} G^2 m_e \rho^0 \ln \Lambda)$ and $l_0^2 = l_{r0}^2 =$

$\frac{3\sigma_0^2}{4\pi(-G')\rho_0} = \frac{3}{\lambda}r_0^2$. This leads to the formula

$$\Lambda_c \propto \frac{\rho_r^2}{t_e} = \frac{4}{9\sqrt{\pi}}3(-G')m_e \frac{\rho}{\sigma_v} \ln \Lambda, \quad (38)$$

where the dimensionless proportionality factor should be of the order of unity (nearly $0.4 = \frac{4}{9\sqrt{\pi}}C$ in Louis (1990)).

The phenomenological heat flux formula (37) is based on the assumption $l > \sigma$, which is not always verified, especially for small Coulomb logarithm value. Furthermore, the fact that we use only local variable for the thermal conductivity equation (with $v_0 = r_0/t_0$),

$$\frac{v^*}{r^*} - \frac{u^*}{r^*} + \frac{9}{5\lambda} \frac{p^{*-1/2} \rho^{*1/2}}{r^{*2}} \frac{\partial(\ln p^* - \ln \rho^*)}{\partial \ln r^*} = 0, \quad (39)$$

might not be the best solution (see Louis & Spurzem 1991). It is also possible to use the higher momentum equations, calculated by Larson (1970) and by Louis (1990), namely:

$$\frac{\partial \kappa}{\partial r} + p \frac{\partial \Phi}{\partial r} = 0, \quad (40)$$

where $15\kappa = \langle 4 \rangle = \int_0^{+\infty} 4\pi v^6 f_m(v) dv$ and

$$\frac{\partial \kappa}{\partial t} + \frac{7}{3} \text{div}(\kappa(2v - u)) + \frac{2}{3} p \frac{\partial \Phi}{\partial r} = -\frac{3}{5t_e}(\kappa - p^2/\rho). \quad (41)$$

We have shown that the equations are almost identical in cluster and plasma systems with an extra λ factor in the plasma case. We will not fully solve the equation here but the classical Henyey, Forbes & Gould (1964)–Newton–Raphson implicit difference relaxation method is probably well adapted. In fact we will not resolve the gaseous equation here because the original Fokker–Planck equation should give better results. Let us note that using Abel’s transform of $\rho(\Phi(r)) = 2^{5/2}\pi \int_{\Phi(r)}^{\infty} f_m(E)\sqrt{E - \Phi(r)} dE$, it is possible to recover the phase-space density distribution function:

$$f_m(E) = \frac{1}{\sqrt{8\pi^2}} \frac{\partial}{\partial E} \int_E^{+\infty} \frac{\partial \rho / \partial \Phi}{\sqrt{\Phi - E}} d\Phi.$$

This is the well-known Eddington formula (1916) (Binney & Tremaine 1987).

The simplest solution we might think of is a self-similar one for electrons as well as for ions, which in fact leads to a stationary solution. Gravitating systems never form static homogeneous equilibrium. However, plasmas contain both positive and negative charges, so they can form static equilibrium. The time-scale for ion expansion is of the order of magnitude bigger than the electron relaxation time towards equilibrium. Thus, electron will reach (quasi-)equilibrium on a nanosecond time-scale where the ionic motion could be considered as frozen. We might then first look for static equilibrium distributions. Unfortunately, equation (36) leads to L constant and equations (37) and (38) to $L(r=0) = 0$ and σ_v constant. A stationary solution has no heat flux and is isothermal with a density distribution given by

$$\frac{d}{dr} \left(r^2 \frac{d \ln \rho}{dr} \right) = -\frac{G'4\pi}{\sigma_v^2} r^2 (\rho - \tilde{\rho}_i).$$

This leads to a density distribution with an r^{-2} power law at large distance leading to an infinite mass. In fact, such distribution presents an attractive potential for electrons up to a point r_t where the ion and electron density become equal and electrons evaporate leading to a repulsive potential for $r > r_t$. We already know from Monte Carlo simulations (Robicheaux & Hanson 2003) that this isothermal solution is correct for the core system, but the finite mass ‘halo’ can only tend to be isothermal.

Star clusters dynamics in a laboratory 1235

Before going back to the Fokker–Planck equation, we can mention that it is possible to take into account the three-body collisions through the heating term (10) in the kinetic energy transport equation. We should also use equations (9) and (11) to give a full picture of free and bound electron distribution.

6 ORBIT AVERAGE OF THE FOKKER–PLANCK EQUATION

6.1 Truncated assumption

If the system is isolated, the maximum energy above which the particles are extracted from the sample is $E_t = \Phi(r = \infty)$. But, the system can be truncated at a given (apocentre) distance r_t and the truncated energy is then $E_t = \Phi(r = r_t)$. In an isotropic Fokker–Planck equation, one has no other choice but to use the energy as a criterion for escape. For cluster physics, the truncation in energy is a good approximation even if it is known not to be a sufficient condition to accurately describe the physics (Kim & Oh 1999). For cluster, the differential forces, produced by the galaxy, result in two saddle points (distance from the cluster centre which is then proportional to the cube of the mass) through which stars can pass over into the galactical field. For plasma physics under magnetic field, a velocity truncation is probably another good choice due to the velocity-dependent force. But, the experiment can use a homogeneous electric field (see Fig. 1) $F\vec{e}_y$ along the y axis. In this case, the truncation arise only from a single saddle point at $y_0 = r_t$ abscissa along the y -axis where

$$F = -\frac{\partial \phi}{\partial r}(y_0) = -\frac{m_e}{q_e} \frac{\partial \Phi}{\partial r}(y_0). \quad (42)$$

Therefore, the truncation is not at all spherically symmetric and the hypothesis is probably worse for plasma than for tidally limited cluster. Nevertheless, under ergodic assumption, the hypothesis of truncation in energy might be a good one and will be used hereafter. There is always a stray electric or magnetic field in the experiment. The system is therefore never perfectly isolated and cannot extend to infinity without touching some electric grids (see Fig. 1). Furthermore, an external electric field F is sometimes constantly applied (as done by Kulin et al. 2000) to be able to accelerate electrons (or ions) towards a detector and to be able to monitor the behaviour of the sample. In such experimental conditions, equations (42), (12) and (13) imply

$$\begin{aligned} F &\approx G' \frac{m_e^2}{q_e} \frac{N_e - N_i}{r_t^2} \left(1 - \sqrt{\frac{2r_t^2}{\pi\sigma_v^2}} e^{-\frac{r_t^2}{2\sigma_v^2}} \right) \\ &\approx G' \frac{m_e^2}{q_e} \frac{N_e - N_i}{r_t^2} = \frac{q_e}{4\pi\epsilon_0} \frac{N_i - N_e}{r_t^2}. \end{aligned} \quad (43)$$

This experimental electric field can be experimentally used to extract electron trapped in an ionic cloud in order to simulate the tidal escape from globular cluster under external galaxy gravitational attraction. Typical values, before the expansion, are $r_t \approx 1.5 \text{ mm} \approx 6 \sigma$ for $F = 100 \text{ mV cm}^{-1}$. We can see here that r_t is proportional to the square of the mass and not to the cube of the mass as in the star cluster case under tidal effect of the host galaxy (Lyman Spitzer 1987). Assuming that the system reacts on the external field, we will neglect its role inside the system and simply summarize it by the E_t value. This assumption is better for a small external field. In our experiment, the magnetic field gradient ($B' = 1.5 \text{ mT cm}^{-1}$) is not turned off and it ejects electrons for $r > r_t = 12 \sigma$ (value estimated for

1236 *D. Comparat et al.*

$T_e \approx 100$ K). This value is similar (see equation 43) to the radius found for electric field on the order of $F = 2 \text{ mV cm}^{-1}$, which is indeed a typical value for uncontrolled straight electric field. As already discussed, the mean free path is usually large compared to the sample size, or similarly the orbital time-scale at r_i is negligible compared with the relaxation time. Thus, we will assume that the electrons with energy $E > E_i$ would be lost almost instantaneously. We know this criterion is strongly violated in the star cluster case (Takahashi & Zwart 1998), but this is nevertheless a reasonable choice, yielding to $f(E) = 0$ for $E > E_i$ and by continuity

$$f(E_i) = 0. \quad (44)$$

Here, the Coulomb (or Newton) interaction acts at a very long distance, and encounters are ‘gentle’ leading to a small continuous variation in energy during collisions and then to the zero probability presence at the border. This is opposite to the conclusion obtained in ultracold atomic system interacting through van der Waals atomic interaction potential. Indeed, the van der Waals interaction is at such a short range that only the strong collisions with single encounters are involved. Consequently, in the route towards quantum degenerate dilute ultracold atomic Bose–Einstein condensates, the evaporation (it is more an ejection process but this ‘atomic’ terminology is well known) process leads to truncated Maxwellian distribution with non-zero probability presence at the truncated border. But, despite the differences, similar strategies are used to simulate the star system and the atomic system behaviours: superstar strategies in cluster code and macro-atom strategies used in evaporative cooling models of ultracold neutral atomic cloud in route to Bose–Einstein condensation (BEC) (Berg-Sørensen 1997; Pinke et al. 1998; Tol, Hogervorst & Vassen 2004).

6.2 Orbit averaging

Using $v = \sqrt{2(E - \Phi)}$, we define the volume τ of phase-space with energy less than E and the isotropic average q of the radial action by

$$q(E, t) = \frac{1}{3} \int_0^{\Phi^{-1}(E)} (2(E - \Phi(r, t)))^{3/2} r^2 dr = \frac{1}{16\pi^2} \tau(E, t). \quad (45)$$

For our quasi-Gaussian system, we found, from equation (14), that a good approximation (within 10 per cent accuracy) for q is

$$q(E) \propto (E_i - E)(E - E_0)^3. \quad (46)$$

This is not surprising because we are between a square potential, where $\Phi = 0$ and $q \propto E^{3/2}$, and a quadratic potential, where $\Phi = \Phi(0) + \frac{1}{2}\omega^2 r^2$ and $\tau = \frac{4\pi^3}{3}(E - E_0)^3$. We will also sometimes use $\frac{\partial q}{\partial E} = \int_0^{\Phi^{-1}(E)} r^2 \sqrt{2(E - \Phi(r, t))} dr$, which is the isotropic average of the period and is $1/(16\pi^2)$ times the classical microcanonical phase-space density function. Indeed, on the contrary to the ultracold atomic system case, the plasma is far from quantum degeneracy – the Fermi temperature is of the order of tens of microKelvins, which is the order of magnitude below the plasma temperature – so we can use the classical density phase distribution function which is the same as the quantum one but multiplied by the fundamental phase volume h^6 (h is the Planck’s constant).

Multiplying the Fokker–Planck equation (17) by the delta function $\delta(E - (v^2/2 + \Phi))$ and integrating over the phase-space lead to the orbital average Fokker–Planck equation (Hénon 1961; Lyman

Spitzer 1987)

$$\begin{aligned} \frac{\partial q}{\partial E} \frac{\partial f}{\partial t} - \frac{\partial q}{\partial t} \frac{\partial f}{\partial E} &= 4\pi\Gamma \frac{\partial}{\partial E} \left[f \int_{E_0}^E f' \frac{\partial q'}{\partial E'} dE' \right. \\ &\quad \left. + \frac{\partial f}{\partial E} \left\{ \int_{E_0}^E f' q' dE' + q \int_E^{E_i} f' dE' \right\} \right] \end{aligned} \quad (47)$$

$$\left(\frac{\partial f}{\partial t} \right)_\tau = \left(\frac{\partial \Pi}{\partial \tau} \right)_i, \quad (48)$$

where $E_0 = \Phi(0, t)$. Equation (48) is merely equation (47) divided by $\partial \tau / \partial E$ (Inagaki & Lynden-Bell 1990). The flux through phase-space Π can be written in another form:

$$\Pi = 4\pi\Gamma \int_{E_0}^{E_i} f f' \text{Min}(\tau, \tau') \left(\frac{\partial \ln(f)}{\partial E} - \frac{\partial \ln(f')}{\partial E'} \right) dE',$$

which defines the generalized concept of temperature $T_e^G(E)$ by

$$-\frac{1}{m_e} \frac{\partial \ln f}{\partial E} = \frac{1}{k_B T_e^G(E)}.$$

The formulae can be checked with the use of a square potential ($\Phi = 0$ for $r < r_i$). We have, in this case as in free space, $q \propto E^{3/2}$, $E = v^2/2$ and equation (47) recover exactly the Fokker–Planck equation (17).

Equation (47) is called the orbit average Fokker–Planck equation and holds when the relaxation time is longer than the crossing time or the orbital time. As previously mentioned, we can experimentally violate this condition (for very cold electrons or very large and dense sample) but usually this assumption holds. Thus, the distribution function will evolve slowly compared to the orbital period of each electron. In this slowly time variable potential (orbit-averaged assumption)

$$dE/dt \approx \int dr r^2 v (\partial \Phi / \partial t) / \int dr r^2 v = \frac{\partial q / \partial t}{\partial q / \partial E}$$

is the mean value of $\frac{\partial \Phi}{\partial t}$, hence q and τ are adiabatic invariant: $\frac{dq}{dt} = \frac{d\tau}{dt} = 0$ and therefore $f(E, t) = f(\tau)$ (Binney & Tremaine 1987; Inagaki & Lynden-Bell 1990).

Methods of calculation, developed for star clusters, can then be very easily adapted. For instance, the Chang and Cooper finite-differencing scheme used in Cohn’s method (Cohn 1979) is perfectly adapted. Indeed, the first step of the method is to advance f in time Φ being held fixed. The Fokker–Planck equations are identical for both systems, so no change has to be done in this code step going from star system to ultracold plasma system. The second, easier step is to advance Φ by solving Poisson’s equation with f being fixed as a function of the phase volume adiabatic invariant τ . Other two-step methods can also be used as the one developed by Takahashi (1993) from variational principle. We hope that the simplicity of this project would lead to a rapid use of Fokker–Planck code in ultracold plasma physics.

6.3 Evaporation and ejection

Electrons can escape from the plasma by *ejection* (through strong collisions with a single encounters) or by *evaporation* (through a series of weaker distant encounters) (Binney & Tremaine 1987).

The evaporation rate has a long history in star dynamics (e.g. Johnstone 1993). Let us first formulate, for our plasma system, the Hénon (1960) paradox known in clusters physics: in the case of

isolated system ($r_i = \infty$) an electron with energy $E \approx E_i$ spends most of its time far from the centre and suffers very few encounters. Its change energy rate goes to zero when E approaches E_i so the electron never escapes in this diffusion type (Fokker–Planck) picture. Thus, the orbit average Fokker–Planck equation, with the same relaxation time for all electrons, does not hold for outermost ‘halo’ electrons (Spitzer & Shapiro 1972). The fact that halo electrons play a role has been in fact experimentally sketched using RF heating of electrons. Indeed, Li et al. (2004) used RF electric field to ‘shake’ the trapped electrons and speed up the ionization of Rydberg atoms inside the plasma. They have noted that the process is less efficient for large RF amplitude due to the fact the forced RF electron oscillations drive electrons outside the cloud from the centre reducing the amount of time the electron could collide with Rydberg atoms. This experiment indicates that when electrons are in the halo, they do not collide that much.

From Hénon’s paradox, we can say that the electron can escape from an isolated system only from *ejection* due to strong single close encounters. The rate has been calculated by Hénon (1960) in the cluster case. By analogy using equation (1) we could then assume

$$\frac{dN_e}{dt} = \frac{2}{3} (16G'm_e^2\pi^2)^2 \int_0^\infty r^2 dr \times \iint dE dE' \frac{(E + E' - \Phi - E_i)^{3/2}}{(E_i - E)^2} f(E)f(E'), \quad (49)$$

where the integration holds for $E' \geq E_0$, $E_i \geq E \geq E_0$ and $E + E' \geq \Phi + E_i$. Performing the integration over E' leads to the loss rate of electrons with energy E .

The case of a truncated system ($r_i < \infty$) is different and the evaporation process is a diffusion in velocity space process well described by the Fokker–Planck equation. The number, $N(E)$, of electrons with energy less than E is

$$N(E, t) = \int_{E_0(t)}^E f(E', t) \frac{\partial \tau}{\partial E}(E', t) dE'. \quad (50)$$

Time derivative straightforwardly leads to

$$\frac{\partial N}{\partial t}(E) = f(\tilde{E}) \frac{dE}{dt} \frac{\partial \tau}{\partial E}(E) + \int_{E_0}^E \frac{\partial \Pi}{\partial E}(E') dE' + f(E) \frac{\partial \tau}{\partial t}(E).$$

When $E = E_i$ (or ∞), $N = N_e$ and the first (and third) ‘spilling’ terms are null (see equation 44). The second one can easily be calculated using the general form

$$f(E, t) = f(E, t) Y(E_i(t) - E),$$

where Y is the Heaviside function. With $\frac{dY}{dE}(E_i - E) = -\delta(E_i - E)$, we found that

$$\frac{dN_e}{dt} = -12\pi\Gamma \frac{\partial f}{\partial E}(E_i) \int_{E_0}^{E_i} f \tau, \quad (51)$$

which is similar to the formula given by Wiyanto, Kato & Inagaki (1985) but for an unknown reason with a different numerical factor ($3\Gamma/(32\pi)$ in their case).

To conclude, we could note that the evaporation process can also be taken into account by the gaseous model. Following Heggie et al. (1998), we can, for instance, use an additional equation based on the velocity escape at radius r law

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} \propto \frac{r}{\sqrt{E_i - \Phi(r)}} \rho.$$

The flux conservation requires that the density distribution of the escape electrons should follow $\rho_{\text{esc}} \propto r^{-2}$ (Spitzer & Shapiro 1972).

Star clusters dynamics in a laboratory 1237

For a non-isolated case, the particles acquire energy marginally in excess of escape energy $E_i = \Phi(\infty) - G' M m_e / r_i$. The energy loss rate is therefore $dH = -G' m_e dM / r_i$ and can be seen as the results of the work done on the plasma by the external electric field.

6.4 Stationary solutions

There are many ways to derive the quasi-stationary solution of the Fokker–Planck equation where the left-hand side of the orbit average Fokker–Planck equation verifies $df/dt \approx 0$ so $\Pi = \Pi_0$ is constant. Following King (1965), we write a first-order linear differential equation form

$$\begin{aligned} \frac{\Pi_0}{4\pi\Gamma} &= f \int_{E_0}^E f' \frac{\partial \tau}{\partial E'} + \frac{\partial f}{\partial E} \left(\int_{E_0}^E f' \tau' dE' + \tau \int_E^{E_i} f' dE' \right) \\ &= f N_\tau + \frac{\partial f}{\partial E} H_\tau, \end{aligned} \quad (52)$$

where Π_0 is proportional to the evaporation rate, and N_τ is proportional to N through equation (50). If $\Pi_0 = 0$, it is easy to find that the only solution is a Maxwellian one (Hénon 1960), which is unphysical because of being non-truncated.

6.5 Kramers–Michie–King solutions

With the same assumption used to derive equation (16), namely a thermal bath Maxwellian assumption form for f' , we could go one step further and simplify the Fokker–Planck equation. In the high energy limit ($m_e E = \mathcal{E} \gg k_B T_e$), it reduces to an equation, first derived by Kramer (1940, cited in Mel’nikov 1991) for the Brownian motion (Mel’nikov 1991):

$$\frac{df}{dt} \approx \frac{\Gamma n_e(r)}{2v} \frac{\partial}{\partial \mathcal{E}} \left[\frac{f}{k_B T_e} + \frac{\partial f}{\partial \mathcal{E}} \right]. \quad (53)$$

Our quasi-equilibrium case, $\frac{df}{dt} \approx 0$, immediately leads to the Kramer (1940)–Michie (1963)–King (1965, all cited in King 1966) type quasi-equilibrium (King 1966) for the phase-space density function f distribution:

$$f \propto \left(e^{-\frac{\mathcal{E}}{k_B T_e^K}} - e^{-\frac{E_i}{k_B T_e^K}} \right).$$

We define what we will call the Kramers–King temperature T_e^K .

The electron density $n_e(r, t) = \int_0^\infty f(r, v, t) 4\pi v^2 dv$ can then be analytically calculated from the King distribution:

$$n_e \propto e^{\eta_i} \text{Erf}(\sqrt{\eta_i}) - \sqrt{\frac{4\eta_i}{\pi}} \left(1 + \frac{2}{3} \eta_i \right) \equiv F^K(\eta_i), \quad (54)$$

where the proportionality factor is obviously $n_e^0 / F^K(\eta)$ where n_e^0 is the electron density at the cloud centre and $\eta = \eta_i(r = 0)$ (notation chosen to be identical to the one used in BEC evaporations theories). $\eta_i(r, t) = [\mathcal{E}_i(t) - q_e \phi(r, t)] / k_B T_e^K(t)$ is a solution of the self-consistent Poisson equation:

$$\frac{1}{r} \frac{\partial^2}{\partial r^2} (r \eta_i(r, t)) = \frac{q_e}{k_B T_e^K(t)} \left[\frac{q_i n_i(r, t) + q_e n_e(r, t)}{\varepsilon_0} \right]. \quad (55)$$

Similarly, with zero velocity of mass transport ($k_B T_e = m_e \sigma_v^2$), we have the important relation

$$k_B T_e(r) = k_B T_e^K \left[1 - \frac{\frac{8}{15\sqrt{\pi}} \eta_i(r)^{5/2}}{F^K(\eta_i(r))} \right] \approx k_B T_e^K(t) \text{Erf}(0.22\eta_i) \quad (56)$$

with $N_e \tilde{T}_e = \int_0^\infty 4\pi r^2 n_e(r) T_e(r) dr$. We can note that, for equations (54) and (56), the adding factor to $e^x \text{Erf}(\sqrt{x})$ is always the power series expansion for $e^x \text{Erf}(\sqrt{x})$ about the point 0.

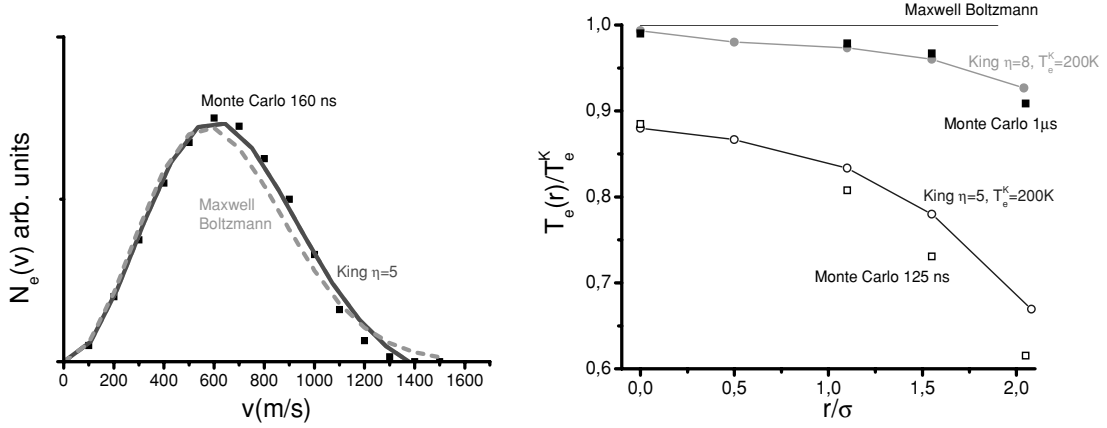


Figure 4. Comparison between a Monte Carlo simulation, the King distribution and the Maxwellian one. The left panel shows a comparison between the velocity distribution $N_e(v) \propto \int_0^v v'^2 f(v'^2/2 + \Phi(r_i)) dv'$ taken at the 1/4 shell such as $N_e(r_i) = N_e/4$. The Monte Carlo calculation comes from Robicheaux & Hanson (2003, fig. 1) after 160 ns expansion time. The Kramer–King distribution is $\eta = 5$, $T_e^K \approx 200$ K. The right panel shows the radial dependence of the temperature T_e^r calculated by formula (56) compared to Robicheaux & Hanson (2003, fig. 2) for an expansion time of 125 and 500 ns. The Maxwellian distribution is radially independent and is clearly not adapted.

At first approximation, we can then say that electrons are always in Kramres–King type quasi-equilibrium during the whole expansion of the ionic and electronic cloud. Indeed, in Fig. 4, using figs 1 and 2 Monte Carlo simulations of Robicheaux & Hanson (2003), we demonstrate that the King electron distribution is better than a pure Maxwellian one.

The harmonic potential approximation in equation (55) leads to

$$k_B T_e^K \approx \frac{q_e^2}{3\epsilon_0} \sigma^2 (n_i^0 - n_e^0). \quad (57)$$

This equation is in fact well confirmed by numerical resolution of equation (55) for $10 \text{ K} < T_e^K < 1000 \text{ K}$. This expression has to be compared with equations (6) and (21) because the electrons are not in a Gaussian distribution, so $n_e^0 \neq N_e/(2\pi\sigma^2)^{3/2}$. In fact, we found that $n_i(r) = n_e(r)$ for $r/\sigma \approx 3-4$ almost independently of all the other parameters and that the electron density distribution varies as $r^{-5/2}$ near infinity as expected. These results can be used to improve the naive formula extract from the Virial theorem. The numerical

results can be approximated (see Fig. 5) by

$$1.9(\eta - 2)k_B T_e^K \approx \sqrt{\frac{2}{\pi}} \frac{q_e^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{N_i - N_e}{\sigma}. \quad (58)$$

This is close to the intuitive results: the trapping depth $\eta k_B T_e^K$ has to be roughly equal to the trap depth, calculated assuming a Gaussian shape for ions and electrons where $1.9(\eta - 2)$ replaces the naively η expected value.

6.6 Second-order solutions

A simple extension of our work would be to look at the evolution of the key parameter $\eta(t)$. An equation for the sole η parameter can be derived from the entropic variational principle (Takahashi 1993):

$$0 = \int_{E_0}^{E_t} \left[\left(\frac{\partial f}{\partial t} \right)_E \frac{\partial \ln f}{\partial \eta} \frac{\partial \tau}{\partial E} + \Pi \frac{\partial}{\partial \eta} \left(\frac{\partial \ln f}{\partial E} \right) \right] dE. \quad (59)$$

Another possible equation will be the one based on correct mass, energy and entropy evolution as done in cluster physics (Lyman Spitzer 1987) or in ultracold atoms physics (Berg-Sorensen 1997; Pinke et al. 1998).

In this article, we have only developed the isotropic case. Obviously, another simple extension of our work will be to use anisotropic model. Similar Fokker–Planck equations hold for more general anisotropic system. As a simple example, we could indicate a natural form for the electrons quasi-equilibrium distribution: Michie’s one used in anisotropic sample:

$$f \propto e^{J^2/J_0^2} (e^{-m_e E/k_B T_e^K} - 1),$$

where the second integral J is the angular momentum. It is possible to average $f(E, J, t)$ over J to restore the equation for $f(E)$ (Cohn 1979). In such Michie distribution, the electron density distribution varies as $(r_t - r)^{3/2} r^{-7/2}$ near r_t (Binney & Tremaine 1987).

To study the general properties of the plasma, it would be profitable to go one step further (Prata 1971). Indeed, to study the velocity, or energy, distribution the first order is sufficient because these quantities are mainly determined by the ‘Maxwellian’ centre where the collisions occur. On the contrary, the escape rate is also

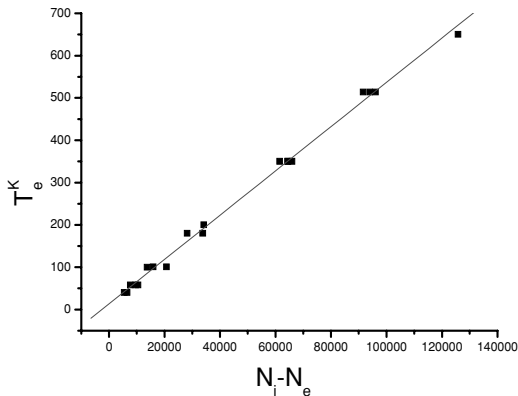


Figure 5. Comparison between numerical calculation and formula (58). The square data comes from several N_e , $N_i - N_e$ couples and different η values ($3 < \eta < 15$) with $r_t = 15-20$.

determined by the velocity distributions in the whole system where f is better approximated by the King distribution.

Using equation (44), we solve the first-order linear differential equation (52):

$$f(E) = - \int_E^{E_t} \frac{\Pi_0}{4\pi\Gamma H_\tau(E')} e^{\int_E^{E'} \frac{N_\tau}{H_\tau} dE'} dE'. \quad (60)$$

This gives the new f function and then the new ρ , Φ , τ functions from equations (12) and (45). Using formulae (14) and (46) and assuming the Kramers–King distribution lead to approximations

$$\int_{E_0}^E \frac{N_\tau}{H_\tau} \propto \frac{\eta}{1 - e^{-\eta/2}} (E - E_0) \\ H_\tau \propto f'_0(E - E_0)^3 e^{\left(11 \frac{E_t - E}{E_t - E_0} + 2\eta\right)/3} \eta^{1/3}, \quad (61)$$

which is 10 per cent accurate for $1 < \eta$ and for all possible E values. The $(E - E_0)^3$ behaviour near the core region $E \approx E_0$ leads to a diverging integral in equation (60).

The model looks pathological. But, with the King distribution, we can see that the energy flux is not zero at the centre. As first mentioned by Hénon (1961) (for the cluster case), the energy flux is due to the three-body encounters. The (two body) Fokker–Planck equation contains the fact that the TBR does exist! The energy flux emerging from the centre is in fact realistic because it is supplied by binary formation. Therefore, we need to put the three-body collisions inside the Fokker–Planck equation. By analogy with the cluster case (e.g. Takahashi 1993) we must add an energy source term to the first-order diffusion coefficient (Lyman Spitzer 1987) (2.79). Using the orbit averaging of the heating rate (10), we need to replace the flux Π in equation (48) by $\tilde{\Pi} = \Pi - \tilde{N}f$ with

$$\tilde{N} = 16\pi^2 \int_0^{\Phi^{-1}(E)} \dot{E}(2(E - \Phi(r, t))^{1/2} r^2 dr. \quad (62)$$

The only change is to change $\tilde{N}$ by $\tilde{N} + N_\tau$, so if $\tilde{N}$ is proportional to N_τ we recover, through equations (60) and (61), the King solution. This is a strong indication of the good validity of this kind of solution as already proved by our comparison with Monte Carlo simulations. In the cluster case, the number of binary is always negligible and is usually not taken into account in this modified Fokker–Planck type equation. Equation (10) indicates that this assumption is not as good as in a plasma sample, typically 20 (100/5.4) times worse. We then should add a loss term on the right side of equation (48). A better solution might be to use the orbit average master equation (see Mansbach & Keck 1969, equation IV.1, or Goodman & Hut 1993, equation 2.21). The rate constant is given by equation (9) with $(k_B T_e)^2 K(E, E') = m_e^2 k(m_e(E - E_0)/(k_B T_e), m_e(E' - E_0)/(k_B T_e))$:

$$\left(\frac{df}{dt}\right)_{TBR} = n_c \int_{-\infty}^{+\infty} [K(E, E')f(E', t) - K(E', E)f(E, t)] dE'. \quad (63)$$

We will not develop here further on this discussion but we could mention that the Fokker–Planck equations with three-body heating terms are similar to the self-similar Fokker–Planck equation without binary heating by Heggie & Stevenson (1988), especially with $\tilde{N} \propto qf$ and $\dot{E}$ constant.

7 EVAPORATION EXPERIMENTS AND ELECTRON TEMPERATURE MEASUREMENT

One of the most interesting part in the ultracold plasma system is its ability to be experimentally tested. We have already mentioned

Star clusters dynamics in a laboratory 1239

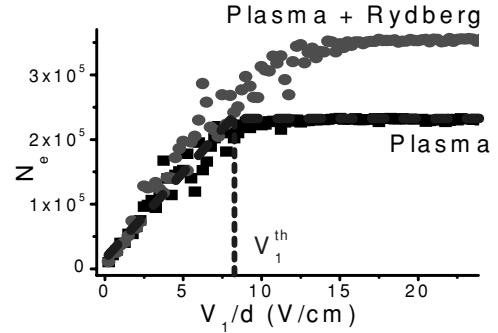


Figure 6. Number of electrons ejected when varying the voltage V applied after $1 \mu\text{s}$ plasma expansion time. The dashed lines are guide for the eye to interpret equation (64). Each datum has been calibrated to the average value of the total electron number.

some experiments as the plasma expansion (through electron density measurement) or the TBR processes.

Here, we would like to test the phase-state distribution f . It could be experimentally tested, for instance, using an electric pulse to extract electrons (Roberts et al. 2004; Vanhaecke et al. 2005) similarly to ‘runaway electron’ experiments (Kulsrud et al. 1973). A similar technique has been used in neutral atom BEC confined in a static external potential (Doyle et al. 1989). The extraction should lead to an instantaneous picture of the energy distribution of the electrons in the plasma. But our case is complex due to the fact the potential depends on the number of trapped particles through Poisson’s equation.

7.1 Experimental determination of the temperature.

Electronic temperature is a key parameter in plasma. If the thermal energy is lower than the Coulomb interaction energy, the plasma approaches the strongly coupled regime where correlation effects become important (Pohl et al. 2004b). The basic idea we have already used (Vanhaecke et al. 2005) was to experimentally determine the temperature using a short voltage pulse V to extract electrons. The number of electrons ejected by the voltage V is plotted in Fig. 6 both for the plasma only and for the plasma plus Rydberg sample.

The first step of the theory is to use the threshold value V_1^{th} (see Fig. 6) that is necessary to remove all the free electrons to find n_i^0 . Assuming that there are always a few electrons with zero velocity in the Lagrange point where electrons are extracted from the ion potential well, the maximum electric field F^{th} created by the ionic space charge is

$$F^{\text{th}} = \frac{V_1^{\text{th}}}{d} \approx 2.38 \frac{q_i}{4\pi\epsilon_0} n_i^0 \sqrt{2\sigma^2}. \quad (64)$$

The analysis of Fig. 6 and the use of formula (64) lead to knowledge of n_i^0 at a few per cent accuracy (assuming σ is known exactly). Experimentally, one main uncertainty is the imprecise determination of N_e due to laser fluctuations and poor calibration of the charged particle detector (Micro Channels Plate; MCP) detector. Our data were interpreted using a Kramer–Michie–King electron distribution. The last step of the theory is based on the solution of Poisson’s equation with n_i^0 known from equation (64). Because some electrons are removed even for small V_1 values, $n_e(r)$ thus indicates that $r_i \approx \infty$. In order to take into account our magnetic and stray electric field we will assume $r_i \approx 12\sigma$. Furthermore, the total number of calculated electrons $N_e(t) = \int_0^{+\infty} n_e(r, t) 4\pi r^2 dr$ should reproduce

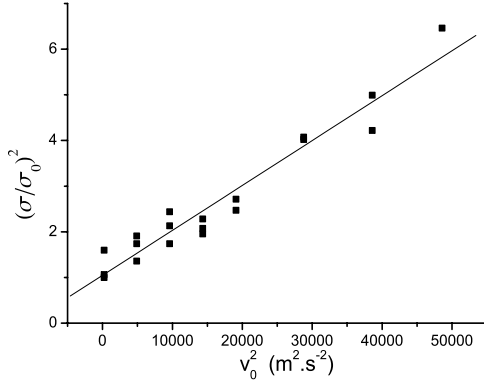


Figure 7. Plasma size extract from expression $\sigma/\sigma_0 = (N_i/N_i^0)(V_1^{\text{th}}/V_0^{\text{th}})$ compared to $v_0^2 \approx k_B T_e^\gamma/m_i$, which is known from the laser ionization wavelength. σ_0 , N_i^0 , V_0^{th} are, respectively, the sample size, the ion number and the threshold voltage for the laser sets at the ionization threshold ($T_e^\gamma \approx 0$). σ , N_i , V_1^{th} are, respectively, the sample size, the ion number and the threshold voltage for different laser wavelength taken after 2 μs of expansion time. The linear fit is $\sigma^2 \approx \sigma_0^2 + 10^{-4} v_0^2$ in SI units.

the observed number N_e . This determines the values for the two remaining parameters, n_e^0 and T_e^K , as a function of the unknown η parameter through formula (58). Unfortunately, we were too sensitive to the exact value of η to be able to give an absolute value for the plasma temperature. Figs 4 and 10 of Kuzmin & O’Neil (2002a) show that $\eta \approx 8$ seems a reasonable choice to interpret the data given in Fig. 6. Even with this not fully satisfactory assumption, we have used in Vanhaecke et al. (2005) the theory to give relative results. One conclusion was that the temperature should not increase or decrease by more than a factor of 5 when Rydberg atoms are added into a plasma.

The theory presented here is based on several assumptions that have to be tested. First, to check the validity of formula (64) we have compared, after 2 μs of expansion time, the plasma size obtained by formula (64) to the one given by the expression (7) for different plasma expansion velocity v_0 . Using $n_i^0 = N_i/(2\pi\sigma^2)^{3/2}$, equation (64) leads to $\sigma \propto N_i V_1^{\text{th}}$. N_i is known from MCP. The experimental results are depicted in Fig. 7 where $v_0^2 \approx k_B T_e^\gamma/m_i$ is varied by changing the laser ionization wavelength. Fitting results are in agreement with formula (7) for $\sigma_0 \approx 200 \mu\text{m}$, which is very close to the expected MOT size. Therefore, we have here a strong indication concerning the validity of formula (64).

Secondly, we have compared formula (58), which gives T_e^K , with T_e^γ . T_e^K has been experimentally extracted using formula (58), with $\eta = 7$, σ is obtained using the results in Fig. 7, N_i is given by equation (58) knowing the voltage threshold value V_1^{th} . Results in Fig. 8, for three different ion numbers, seem to indicate that T_e^K is close to T_e^γ and that $\eta = 7$ is a reasonable value, after 2 μs of expansion time, but has probably to be adapted for each ion number case.

Up to now, we have just used one single point of the full curve given in Fig. 6, a more complete study should yield a determination of the η value. The full process of electron extraction is beyond the scope of this article but might probably be tackled with the ‘violent relaxation’ theory (Ziegler & Wiechen 1989; Wiechen & Ziegler 1994; Chavanis 1998). Indeed, even in an impulse approximation with Fokker–Planck–Vlasov collisionless equations, or adiabatic approximation in gaseous equations, the violent ejection is a very complex system. At the present experimental status, we have only

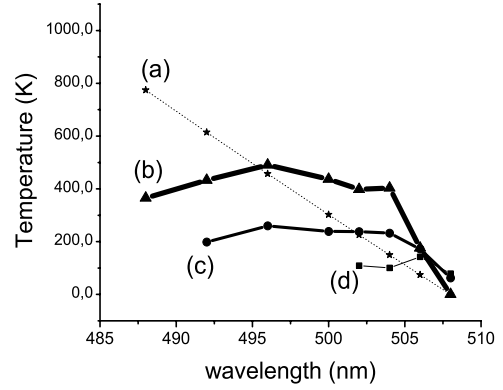


Figure 8. Kramers–King temperature T_e^K , extracts from equation (58) (with $\eta = 7$) versus laser wavelength. (a) The photoionization electronic temperature T_e^γ defined by $3k_B T_e^\gamma/2$ equals to the difference between the photon energy and the ionization threshold (near 508 nm). (b) Data taken with full laser power (large N_i value), (c) with five times lower power than in (b) (medium N_i number, and (d) with 15 times lower power than in (b) (small N_i value).

investigated a global parameter, namely, the electronic temperature of the plasma.

7.2 Other methods

Many other methods may be used to determine the plasma temperature.

(i) Walz–Flannigan et al. (2004) have compared an experimental Rydberg binding energy distribution with calculated outcomes of inelastic collisions between Rydberg atoms and electrons in the plasma taken from equations (9). They conclude that it is very likely that electron–Rydberg atom collisions cause most of the experimentally observed population redistribution into states. Their fitting method can then serve as a tool to precisely estimate the electron temperature. An extension of the method might be to use Rydberg atoms to probe the plasma temperature using Heggie’s law.

(ii) The plasma expansion itself is already a signature of the (time average) temperature as indicated by equations (30) and (7). One promising way towards this measurement has been provided by Killian et al. (2003) who use Strontium ions. Indeed, the non-alkali ions, as the strontium one, have visible resonance transitions and can then be detected by laser-induced fluorescence. The Doppler shift of the resonance indicates that the ion velocity, and so its variation (the acceleration), reflects the electron temperature (Simien et al. 2004).

For alkali atoms, it is no more possible to use optical detection. We might think to use position-sensitive detector to image the ionic cloud. A similar idea is to use the time of flight projection image of the ionic cloud. We have tried this technique. It is efficient and easy to handle only for really small ion number clouds to avoid a too strong Coulomb explosion during the ion transport towards the MCP. Indeed, even using formula (32), which is based on a hypothetical pure spherical symmetry, it is hard to restore the initial ionic cloud shape from the projection image of the ions in the detector.

(iii) Another method to study the plasma temperature is to monitor the electron evaporation. Experimentally, the easiest way is to add a small electric field to force slow evaporation of particles. Theoretically, this is the well-known Kramers problem of escape

from a trap (Peter, Peter & Michal 1990; Mel'nikov 1991). The escape rate (see equation 51) can be calculated, for instance, using a King distribution and is usually found to be close to $1/(100t_e)$ (Binney & Tremaine 1987) where $t_e = 9\sigma_v^3/(16\sqrt{\pi}G^2m_e^0n_e\ln\Lambda)$ is the electron thermalization time. These results assume a purely energetic truncated condition. But, in globular cluster dynamics it is well known that this hypothesis of purely energetic truncated condition is not well suited especially for anisotropic systems (Takahashi, Lee & Inagaki 1997; Kim & Oh 1999). The comparison between ultracold plasma experiments and the theories might help to understand how accurate the assumption of energy truncation is. This technique has been proposed by the NIST group using a constant small electric field to detect all the eject electrons. Some results are reported in Robicheaux & Hanson (2003; fig. 3), but were not interpreted. The results are in fact compatible with the $1/(100t_e)$ evaporation rate on the order of 10^{11} s^{-1} decreasing with time due to the fact the density decrease much faster than the electron average velocity during the plasma expansion.

(iv) Similar to our work, Roberts et al. (2004) used electric field pulse to extract the plasma temperature. To avoid any discussion concerning the potential shape, they tried to affect electrons only in the asymptotic part (in $1/r$) of the trapping potential by using only very small electric fields. Their experimental data are treated using a theory based on Maxwellian electron distribution, which we believed is not as appropriate as the Kramers–King one, especially for the slightly bound electrons which have been removed by the electric pulse. Furthermore, even with a small electron fraction removed, $N_i - N_e$ can be affected and the electron extraction process is probably very complex. The main result concerns the electron cooling during the plasma expansion and the almost constant initial temperature $T_e \approx 50\text{ K}$ independently of T_e^* . This final result looks surprising to us because it seems to disagree with the Virial-based equations (21), (57) or (58). Unfortunately, the published data are not sufficient to check the results with other electron distribution.

8 CONCLUSION

Properties of systems with long-range interactions are still poorly understood despite being of importance in most areas of physics (Dauxois et al. 2002). In this article, we have shown that the dynamical behaviour of the electrons in an ultracold plasma is similar to the one described by conventional models of star cluster dynamics. The evolution of such a sample is dominated by kinetics equations formally identical to the ones controlling the evolution of a star cluster using only a new negative gravitational constant defined by equation (1). We have developed here some aspects of the analogy with globular star cluster dynamics. It is possible that for small plasma, the analogy might be even more pronounced with open clusters, which are less collisionless systems, than with globular ones. The influence of stellar encounters, namely relaxation, equipartition, mass segregation, escape, inelastic encounters (coalescence, dissipation of energy), binary formation by three-body encounters, interaction with primordial binaries stars, etc., have exact partners in the plasma case. There is a similar law for the TBR, for instance, Heggie's law: 'hard binaries get harder and soft binaries get softer' is identical in both systems. The fact that hard (or 'hot') binaries get harder (hotter) is true for both systems is linked to the negative specific heat of the system. Indeed, this might be interpreted as the fact the energy exchange between the hot binaries and the cold single particles leads to even colder single-particle systems and even hotter binaries.

Thanks to the Virial theorem, we could relate the plasma temperature with the plasma size and the ion and electron numbers (or central

Star clusters dynamics in a laboratory 1241

density). We found that the Fokker–Planck equation is exactly identical for electron in ultracold plasma and for stars in globular cluster. The only modification occurs in the potential which, in the plasma case, should contain an extra part due to the ions. The ions are spectators but are needed to create a confining potential for the electrons. The gaseous equations, coming from the first moment equations of the Fokker–Planck equation, confirm the early self-similar evolution of the ionic cloud. This self-similar evolution breakdown after a few microseconds and we have analytically studied the ion shock wave occurring when the quasi-neutrality is violated. We hope that the fact that the electron density evolution can be studied using Fokker–Planck or fluid equations codes, usually devoted to clusters physics studies, would lead to a rapid use of such codes in ultracold plasma physics.

The orbit average study of the Fokker–Planck equation indicates that the quasi-static solution for the phase-space density electron distribution f is a Kramers–King one $f \propto e^{\mathcal{E}/(K_B T_e^K)} - 1$ where T_e^K deals for King (or Kramers) temperature, although strictly speaking a thermodynamics temperature is not defined for a non-equilibrium distribution. This is confirmed by a comparison with Monte Carlo simulation previously published. Even when the three-body collisions are taken into account, this approximate distribution seems accurate. In fact, several numerical codes developed for stellar system could be easily adapted to treat the ultracold plasma case. We could, for instance, suggest to use the gaseous equation for electron to improve ion kinetic equations based on electron Kramers–King distribution used up to now (Pohl et al. 2004a) in ultracold plasma physics. A natural extension of this work would be to test more complex electron distribution, with anisotropy, for instance, such as Michie's one.

Finally, it is possible to experimentally simulate the tidal escape from globular cluster under external galaxy gravitational attraction by using small external field to extract electron trapped in an ionic cloud. The full process is beyond the scope of this article but might be tackled with the violent relaxation theory. We have only studied here the link between the electrons and the ion numbers, the plasma temperature and the charged particles potential depth through formula (58). We have also suggested to use the electron natural evaporation rate $1/(100t_e)$ to measure the plasma temperature.

We hope that this article will stimulate links with the astrophysics community and we hope the analogy is also useful to develop more physical insight on the ultracold plasma physics behaviour. For instance, as in the cluster case Meylan & Heggie (1997) binary collisions might be a route for the formation of long-lived multiple systems as three-body stable systems or for the formation of giant molecules as 'trilobites' (Greene, Dickinson & Sadeghpour 2000) or macro-Rydberg ones in the plasma case (Farooqi et al. 2003). The ultracold plasma experiments evolve rapidly; we have mentioned the laser manipulation of the ions in the strontium case (Simien et al. 2004). This might lead to the control of the ion motions and to cool sample where crystallization might appear (Pohl et al. 2004b). This manipulation of ions can be added with external field manipulation as RF electric field, magnetic gradient manipulation and might be able to simulate a lot of events as tidal shock or tidal heating in cluster physics. Some pictures of the ionic cloud have already been taken by Simien et al. (2004), and this gives exactly the projected density profile in strong analogy with the main observed quantity in star cluster: the projected mass profile. A charge particle detector (MCP) with position sensitivity might also give similar data. Therefore, analogy with dynamics of globular clusters might stimulate new ideas in ultracold plasma physics. One advantage of plasma system compared to globular cluster one results in its physical

1242 *D. Comparat et al.*

behaviour very closely related to what can be simulated. But, the major advantage is the experimental capability of tuning different parameters in a huge range. In globular cluster, non-evolutionary models or single mass models are often used but are far from reality, this is no more the case in ultracold plasma physics. We believe that a comparison between different models with very well controlled experiments will help to improve further developments.

ACKNOWLEDGMENTS

We would like to thank Gary Manon, Rainer Spurtzem and Haldan Cohn for helpful discussions.

REFERENCES

- Berg-Sorensen K., 1997, *Phys. Rev. A*, 55, 1281; Erratum in *PRA* 56 3308 (1997)
- Bergeson S. D., Spencer R. L., 2003, *Phys. Rev. E*, 67, 126 414
- Binney J., Tremaine S., 1987, *Galactic Dynamics*, Princeton Series in Astrophysics
- Chavanis P. H., 1998, *MNRAS*, 300, 981
- Chavanis P. H., 2002, in Antonic N., van Duijn C. J., Jager W., Mikelic A., eds, *Proc. Conf. on Multiscale Problems in Science and Technology*. Springer, Berlin
- Cohn H., 1979, *Astrophys. J.*, 234, 1036
- Cohn H., Hut P., Wise M., 1989, *Astrophys. J.*, 342, 814
- Dauxois T., Ruffo S., Arimondo E., Wilkens M., 2002, eds, *Lecture Notes in Physics*, Vol. 602, *Dynamics and Thermodynamics of Systems with Long Range Interactions*. Springer, Berlin
- Delcroix J. L., Bers A., 1994, *Physique des plasmas*, EDP Sciences, Les Ulis
- Dorozhkina D. S., Semenov V. E., 1998, *Phys. Rev. Lett.*, 81, 2691
- Doyle J. M., Sandberg J. C., Masuhara N., Yu I. A., Kleppner D., Greytak T. J., 1989, *J. Opt. Soc. Am. B*, 6, 2244
- Dubin D. H. E., O'Neil T. M., 1999, *Rev. Mod. Phys.*, 71, 87
- Dutta S. K., Feldbaum D., Walz-Flannigan A., Guest J. R., Raithel G., 2001, *Phys. Rev. Lett.*, 86, 3993
- Farooqi S. M. et al., 2003, *Phys. Rev. Lett.*, 91, 183 002
- Fregeau J. M., Cheug P., Zwart S. F. P., Rasio F. A., 2004, *MNRAS*, 1, 1
- Gallagher T. F., Pillet P., Robinson M. P., Laburthe-Tolra B., Noel M. W., 2003, *J. Opt. Soc. Am. B*, 20, 1091
- Giersz M., Spurtzem R., 2003, *MNRAS*, 343, 781
- Goodman J., Hut P., 1993, *Astrophys. J.*, 403, 271
- Greene C. H., Dickinson A. S., Sadeghpour H. R., 2000, *Phys. Rev. Lett.*, 85, 2458
- Hahn Y., 2000, *J. Phys. B*, 33, L655
- Hahn Y., 2002, *Phys. Lett. A*, 293, 266
- Heggie D. C., 1975, *MNRAS*, 173, 729
- Heggie D. C., Stevenson D., 1988, *MNRAS*, 230, 223
- Heggie D. C., Giersz M., Spurtzem R., Takahashi K., 1998, *Highlights Astron.*, 11, 591
- Hénon M., 1960, *Ann. Astrophys.* 23, 668
- Hénon M., 1961, *Ann. Astrophys.* 24, 369
- Heney L. G., Forbes J. E., Gould N. L., 1964, *Astrophys. J.*, 139, 306
- Hua X., Bai J., Wang L., 2001, *Chem. Phys.*, 270, 93
- Hut P., Bahcall J. N., 1983, *Astrophys. J.*, 268, 319
- Hut P. et al., 1992, *PASP*, 104, 981
- Inagaki S., Lynden-Bell D., 1990, *MNRAS*, 244, 254
- Johnstone D., 1993, *Astron. J.*, 105, 155
- Kaplan A. E., Dubetsky B. Y., Shkolnikov P. L., 2003, *Phys. Rev. Lett.*, 91, 143 401
- Killian T. C., Kulin S., Bergeson S. D., Orozco L. A., Orzel C., Rolston S. L., 1999, *Phys. Rev. Lett.*, 83, 4776
- Killian T. C., Lim M. J., Kulin S., Dumke R., Bergeson S. D., Rolston S. L., 2001, *Phys. Rev. Lett.*, 86, 3759
- Killian T. C. et al., 2003, *J. Phys. A, Math. Gen.*, 36, 6077
- Kim Y. K., Oh K. S., 1999, *J. Kor. Astr. Soc.*, 32, 17
- King I. R., 1965, *Astron. J.*, 70, 376
- King I. R., 1966, *Astron. J.*, 71, 64
- Kovalev V. F., Bychenkov V. Y., 2003, *Phys. Rev. Lett.*, 90, 185 004
- Kulin S., Killian T. C., Bergeson S. D., Rolston S. L., 2000, *Phys. Rev. Lett.*, 85, 318
- Kulsrud R. M., Sun Y.-C., Winsor N. K., Fallon H. A., 1973, *Phys. Rev. Lett.*, 31, 690
- Kuzmin S. G., O'Neil T. M., 2002a, *Phys. Plasmas*, 9, 3743
- Kuzmin S. G., O'Neil T. M., 2002b, *Phys. Rev. Lett.*, 88, 065003
- Larson R. B., 1970, *MNRAS*, 147, 323
- Li W. et al., 2004, *Phys. Rev. A*, 70, 042 713
- Louis P. D., 1990, *MNRAS*, 244, 478
- Louis P. D., Spurtzem R., 1991, *MNRAS*, 251, 408
- Lyman Spitzer J., 1987, *Dynamical Evolution of Globular Clusters*, Princeton Univ. Press, Princeton, New Jersey
- Lynden-Bell D., Eggleton P. P., 1980, *MNRAS*, 191, 483
- Majumdar S. K., Adhikari D., Lahiri A., 1973, *Plasma Phys.*, 15, 1259
- Mansbach P., Keck J., 1969, *Phys. Rev.*, 181, 275
- Mazevet S., Collins L. A., Kress J. D., 2002, *Phys. Rev. Lett.*, 88, 055 001
- Mel'nikov V. I., 1991, *Phys. Rep.*, 209, 1
- Meylan G., Heggie D. C., 1997, *Astron. Astrophys. Rev.*, 8, 1
- Mitchner M., Kruger H. C., 1992, *Partially Ionized Gases*, Department of Mechanical Engineering, Stanford University. Available at <http://navier.stanford.edu/PIG/PIGdefault.html>.
- Mora P., 2003, *Phys. Rev. Lett.*, 90, 185 002
- Peter H., Peter T., Michal B., 1990, *Rev. Mod. Phys.*, 62, 251
- Pinke P. W. H., Mosk A., Weidemüller M., Reynolds M. W., Hijmans, T. W., Walraven J. T. M., 1998, *Phys. Rev. A*, 57, 4747
- Pohl T., Pattard T., Rost J., 2004a, *Phys. Rev. A*, 70, 033 416
- Pohl T., Pattard T., Rost J., 2004b, *J. Phys. B*, 37, L183
- Pohl T., Pattard T., Rost J., 2005, *J. Phys. B*, 38, S343
- Pohl T., Pattard T., Rost J. M., 1998, *Phys. Rev. A*, 71, 013421
- Pohl T., Pattard T., Rost J. M., 2003, *Phys. Rev. A*, 68, 010 703
- Pohl T., Pattard T., Rost J. M., 2004c, *Phys. Rev. Lett.*, 92, 155 003
- Prata S. W., 1971, *Astron. J.*, 76, 1029
- Roberts J. L., Fertig C. F., Lim M. L., Rolston S. L., 2004, *Phys. Rev. Lett.*, 92, 253 003
- Robicheaux F., Hanson J. D., 2002, *Phys. Rev. Lett.*, 88, 055 002
- Robicheaux F., Hanson D., 2003, *Phys. Plasmas*, 10, 2217
- Robinson M. P., Tolra B. L., Noel M. W., Gallagher T. F., Pillet P., 2000, *Phys. Rev. Lett.*, 85, 4466
- Rosenbluth M. N., MacDonald W. M., Judd D. L., 1957, *Phys. Rev.*, 107, 1
- Sigurdsson S., Phinney E. S., 1998, *Astrophys. J.*, 500, 130
- Simien C., Chen Y., Gupta P., Laha S., Martinez Y., Mickelson P., Nagel S., Killian T., 2004, *Phys. Rev. Lett.*, 92, 143 001
- Spitzer L., Shapiro S. L., 1972, *Astrophys. J.*, 173, 529
- Stevefelt J., Boulmer J., Delpech J.-F., 1975, *Phys. Rev. A*, 12, 1246
- Surkov E. L., Walraven J. T. M., Shlyapnikov G. V., 1996, *Phys. Rev. A*, 53, 3403
- Takahashi K., 1993, *PASJ*, 2, 233
- Takahashi K., Lee H. M., Inagaki S., 1997, *MNRAS*, 292, 331
- Takahashi K., Zwart S. F. P., 1998, *Astrophys. J.*, 502, L49
- Tkachev A. N., Yakovlenko S. I., 2001a, *Quantum Electron.*, 73, 66
- Tkachev A. N., Yakovlenko S. I., 2001b, *Quantum Electron.*, 31, 1084
- Tol P. J. J., Hogervorst W., Vassen W., 2004, *Phys. Rev. A*, 70, 013 404
- Vanhaecke N., Comparat D., Tate D. A., Pillet P., 2005, *Phys. Rev. A*, 71, 013 416
- Vriens L., Smeets A. H. M., 1980, *Phys. Rev. A*, 22, 940
- Walz-Flannigan A., Guest J. R., Choi J.-H., Raithel G., 2004, *Phys. Rev. A*, 69, 063 405
- Wiechen H., Ziegler H. J., 1994, *J. Plasma Phys.*, 51, 341
- Wiyanto P., Kato S., Inagaki S., 1985, *PASJ*, 37, 715
- Ziegler H. J., Wiechen H., 1989, *MNRAS*, 238, 1261

This paper has been typeset from a $\text{\LaTeX}$ file prepared by the author.

Available online at www.sciencedirect.com

Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 266 (2008) 351–356

www.elsevier.com/locate/nimb

Proposed antimatter gravity measurement with an antihydrogen beam

A. Kellerbauer^{a,*}, M. Amoretti^a, A.S. Belov^b, G. Bonomi^c, I. Boscolo^d, R.S. Brusa^e,
 M. Büchner^f, V.M. Byakov^g, L. Cabaret^h, C. Canaliⁱ, C. Carraroⁱ, F. Castelli^d, S. Cialdi^d,
 M. de Combarieu^k, D. Comparat^h, G. Consolati^j, N. Djourellov^l, M. Doser^m,
 G. Drobychevⁿ, A. Dupasquier^j, G. Ferrari^o, P. Forget^k, L. Formaro^d, A. Gervasini^d,
 M.G. Giammarchi^d, S.N. Gninenko^b, G. Gribakin^p, S.D. Hogan^q, M. Jacquy^f,
 V. Lagomarsinoⁱ, G. Manuzioⁱ, S. Mariazzi^e, V.A. Matveev^b, J.O. Meier^a,
 F. Merkt^q, P. Nedelecⁿ, M.K. Oberthaler^r, P. Pari^k, M. Prevedelli^o,
 F. Quasso^j, A. Rotondi^c, D. Sillouⁿ, S.V. Stepanov^g, H.H. Stroke^s, G. Testeraⁱ,
 G.M. Tino^o, G. Trénec^f, A. Vairo^d, J. Vigué^f, H. Walters^p, U. Warring^a,
 S. Zavatarelliⁱ, D.S. Zvezhinskij^g (AEGIS Proto-Collaboration)

^a Max Planck Institute for Nuclear Physics, Postfach 103980, 69029 Heidelberg, Germany^b Institute for Nuclear Research of the Russian Academy of Sciences, Moscow 117312, Russia^c Istituto Nazionale di Fisica Nucleare and Department of Physics, University of Pavia, via Bassi 6, 27100 Pavia, Italy^d Istituto Nazionale di Fisica Nucleare and Department of Physics, University of Milan, via Celoria 16, 20133 Milano, Italy^e Department of Physics, University of Trento, via Sommarive 14, 38100 Povo, Italy^f Laboratoire Collisions Agrégats Réactivité – IRSAMC, Université Paul Sabatier and CNRS UMR 5589, 118 Route de Narbonne, 31062 Toulouse Cedex, France^g Institute for Theoretical and Experimental Physics, Moscow 117218, Russia^h Laboratoire Aimé Cotton, CNRS II, Campus d'Orsay, 91405 Orsay Cedex, Franceⁱ Istituto Nazionale di Fisica Nucleare and Department of Physics, University of Genoa, via Dodecaneso 33, 16146 Genova, Italy^j Politecnico di Milano, Piazza Leonardo da Vinci 32, 20133 Milano, Italy^k Laboratoire de Basse Température du SPEC/DREC/AM/DSM, CEA Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette Cedex, France^l Institute for Nuclear Research and Nuclear Energy, 72 Tzarigradsko Chaussee, 1784 Sofia, Bulgaria^m Department of Physics, CERN, 1211 Genève 23, Switzerlandⁿ Laboratoire d'Annecy-le-Vieux de Physique des Particules, 9 Chemin de Bellevue, B.p. 110, 74941 Annecy Cedex, France^o Istituto Nazionale di Fisica Nucleare and Department of Physics, University of Florence and LENS, CNR-INFM, via Sansone 1, 50019 Firenze, Italy^p Department of Applied Mathematics and Theoretical Physics, Queen's University, University Road, Belfast BT7 1NN, United Kingdom^q Laboratorium für Physikalische Chemie, ETH Zürich, 8093 Zürich, Switzerland^r Kirchhoff Institute of Physics, University of Heidelberg, Im Neuenheimer Feld 227, 69120 Heidelberg, Germany^s Department of Physics, New York University, 4 Washington Place, New York, NY 10003, USA

Available online 15 December 2007

Abstract

The principle of the equivalence of gravitational and inertial mass is one of the cornerstones of general relativity. Considerable efforts have been made and are still being made to verify its validity. A quantum-mechanical formulation of gravity allows for non-Newtonian contributions to the force which might lead to a difference in the gravitational force on matter and antimatter. While it is widely expected that the gravitational interaction of matter and of antimatter should be identical, this assertion has never been tested experimentally. With the production of large amounts of cold antihydrogen at the CERN Antiproton Decelerator, such a test with neutral antimatter atoms has now become feasible. For this purpose, we have proposed to set up the AEGIS experiment at

* Corresponding author.

E-mail address: a.kellerbauer@mpi-hd.mpg.de (A. Kellerbauer).

CERN/AD, whose primary goal will be the direct measurement of the Earth's gravitational acceleration on antihydrogen with a classical Moiré deflectometer.

© 2007 Published by Elsevier B.V.

PACS: 03.75.Dg; 06.30.Gv; 25.43.+t; 34.80.Lx

Keywords: Antimatter; Gravity; Matter interferometry; Deflectometry; Weak equivalence principle; Positronium; Porous insulator

1. Introduction

General relativity and quantum mechanics are two of the very foundations of modern physics. Yet, as was pointed out early on by Wigner [1], the two are to some degree incompatible. The most obvious discrepancy is the dynamic spacetime geometry of general relativity, which clashes with the fixed-background approach of quantum field theory. In order to repair some of these perceived contradictions and to properly incorporate gravity into the Standard Model, some scientists actively pursue a unification of gravity with the other fundamental interactions within what has been called a “Theory of Everything” [2].

A hypothetical quantum theory of gravitation necessarily constitutes a departure from the Einsteinian view of gravity as a geometric phenomenon. As in other quantum field theories, the interaction is mediated by exchange particles. The spins of these exchange bosons as well as the signs of the charges to which they couple determine whether a force is repulsive or attractive. Generally speaking, even-spin particles create an attractive force between all types of charges, whereas the exchange of odd-spin particles leads to a repulsive force between like charges. Hence, the formulation of a quantum theory of gravitation automatically brings about the possibility of different types of exchange particles as well as negative mass charge. Attempts at formulating a quantum gravity have mainly been hampered by the fact that such a theory is non-renormalizable, though a renormalization within the framework of an effective field theory may turn out to be feasible [3].

When constructing such a theory, ordinary “Newtonian” gravity is associated with a massless tensor (spin-2) exchange boson, as the force has an infinite range and is always attractive. In addition to this tensor part, gravity could have scalar (spin-0) and/or vector (spin-1) components. Unlike the tensor and scalar parts, a vector component would lead to a repulsive force acting between like charges. Such a force would thus produce a dramatic effect on antimatter particles in the Earth's gravitational field and constitute a violation of the weak equivalence principle (also called the universality of free fall).

There are a number of arguments against “anti-gravity,” *i.e.* a tensor-type gravitational interaction with opposite sign for antimatter [4–7]. The most intuitive of these is Morrison's argument [8], which elegantly demonstrates that such a phenomenon would violate conservation of energy. Quantitative limits on possible anti-tensor gravity

effects can be obtained, among others, from estimates of the effects of virtual antiparticles in ordinary matter [9,10] or the absence of changes in the cyclotron frequency of antiprotons ($\bar{p}$) confined in a Penning trap [11]. Most, if not all, of these arguments do not apply to more elaborate models involving vector and scalar gravitons. If the hypothetical vector and scalar charges, as well as their masses (and thus the ranges of the interactions) are carefully chosen, such contributions can be strongly suppressed in ordinary matter. Finally, it should be stated that the problem of the gravitational interaction of antimatter is completely independent from the – equally fascinating – question of matter–antimatter symmetry (CPT), as CPT invariance merely dictates the equality of the inertial masses of particle and antiparticle pairs, but places no restriction on the gravitational masses.

Unlike ordinary matter [12], the behavior of antimatter particles in a gravitational field has never been tested experimentally. Two attempts, at Stanford [13] and CERN's Low-Energy Antiproton Ring [14] were thwarted by the overwhelming effect of stray electric and magnetic fields upon the electrically charged test particles. The recent production of copious amounts of cold antihydrogen ($\bar{H}$) at CERN's Antiproton Decelerator (AD) [15,16] has paved the way for high-precision gravity experiments with neutral antimatter. We have proposed the AEGIS experiment (Antimatter Experiment: Gravity, Interferometry, Spectroscopy), to be performed at CERN/AD, in order to address this important question.

The primary scientific goal of AEGIS is the direct measurement of the Earth's local gravitational acceleration $\bar{g}$ on $\bar{H}$. In a first phase of the experiment, a gravity measurement with 1% relative precision will be carried out by observing the vertical displacement of the shadow image produced by an $\bar{H}$ beam as it traverses a Moiré deflectometer, the classical counterpart of a matter wave interferometer. In spite of its limited precision, this measurement will represent the first direct determination of the gravitational effect on antimatter.

The essential steps leading to the production of $\bar{H}$ and the measurement of $\bar{g}$ with AEGIS are the following:

- Production of positrons (e^+) from a Surko-type source and accumulator;
- Capture and accumulation of $\bar{p}$ from the AD in a cylindrical Penning trap;
- Production of positronium (Ps) by bombardment of a nanoporous material with an intense e^+ pulse;

- Excitation of the Ps to a Rydberg state with principal quantum number $n = 30 \dots 40$;
- Recombination of $\bar{H}$ by resonant charge exchange between Rydberg Ps and cold $\bar{p}$;
- Formation of an $\bar{H}$ beam by Stark acceleration with inhomogeneous electric fields;
- Determination of $\bar{g}$ in a two-grating Moiré deflectometer coupled with a position-sensitive detector.

The feasibility of the first two points has been conclusively demonstrated by the ATHENA and ATRAP collaborations (see, in particular, [17,18]). In the following, we will discuss the remaining aspects of the proposed technique in more detail.

2. Method

2.1. Positronium production and excitation

In recent years, the potential for nanoporous insulator materials to be used as highly efficient Ps converters has been recognized, and the relevant formation mechanisms have been studied extensively [19]. When e^+ are implanted into such a material at kinetic energies ranging from several 100 eV to a few keV, they scatter off atoms and electrons (e^-) in the bulk and are slowed to eV energies within a few ps. With efficiencies ranging from 10% to 50%, the slow e^+ capture either bound e^- or those liberated in prior collisions and form Ps. These tend to accumulate in defects of the material due to the reduced dielectric strength and hence increased Ps binding energy. In the pores, Ps repeatedly bounces off the cavity walls and eventually approaches complete thermalization with the target material.

While some *ortho*-Ps are lost due to so-called pick-off annihilations of e^+ with the molecular e^- of the cavity walls, a sizable fraction diffuses out of the film at thermal energies. The overall *ortho*-Ps yield as well as the final velocity distribution depend upon the characteristics of the target material (in particular, its pore structure), the implantation depth, and the target temperature. Measurements using positron annihilation lifetime spectroscopy have shown that the *ortho*-Ps fraction (outside the sample) can reach 30% in silicon-based polymer materials cooled to 50 K [20]. In other experimental work, it was shown that the energy profile of Ps emitted from the surface of a silica film at room temperature followed a Maxwell-Boltzmann distribution and was compatible with the Ps being fully thermalized [21]. We are currently conducting experiments in order to determine the optimal converter material and e^+ energy in terms of *ortho*-Ps yield. Furthermore, we are investigating how well the emitted Ps is thermalized at very low target temperatures.

The photo-excitation of Ps to Rydberg states requires photon energies close to the binding energy of 6.8 eV. Laser systems at the corresponding wavelengths (≈ 180 nm) are not commercially available. We are therefore planning to perform a two-step excitation, from the

ground state to the $n = 3$ state ($\lambda = 205$ nm), and then to the $n = 35$ Rydberg band ($\lambda \approx 1670$ nm). Two pulsed-laser systems, both of which are pumped by a Q-switched Nd:YAG laser (1064 nm, 4 ns, 140 mJ), are currently under development. Both systems must provide sufficient power to excite the emitted Ps within a few ns and must be geometrically matched to the expanding cloud. Furthermore, the bandwidths of the lasers must be tailored to the transition linewidth broadened due to the Doppler effect as well as level splitting due to the motional Stark effect and the linear and quadratic Zeeman effect (the latter three creating the Rydberg band).

An overview sketch of the planned laser setup is shown in Fig. 1. The first system is a dye laser whose optical cavity uses prisms as selective elements in order to produce the large bandwidth required. After up-conversion with a succession of second and third harmonic crystals, the laser will produce 205 nm radiation with pulse energies of ≈ 200 μ J. The second system combines an optical parametric generator with an amplification stage, both of which make use of commercially available periodically poled crystals (*i.e.* materials with birefringent layers in alternating orientation). In these non-linear media, the pump photons are down-converted to an idler and a signal photon (signal wavelength 1600...1700 nm, pulse energy 300 μ J). The wavelengths can be precisely controlled by adjusting the crystal temperature. Due to the broad bandwidth, the coherence time of the second system will be several orders of magnitude shorter than the pulse length. Nevertheless, excitation fractions in the Rydberg band of 30% or higher can be expected.

2.2. Antihydrogen recombination and beam formation

An $\bar{H}$ recombination scheme based on resonant charge exchange with Ps was first proposed almost twenty years ago [22]. The reaction proceeds according to the equation

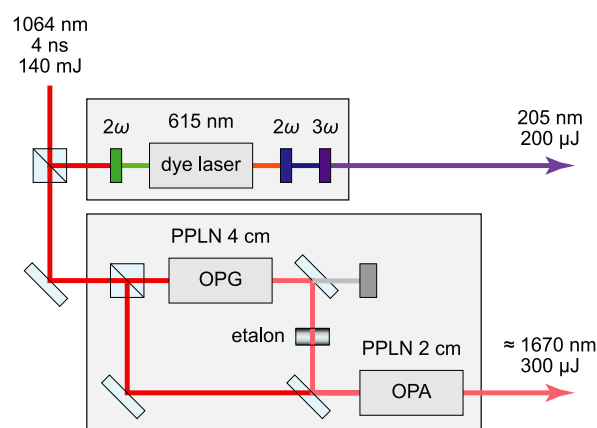


Fig. 1. Laser system for the Rydberg excitation of Ps prior to $\bar{H}$ recombination.

where the star denotes a highly excited Rydberg state. This reaction owes its appeal to the fact that the cross-section scales approximately with the fourth power of the principal quantum number. In addition, it creates $\bar{H}$ in a narrow and well-defined band of final states. Most importantly, $\bar{H}$ formed with $\bar{p}$ at rest is created with a velocity distribution dominated by the $\bar{p}$ temperature, hence the surrounding (cryogenic) environment [23]. This is in stark contrast to the rather high $\bar{H}$ temperature observed when using the nested-well technique pioneered by ATRAP and ATHE-NA [24,25]. Our proposed technique is conceptually similar to a charge exchange technique based on Rydberg cesium [26] which has been successfully demonstrated by ATRAP [27].

The principle is illustrated in Fig. 2. The Ps emitted from the porous insulator material are excited to Rydberg states. They then traverse a Penning trap region in which several 10^4 $\bar{p}$ have been accumulated and stored. The charge exchange cross-section is very large ($\approx 10^7$ Å² for $n = 35$) and reaches a maximum when the e^+ and $\bar{p}$ relative velocities are matched. Taking into account the corresponding kinetic energy, as well as a smaller contribution due to converted internal energy, $\bar{H}$ is created at velocities of $25 \dots 80$ m s⁻¹.

While neutral atoms are not sensitive (to first order) to constant electric fields, they do experience a force when their electric dipole moment is exposed to an electric-field gradient. Since the dipole moment scales approximately with the square of the principal quantum number, Rydberg atoms are especially amenable to being manipulated in this way. This technique is related to the splitting of spectral lines due to the presence of external electric fields (the Stark effect) and is therefore called Stark acceleration.

Recently, Stark acceleration has been successfully demonstrated by one of the AEGIS groups with (ordinary) hydrogen after excitation to the $n = 22, 23, 24$ states [28,29]. In these experiments, accelerations of 2×10^8 m s⁻² were achieved using the electrode geometry shown in Fig. 3. A hydrogen beam traveling at 700 m s⁻¹ was stopped within 5 μs over a distance of only 1.8 mm. We

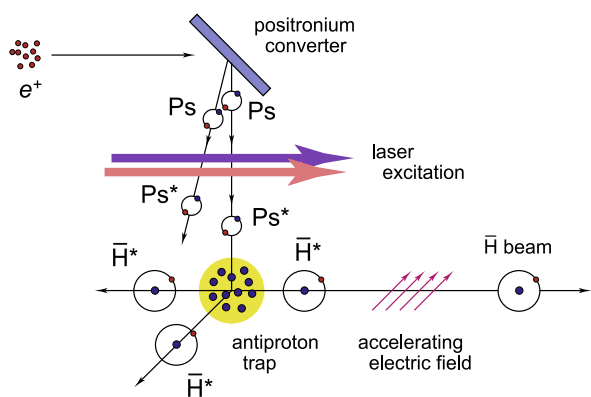


Fig. 2. Proposed method for $\bar{H}$ recombination and subsequent acceleration.

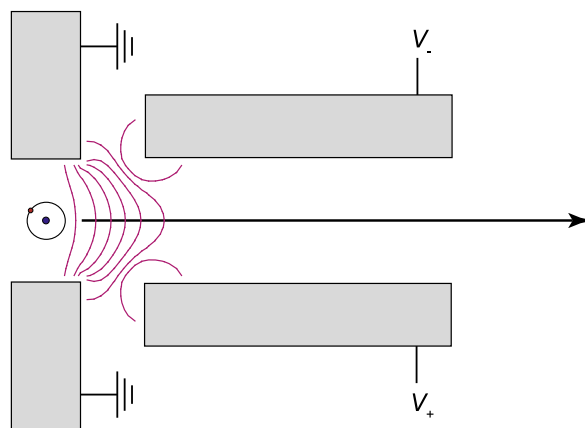


Fig. 3. Electrode geometry and resulting equipotential lines (magenta) as employed for Stark acceleration of Rydberg atoms. (For interpretation of the references to color in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

intend to use a similar electrode configuration, adapted to the cylindrical geometry of a Penning trap, to accelerate the created $\bar{H}$ atoms to about 400 m s⁻¹ in the direction of the deflectometer apparatus. Prior to the beam formation, remaining $\bar{p}$ can be transferred back to the accumulation trap in order to be reused in the next cycle.

2.3. Gravity measurement

In matter wave interferometers of the Mach–Zehnder type [30,31], three identical gratings are placed at equal distances L from each other. The first two gratings produce an interference pattern at the location of the third. That pattern has the same period d as the gratings, and its position perpendicular to the diffracted particle beam can be determined precisely by displacing the third grating and recording the overall transmission with a particle detector. Under the influence of gravity, the interference pattern is vertically displaced (it “falls”) by a distance

$$\delta x = -gT^2, \quad (2)$$

where g is the local gravitational acceleration and T is the time of flight L/v between each pair of gratings of a particle beam traveling at velocity v .

Unlike atomic fountain interferometers, such a device does not necessitate trapped atoms. Furthermore, neither spatial nor temporal coherence of the incoming particle beam are required. Due to these unique features, an anti-matter gravity experiment based on a Mach–Zehnder interferometer was proposed some ten years ago [32]. However, interactions between (anti)-matter waves and material gratings can lead to a number of decoherence effects in matter wave diffraction: quenching of metastable states; deflection of Rydberg states in field gradients; transitions between sub-levels of Rydberg states; and annihilation of anti-atoms on the grating. Furthermore, the technique places a very stringent limit on the acceptable beam divergence,

which must be smaller than the diffraction angle $\phi = \lambda_{dB}/d$, where λ_{dB} is the de Broglie wavelength of the matter wave. All of these limitations can be alleviated by increasing the grating period relative to the de Broglie wavelength. At the point where $d^2/L \gg \lambda_{dB}$, diffraction no longer occurs.

The resulting device is the so-called Moiré deflectometer, in which diffraction on the gratings is replaced by a (classical) shadow pattern of those particles that converge onto the third grating. Interestingly, the gross characteristics of the interferometer are retained [33], in particular, the vertical displacement of the interference pattern according to Eq. (2). A three-grating Moiré deflectometer has been used to measure the local gravitational acceleration to a relative precision of 2×10^{-4} with a beam of argon atoms traveling at an average velocity of 750 m s^{-1} [33]. In departing from the three-grating deflectometer, we intend to replace the third grating by a position-sensitive silicon strip detector (see Fig. 4). Thereby the overall transmission of the apparatus is increased by the inverse of the grid's open fraction (roughly a factor of three).

The value of g is extracted from the primary observables (time of flight T and vertical displacement of the fringe pattern δx) in the following way, as illustrated by Monte-Carlo simulations performed by us: First, the ensemble of all $\bar{H}$ annihilation events on the detector is plotted as a function of T , as shown in Fig. 5(a). These events are binned in symmetric classes of T^2 , one of which is shown shaded in dark blue in the figure. Secondly, the vertical displacement δx of the fringe pattern is extracted for each of the count classes, as illustrated in Fig. 5(b). Thirdly, the vertical displacement for all count classes is plotted against the mean time of flight in the class. A quadratic fit to that graph, as shown in Fig. 5(c), will then yield g . In these simulations, a grating period of $80 \mu\text{m}$ was used, and a finite detector resolution of $10 \mu\text{m}$ was taken into account.

Our simulations have shown that in order to perform a measurement of $\bar{g}$ to 1% relative precision, about $10^5 \bar{H}$

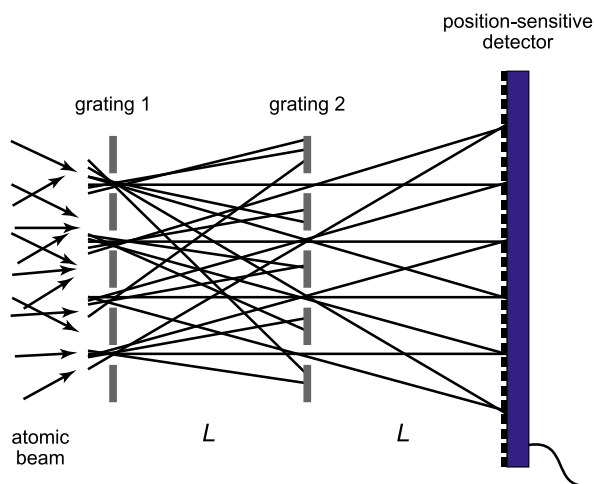


Fig. 4. Principle sketch of the Moiré deflectometry technique with two identical gratings and a position-sensitive detector.

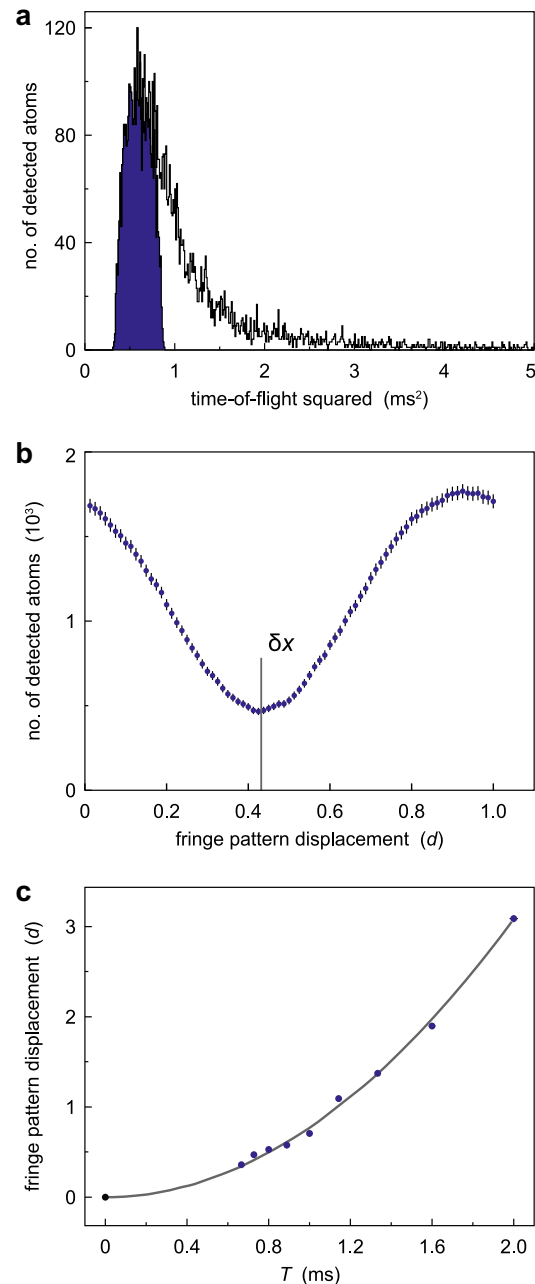


Fig. 5. Analysis of deflectometer data (Monte Carlo simulation): (a) detector events are binned according to time-of-flight count classes, (b) the vertical displacement of the fringe pattern is determined for each count class, and (c) a quadratic fit to the plot of vertical displacement versus mean time of flight yields the local gravitational acceleration g .

atoms at a temperature of 100 mK will be required. This could be achieved within about 2–3 weeks of data taking, assuming the AD beam is shared among four experiments. The grids and detector must be kept precisely aligned for the entire data taking period, which can be achieved by an auxiliary laser beam. The zero position of the vertical

displacement, (*i.e.* in the absence of gravity) is most conveniently obtained by performing a calibration measurement with the gratings and detector rotated by 90° about the beam axis.

3. Conclusion and outlook

In this paper, we have presented the layout of a proposed experiment for the measurement of the gravitational acceleration of antimatter. The AEGIS design is based upon the broad experience gained with the ATHENA and ATRAP experiments at the AD, a series of ongoing tests and developments, as well as extensive simulations of critical processes (charge exchange production of $\bar{\text{H}}$, Stark acceleration and propagation through the Moiré deflectometer, resolution of the position-sensitive detector located at the end of the deflectometer). The proposed gravity measurement becomes feasible by merging in a single experimental apparatus technologies already demonstrated and including some reasonable additional development. The precision of the gravity measurement is mainly limited by the $\bar{\text{H}}$ temperature. Obtaining samples of anti-atoms at 100 mK is therefore an essential requirement for this experiment. Gravity measurements with even higher precision as well as competitive CPT tests through spectroscopy will necessitate the development of novel techniques to attain even colder $\bar{\text{H}}$ ensembles.

The AEGIS proto-collaboration is actively involved in the research and development which is required for overcoming the experimental difficulties in reaching these ambitious goals. The proposed design of our apparatus is modular and readily allows, in a future stage, the insertion of a magnetic trap for $\bar{\text{H}}$, which will be spatially separated from the region where the anti-atoms are produced. The spatial separation between the production and measurement regions, which is already a feature of the setup that we have presented here, differs significantly from the approach chosen by the other $\bar{\text{H}}$ experiments ATRAP [34] and ALPHA [35], which incorporate a trap that simultaneously confines charged and neutral particles. The experience gained in the first phase of AEGIS with the formation of an $\bar{\text{H}}$ beam will be used to optimize the design of a trapping system. In this second phase, trapped $\bar{\text{H}}$ can be laser-cooled to mK temperatures, at which spectroscopic CPT tests with a sensitivity competitive with current limits on CPT violations become feasible.

References

- [1] E.P. Wigner, *Rev. Mod. Phys.* 29 (1957) 255, doi:10.1103/RevModPhys.29.255.
- [2] S. Lem, *Dzienniki gwiazdowe*, Warsaw, Iskry, 1957.
- [3] J.F. Donoghue, *Phys. Rev. D* 50 (1994) 3874, doi:10.1103/PhysRevD.50.3874.
- [4] T.E.O. Ericson, A. Richter, *Europhys. Lett.* 11 (1990) 295, doi:10.1209/0295-5075/11/4/001.
- [5] E.G. Adelberger et al., *Phys. Rev. Lett.* 66 (1991) 850, doi:10.1103/PhysRevLett.66.850.
- [6] M.M. Nieto, T. Goldman, *Phys. Rep.* 205 (1991) 221, doi:10.1016/0370-1573(91)90138-C.
- [7] S. Bellucci, V. Faraoni, *Phys. Rev. D* 49 (1994) 2922, doi:10.1103/PhysRevD.49.2922.
- [8] P. Morrison, *Am. J. Phys.* 26 (1958) 358, doi:10.1119/1.1996159.
- [9] L.I. Schiff, *Phys. Rev. Lett.* 1 (1958) 254, doi:10.1103/PhysRevLett.1.254.
- [10] L.I. Schiff, *Proc. Natl. Acad. Sci.* 45 (1959) 69. <<http://www.pnas.org/cgi/reprint/45/1/69>>.
- [11] R.J. Hughes, M.H. Holzschteier, *Phys. Rev. Lett.* 66 (1991) 854, doi:10.1103/PhysRevLett.66.854.
- [12] B. Heckel et al., *Adv. Space Res.* 25 (2000) 1225, doi:10.1016/S0273-1177(99)00995-3.
- [13] W.M. Fairbank et al., in: B. Bertotti (Ed.), *Proc. Int. School Phys. Enrico Fermi*, Academic Press, New York, 1974, p. 310.
- [14] M.H. Holzschteier et al., *Nucl. Phys. A* 558 (1993) 709c, doi:10.1016/0375-9474(93)90432-W.
- [15] M. Amoretti et al., ATHENA Collaboration, *Nature* 419 (2002) 456, doi:10.1038/nature01096.
- [16] G. Gabrielse et al., ATRAP Collaboration, *Phys. Rev. Lett.* 89 (2002) 213401, doi:10.1103/PhysRevLett.89.213401.
- [17] L.V. Jørgensen et al., ATHENA Collaboration, *Phys. Rev. Lett.* 95 (2005) 025002, doi:10.1103/PhysRevLett.95.025002.
- [18] G. Gabrielse et al., ATRAP Collaboration, *Phys. Lett. B* 548 (2002) 140, doi:10.1016/S0370-2693(02)02850-2.
- [19] D.W. Gidley, H.-G. Peng, R.S. Vallery, *Annu. Rev. Mater. Res.* 36 (2006) 49, doi:10.1146/annurev.matsci.36.111904.135144.
- [20] C.G. Fischer, *Phys. Rev. B* 71 (2005) 180102R, doi:10.1103/PhysRevB.71.180102.
- [21] R.S. Vallery, P.W. Zitzewitz, D.W. Gidley, *Phys. Rev. Lett.* 90 (2003) 203402, doi:10.1103/PhysRevLett.90.203402.
- [22] M. Charlton, *Phys. Lett. A* 143 (1990) 143, doi:10.1016/0375-9601(90)90665-B.
- [23] B.I. Deutch et al., *Hyperfine Interact.* 76 (1993) 153, doi:10.1007/BF02316714.
- [24] G. Gabrielse et al., ATRAP Collaboration, *Phys. Rev. Lett.* 93 (2004) 073401, doi:10.1103/PhysRevLett.93.073401.
- [25] N. Madsen et al., ATHENA Collaboration, *Phys. Rev. Lett.* 94 (2005) 033403, doi:10.1103/PhysRevLett.94.033403.
- [26] E.A. Hessels, D.M. Homan, M.J. Cavagnero, *Phys. Rev. A* 57 (1998) 1668, doi:10.1103/PhysRevA.57.1668.
- [27] C.H. Storry et al., ATRAP Collaboration, *Phys. Rev. Lett.* 93 (2004) 263401, doi:10.1103/PhysRevLett.93.263401.
- [28] E. Vliegen, F. Merkt, *J. Phys. B* 39 (2006) L241, doi:10.1088/0953-4075/39/11/L03.
- [29] E. Vliegen et al., *Phys. Rev. A* 76 (2007) 023405, doi:10.1103/PhysRevA.76.023405.
- [30] L. Zehnder, *Z. Instrumentenkunde* 11 (1891) 275.
- [31] L. Mach, *Z. Instrumentenkunde* 12 (1892) 89.
- [32] T.J. Phillips, *Hyperfine Interact.* 109 (1997) 357, doi:10.1023/A:1012686324139.
- [33] M.K. Oberthaler et al., *Phys. Rev. A* 54 (1996) 3165, doi:10.1103/PhysRevA.54.3165.
- [34] G. Gabrielse et al., ATRAP Collaboration, *Phys. Rev. Lett.* 98 (2007) 113002, doi:10.1103/PhysRevLett.98.113002.
- [35] G. Andresen et al., ATRAP Collaboration, *Phys. Rev. Lett.* 98 (2007) 023402, doi:10.1103/PhysRevLett.98.023402.

Improved LeRoy–Bernstein near-dissociation expansion formula, and prospect for photoassociation spectroscopy

Daniel Comparat^{a)}

Laboratoire Aimé Cotton, CNRS II, Bât. 505, Campus d'Orsay, 91405 Orsay cedex, France

(Received 27 May 2003; accepted 26 September 2003)

NDE (Near-dissociation expansion) including LeRoy–Bernstein formulas are improved by taking into account the multipole expansion coefficients and the nonasymptotic part of the potential curve. The theory is tested with the Rydberg–Klein–Rees (RKR) potential curve of the $\text{Cs}_2(0_g^-\{6s+6p_{3/2}\})$ state. Results indicate that the formula could be used to improve the determination of the asymptotic coefficient (within a 1% accuracy) and to extract relativistic correction from photoassociation spectra of long-range potential curve of diatomic molecules. © 2004 American Institute of Physics. [DOI: 10.1063/1.1626539]

I. INTRODUCTION

The interaction between two distant atoms has been first studied by van der Waals and London (for review see Ref. 1). This topic is often discussed as a limiting case between the Hund case (a) and (c).^{2,3} The study of such excitation transfers^{4,5} are related to long-range molecular states, where the electronic potential $V(R)$ is fully described by the asymptotic coefficients [LeRoy and Bernstein and some other authors use $V(R) \approx D - \sum_k (C_k/R^k)$].

$$V(R) \approx D + \sum_k \frac{C_k}{R^k}, \quad (1)$$

for sufficiently large internuclear distance R .⁶ Among these long-range states Stwalley *et al.*⁷ discovered very particular molecular states: The so-called “pure long-range state,” where both classical turning points are in this asymptotic area. Great efforts have been devoted to the precise calculations of the asymptotic coefficients C_k .^{3,8,9}

Semiclassical formulas in diatomic molecular spectroscopy are powerful tools (for a brief review see Refs. 10 and 11). Several molecular properties as rotational or vibrational progression and kinetic energy are strongly determined by the leading terms in Eq. (1)

$$V(R) \approx D + \frac{C_n}{R^n} + \frac{C_m}{R^m} + \dots, \quad (2)$$

where $m > n$. In the course of this article we shall suppose $n > 2$. In 1970, LeRoy and Bernstein¹² pioneer work, based on the Bohr quantization formula, made possible to extract the leading coefficient C_n from experimental vibrational progression. The LeRoy–Bernstein formula links the energy E of the vibrational quantum number v with the asymptotic behavior $D + C_n/R^n$ of the potential curve

$$E \approx D - \left[(v_D - v) \times \left(\sqrt{\frac{\pi}{2\mu}} \frac{\Gamma(1+1/n)}{\Gamma(1/2+1/n)} \frac{\hbar(n-2)}{(-C_n)^{1/n}} \right) \right]^{2n/n-2}, \quad (3)$$

where μ is the reduced mass of the system and v_D is the noninteger value of v at the dissociation energy D . This kind of near-dissociation expansion (NDE) semiclassical formula was extended to the rotational progression¹³ and the kinetic energy.¹⁴ The technique was also improved to include other coefficients in the asymptotic development¹⁵ and a quasi-complete NDE theory was established.¹⁶ The subject is still in progress: Links with quantum defect theory, scaling law for the density probability of presence of the vibrational wave function,^{11,17} and extension to two coupled channels and Lu-Fano plots have been successfully investigated.^{18,19} The goal of this article is to improve part of the NDE theory.

Experimental studies of the long-range states have recently been renewed by the photoassociation (PA) spectroscopy of trapped cold atomic samples. Trapping and cooling of neutral atomic samples, based on radiation pressure, are well established techniques²⁰ that led to further spectroscopic developments. For instance, in 1987, Thorsheim *et al.*²¹ proposed a new spectroscopic technique: The photoassociation process where a pair of free cold atoms absorbs resonantly one photon and produces an excited molecule in a well-defined ro-vibrational level. The first experiments were realized in 1993 in sodium and rubidium. Since these pioneer works all the alkali atoms (Li, Na, K, Rb, and Cs) (for a review see Refs. 22 and 23) then hydrogen,²⁴ metastable helium,²⁵ calcium,²⁶ and ytterbium²⁷ have been photoassociated. Preliminary results for heteronuclear alkali systems have also been reported.^{28,29,68}

In a dilute medium, as the one present in the magneto-optical trap, the probability to find two atoms at a distance R is proportional to $4\pi R^2 e^{-V(R)/k_B T}$. Consequently as PA is a collisional process it is efficient only at large interatomic distance R . Therefore, PA is particularly well adapted to the study of long-range molecular states.

^{a)}Electronic mail: daniel.comparat@lac.u-psud.fr

Because of the extremely narrow continuum energy distribution (on the order of $k_B T$), the photoassociation free-bound transition between the two free cold atoms ($T \approx 100 \mu\text{K}$) and the rovibrational excited states is resolved at the MHz range ($k_B T \approx h \times 2 \text{ MHz}$). This leads to an extremely precise spectroscopy.²³ The kHz range has been achieved in rubidium starting with an atomic Bose–Einstein condensate.³⁰ New available precise data from PA spectroscopy have stimulated the theoretical determination of more precise values for the asymptotic coefficients.^{31–33}

We shall present here new useful simple analytical formulas to extract the leading coefficient C_n of the multipolar expansion within a 1% precision. To illustrate the importance of such a calculation, let us mention that this term occurs in the expression of atomic lifetime τ of the first excited p level of a dialkali molecule

$$\tau = \frac{3\hbar c^3}{4|C_3|\omega_{\text{at}}^3}, \quad (4)$$

where $\hbar\omega_{\text{at}}$ is the energy difference between the p excited atomic state and the s ground state. Indeed, a precise τ value was obtained using a pure long-range expansion of the $0_g^-(s+p_{3/2})$ potential curve of dialkalis.^{34–37}

This article is organized as follows. Section II is devoted to the fully detailed derivation of a first improved LeRoy–Bernstein formula using three new estimations, respectively, for the asymptotic part, for the repulsive branch part and for the intermediate part of the potential curve $V(R)$. In Sec. III we take into account the next multipole coefficient C_m . The main results are summarized in Sec. III C with the semiclassical NDE expressions (34). We finally obtain the improved LeRoy–Bernstein formulas (35) and (39). We test these results in Sec. IV on the R.K.R. potential of the $0_g^-(6s+6p_{3/2})$ state of the cesium dimer (where $n=3$ and $m=6$). In Sec. V we shall discuss how to derive formula (2) for all dialkali molecule, so that this theory could easily be used with other long-range states. We shall add in the well known theory of Hund's case (c) potential curves a new relativistic correction linked with the atomic lifetime. Some prospects for future works will be given. Indeed, one goal of this article is to give a theoretical background helping people interested in using our new simple analytical NDE formula in the interpretation of photoassociation data.

II. IMPROVED LEROY–BERNSTEIN THEORY

One of the simplest way to assign a given spectrum with a molecular potential curve is to isolate its vibrational progression and to extract an experimental C_n coefficient, and then compare it to theoretical prediction. This popular method makes use of the analytical semiclassical LeRoy–Bernstein formula (3), that we propose here to improve.

A. BKW assumption

We use the Jeffreys, Brillouin, Kramers, and Wentzel [(J)BKW] semiclassical method and the Bohr quantization condition (e.g., see Ref. 38) for the vibrational level v at energy $E=E_v$ of a reduced mass μ particle moving in a potential $V(R)$

$$v + \frac{1}{2} = \frac{\sqrt{2\mu}}{\pi\hbar} \int_{R_-}^{R_+} \sqrt{E - V(R)} dR, \quad (5)$$

$R_-(E_v)$ and $R_+(E_v)$ are, respectively, the inner and outer classical turning point of the vibrational motion ($V(R_-) = V(R_+) = E$). At the dissociation limit $E=D$ the noninteger vibrational number v results of the formula is noted v_D .

For levels very close to the dissociation limit, the quantization condition is still a controversial subject.^{39–42} For instance, it has been shown⁴³ that Bohr quantification condition should be modified for energy equal to the dissociation limit by adding a $1/2(n-2)$ term at the $v+1/2$ one. But, the modification is of noticeable importance only for the few last levels (typically within less than 10 GHz energy range from the dissociation limit) of the potential.⁴⁴ In this energy range relativistic retardation effects or hyperfine structure appear and it is no more realistic to use the LeRoy–Bernstein formula. Nevertheless, if needed we can furthermore improve formula (5) by taking into account such corrective terms or by using the third-order semiclassical theory¹⁰ adding a $(\hbar/48\pi\sqrt{2\mu}) \int_{R_-}^{R_+} ([\partial^2 V(R)/\partial R^2]/[E - V(R)]^{3/2}) dR$ term in the quantization formula.

However, as reported in Ref. 11, the relative BKW accuracy is on the order of

$$|E_v^{\text{BKW}} - E_v^{\text{real}}|/E_v^{\text{real}} \lesssim \frac{1}{\pi^2 v^2}.$$

Thus, for levels close to the dissociation limit where typically $v=100$, there is no need to improve the usual Bohr quantization condition to reach the 1% accuracy we are looking for. Consequently, in the following, we shall use the usual Bohr quantification condition (5) and we shall see that other assumptions are less accurate than this one.

B. Role of the nonasymptotic part

We define a “cut-off” outer-turning point R_+^c where the potential V can be written as

$$V(R) \approx D + \frac{C_n}{R^n}, \quad (6)$$

within a given precision. The potential $V(R)$ and its asymptotic limit are represented in Fig. 1. Our goal is to reach a 1% precision then, if needed, R_+^c could be defined as

$$0.01 \frac{|C_n|}{(R_+^c)^n} = \frac{|C_m|}{(R_+^c)^m}. \quad (7)$$

With typical values as $n=3$, $m=6$, $|C_3|=10 e^2 a_0^2$ and $|C_6|=10000 e^2 a_0^5$, we obtain $R_+^c \approx 45 a_0$ [where $a_0 \approx 5.29 \times 10^{-11} \text{ m}$ and $e^2 = q_e^2/(4\pi\epsilon_0)$].

It is now possible to separate the nonasymptotic part from the asymptotic part ($R > R_+^c$). Taking the derivative of expression (5), we obtain (we use $x=R/R_+$)

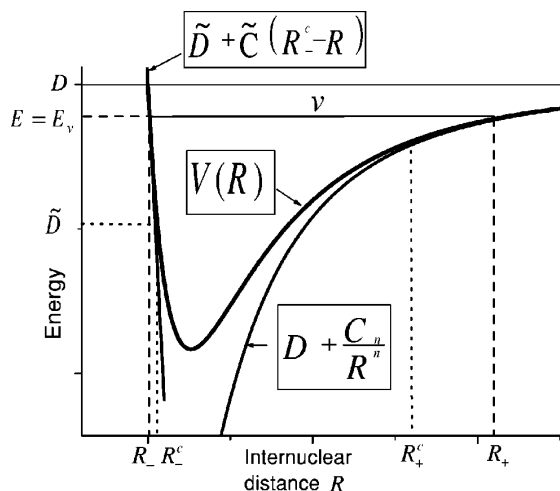


FIG. 1. The potential $V(R)$ and the asymptotic potential $D + C_n/R^n$. Both potentials coincide when R is larger than the “cut-off” R_+^c . The repulsive branch is model by a linear formula for $R \leq R_-^c$.

$$\frac{dv}{dE} = \frac{\sqrt{2\mu}}{2\pi\hbar} \frac{(-C_n)^{1/n}}{(D-E)^{(n+2)/2n}} \int_{R_+^c/R_+}^1 \frac{x^{n/2}}{\sqrt{1-x^n}} dx + \underbrace{\frac{\sqrt{2\mu}}{2\pi\hbar} \int_{R_-^c}^{R_+^c} \frac{1}{\sqrt{E-V(R)}} dR}_{(dv/dE)^{n.a.}} = \frac{1}{\hbar\omega}, \quad (8)$$

where the subscript n.a. is for nonasymptotic and ω is the classical angular frequency of the vibrational motion.

A physical insight on the role of the nonasymptotic part can be obtained considering the classical definitions of the velocity V and the momentum p :

$$V = \frac{p}{\mu} = \frac{\sqrt{2\mu(E-V(R))}}{\mu}.$$

Equation (8) can then be written as $(dv/dE) \propto \int_{R_-^c}^{R_+^c} (1/V) dR$. We can see in Fig. 1 that the motion time is largely dominated by the asymptotic part of the potential given by formula (6). This classical discussion tells us that $(dv/dE)^{n.a.} \ll dv/dE$ for levels close to the dissociation limit. The next step is then to restrict ourselves to the levels close to the dissociation limit.

C. Near the dissociation limit

1. Correction in the asymptotic part

For levels close to the dissociation limit we have the following inequality: $y = R_+^c/R_+ \ll 1$. We can then write:

$$\begin{aligned} \int_y^1 \frac{x^{n/2}}{\sqrt{1-x^n}} dx &= \int_0^1 \frac{x^{n/2}}{\sqrt{1-x^n}} dx - \int_0^y \frac{x^{n/2}}{\sqrt{1-x^n}} dx \\ &= \frac{\sqrt{\pi}}{n} \frac{\Gamma(1/2+1/n)}{\Gamma(1+1/n)} - \frac{2}{n+2} y^{n+2/2} \\ &\quad \times \left(1 + \frac{n+2}{6n+4} y^n + \dots \right) \\ &\approx \frac{\sqrt{\pi}}{n} \frac{\Gamma(1/2+1/n)}{\Gamma(1+1/n)} \\ &\quad - \frac{2}{n+2} (R_+^c)^{n+2/2} \left(\frac{-C_n}{D-E} \right)^{-n+2/2n}, \quad (9) \end{aligned}$$

where the second line is obtained by doing a Taylor expansion of the denominator term in the second integral. The main term (the only one taken into account in the “usual” LeRoy–Bernstein law derivation) and the first correction term has been kept in the third line. This correction term brings a real improvement. Indeed, if in the last formula only the main term is kept, we need to take $R_+ = 5R_+^c$ ($y = 1/5$) to obtain the integral (9) value at a 1% level. Consequently, with $R_+^c \approx 45a_0$, reaching a 1% accuracy level with the usual LeRoy–Bernstein formula requires to use levels with $R_+ > 200a_0$ where the Bohr quantization problems occur. On the contrary, when using both terms, taking $R_+ = 1.6R_+^c$ is enough to reach the same precision level.

2. Repulsive branch

To express the nonasymptotic part in formula (8), we will give an estimation of its value using an analytical model for the inner wall shape of the potential curve. We will see later that the exact form of this repulsive part is not crucial. Therefore, we have chosen to use a simple linear approximation of the inner wall (other models as an inner wall potential with a $1/R$ behavior do also lead to simple formulas). We use three energy independent parameters: Another cut-off R_-^c (as indicated in Fig. 1) and two parameters $\tilde{D}$ and $\tilde{C}$ such that (within typical few percents accuracy):

$$V(R) \approx \tilde{D} + \tilde{C}(R_-^c - R), \quad (10)$$

The nonasymptotic integral in formula (8) can then be splitted in two integrals, using $\int_{R_-^c}^{R_+^c} = \int_{R_-^c}^{R_-^c} + \int_{R_-^c}^{R_+^c}$. The first integral is computed analytically using formula (10) [with $E = V(R_-)$]

$$\begin{aligned} \int_{R_-^c}^{R_+^c} \frac{1}{\sqrt{E-V(R)}} dR &= \frac{2\sqrt{E-\tilde{D}}}{\tilde{C}} \approx \frac{2\sqrt{D-\tilde{D}}}{\tilde{C}} \\ &= \int_{R_-(D)}^{R_-^c} \frac{1}{\sqrt{D-V(R)}} dR. \quad (11) \end{aligned}$$

We have, in the middle expression, used the approximation $E - \tilde{D} \approx D - \tilde{D}$ justified for levels close to the dissociation limit (see Fig. 1). Better accuracy could be achieved by keep-

ing E in expression (11). The final expression is independent of R_-^c , $\tilde{D}$ and $\tilde{C}$ and, as mentioned above, do not depend on the model chosen for the inner wall.

3. Intermediate region

For the second integral $\int_{R_-^c}^{R_+^c}$, we use the assumption $E - V(R) \approx D - V(R)$ that is valid in the intermediate region $R_-^c < R < R_+^c$ (see Fig. 1). Thus, this second integral becomes simply a number and does not vary with E . If needed, it can be computed using, for instance, a model potential like Morse, Lennard-Jones, or a quadratic one. Finally for a level close to the dissociation limit, using expression (11), the non asymptotic part becomes:

$$\left(\frac{dv}{dE}\right)^{\text{n.a.}} \approx \frac{\sqrt{2\mu}}{2\pi\hbar} \left[\frac{2\sqrt{D-\tilde{D}}}{\tilde{C}} + \int_{R_-^c}^{R_+^c} \frac{1}{\sqrt{D-V(R)}} dR \right] \\ = \frac{\sqrt{2\mu}}{2\pi\hbar} \int_{R_-(D)}^{R_+^c} \frac{1}{\sqrt{D-V(R)}} dR. \quad (12)$$

D. Improved LeRoy-Bernstein formula

Using formula (9) in Eq. (8) and integrating it by using expression (12) leads to the improved formula

$$v_D - v \approx H_n^{-1} (D-E)^{(n-2)/2n} + \gamma (D-E), \quad (13)$$

where

$$H_n^{-1} = \sqrt{\frac{2\mu}{\pi}} \frac{(-C_n)^{1/n}}{\hbar(n-2)} \frac{\Gamma\left(\frac{n+2}{2n}\right)}{\Gamma\left(\frac{n+1}{n}\right)}, \quad (14)$$

and γ is an extra parameter strongly related to R_+^c defined as follows:

$$\gamma = -\frac{\sqrt{2\mu}}{(n+2)\pi\hbar} (-C_n)^{-1/2} (R_+^c)^{(n+2)/2} \\ + \frac{\sqrt{2\mu}}{2\pi\hbar} \int_{R_-(D)}^{R_+^c} \frac{1}{\sqrt{D-V(R)}} dR. \quad (15)$$

Formula (13) is a very simple one because the two terms in formula (15) match the same $D-E$ behavior in formula (13).

As $v_D - v$ does not depend on R_+^c , expression (13) shows that γ should also be independent of R_+^c . As a consequence [see expression (15)], the nonasymptotic part [from $R_-(D)$ to R_+^c] should follow a $(R_+^c)^{(n+2)/2}$ behavior. This is not fully satisfactory as the nonasymptotic part should not depend on the value of n which is a purely asymptotic parameter. This kind of trouble occurs whenever a cutoff is present in any theory. To prevent this caveat, we have hidden the cut-off R_+^c inside the only parameter γ . Thus, the final formula (13) is no more depending on the cut-off value R_+^c .

Considering the added term $\gamma(D-E)$ as a perturbation, it is possible to reverse the formula (13) leading to our first improved formula:

$$D-E \approx \left(\frac{v_D-v}{H_n^{-1}}\right)^{2n/(n-2)} \left[1 - \frac{2n}{n-2} \gamma \left(\frac{v_D-v}{H_n^{-1}}\right)^{2n/(n-2)-1}\right]. \quad (16)$$

The LeRoy-Bernstein formula is then improved by simply adding one term depending on a single coefficient γ that can be used as a parameter in a fit procedure. We will see in Sec. IV how this formula improves the fit to the experimental energies values.

III. OTHER MULTIPOLE EXPANSION COEFFICIENTS: GENERAL FORMULAS

A. General NDE formulas

To improve the accuracy of the LeRoy-Bernstein formula further, we can add other multipole expansion coefficients as in formula (2). The cut-off R_+^c is then redefined so as to obtain with a typical 10% accuracy

$$V(R) \approx D + \frac{C_n}{R^n} + \frac{C_m}{R^m}, \quad (17)$$

To be more general, let us notice with LeRoy¹⁰ that the vibrational progression in $v_D - v$, the rotational constant B_v , the kinetic energy T , other BKW expressions of higher order, or higher rotational constants as D_v , can be derived from the integrals $I_{k,l}^{i,j}$:

$$I_{k,l}^{i,j}(E) = \int_{R_-(E)}^{R_+(E)} \frac{\left(\frac{\partial^j V(R)}{\partial R^j}\right)^j}{R^l (E-V(R))^{k+1/2}} dR. \quad (18)$$

The derivative of $I_{k,l}^{i,j}$ relative to E is equal to $-(k+1/2)I_{k+1,l}^{i,j}$. Thus, the NDE expression can be calculated only for the $k=0$ case: $I_{0,l}^{i,j}$. The method goes as follows.

As a first step, we separate the integral $\int_{R_-}^{R_+}$ in three parts $\int_{R_-}^{R_-^c} + \int_{R_-^c}^{R_+^c} + \int_{R_+^c}^{R_+}$. The first integral is analytically calculated using the linear expression (10) for V . Using $1/\sqrt{E-V(R)} \approx 1/\sqrt{D-V(R)}$ in the intermediate region, we compute the second integral as a simple number, independent of E . If we use the same assumption as in formula (11) the first two integrals, symbolically written as $I_l^{\text{n.a.}}(E)$, can be approximate by the number $I_l^{\text{n.a.}}(D)$. In the asymptotic region (third integral), where V is given by the polynomial multipole development (17), the numerator in expression (18) is just a R^l in the denominator. Finally, we need to calculate only a single expression:

$$I_l^{\text{a}}(E) = \int_{R_+^c}^{R_+(E)} \frac{1}{R^l \sqrt{E-V(R)}} dR, \quad (19)$$

the superscript “a” is for “asymptotic” and we use similar notations as Ref. 15. We will only consider the case $0 \leq l \leq 2$.

To calculate $I_l^{\text{a}}(E)$ we shall follow the same kind of modification used in the previous section. The detailed computation is given in the next section and is based on first-

order correction in $\alpha_c = (C_m/(R_+^c)^m)/(C_n/(R_+^c)^n)$. If you are not interested in the details the final result is given in the Sec. III C.

B. Derivation of the improved NDE and LeRoy–Bernstein formula

We define:

$$x = R/R_+,$$

$$y = \frac{R_+^c}{R_+}, \quad (20)$$

$$\alpha(R) = \frac{C_m/R^m}{C_n/R^n} = \alpha_c(y/x)^{m-n},$$

where

$$\alpha_c = \alpha(R_+^c) \quad (21)$$

and

$$\alpha = \alpha(R_+) = \alpha_c y^{m-n}. \quad (22)$$

$C_m/R^m \ll C_n/R^n$ in the asymptotic region ($R > R_+^c$) is equivalent as saying that $\alpha_c \ll 1$. This inequality can be assured by a right choice of R_+^c . We shall then use a development in Taylor series about $\alpha_c = 0$. We define the “zero”-order parameters:

$$y_0^n = \frac{D-E}{(-C_n)/(R_+^c)^n}, \quad (23)$$

$$\alpha_0 = \alpha_c y_0^{m-n} = \frac{C_m}{C_n} \left(\frac{D-E}{-C_n} \right)^{m-n/n}. \quad (24)$$

Then expression (17) becomes

$$V(R) \approx D + \frac{C_n}{R^n} (1 + \alpha(R)),$$

and equation $E = V(R_+)$ leads to the following implicit equation for y :

$$y^n (1 + \alpha_c y^{m-n}) = y_0^n. \quad (25)$$

Using $\beta = (n+2-2l)/2n > 0$, Eq. (19) is easily written as

$$I_l^a = (-C_n)^{-1/2} \left(\frac{R_+^c}{y} \right)^{n\beta} \times \int_y^1 \frac{x^{n/2-l}}{\sqrt{1-x^n}} \frac{1}{\sqrt{1+\alpha(R) \frac{1-x^m}{1-x^n}}} dx. \quad (26)$$

The derivation is quite similar to that of Eq. (8). As $0 \leq x \leq 1$, we have $1 \leq (1-x^m)/(1-x^n) \leq m/n$. As a consequence, the second term in the second square root is a perturbative one [because $\alpha(R) \leq \alpha_c \ll 1$], so we can expand the inverse of the square root in its converging Taylor series

$$I_l^a = (-C_n)^{-1/2} \left(\frac{R_+^c}{y^n} \right)^\beta \sum_{k=0}^{\infty} \binom{-1/2}{k} \times (\alpha_c y^{m-n})^k T_{l,k}^{n,m}(y^n), \quad (27)$$

where $\binom{-1/2}{k} = (-1/2)(-1/2-1)\dots(-1/2-k+1)/k!$, using $u = x^n$ and:

$$T_{l,k}^{n,m}(y^n) = \frac{1}{n} \int_{y^n}^1 \frac{u^{\beta-1-k(m-n)/n} \left(\frac{1-u^{m/n}}{1-u} \right)^k}{\sqrt{1-u}} du. \quad (28)$$

We use similar notations as in LeRoy's paper.¹⁵ However, in his computation $y=0$ is fixed before expanding into Taylor series in α . This is not justified because formula (22) indicates $\alpha \rightarrow 0$ when $y \rightarrow 0$. This explains why Ref. 15 deals with diverging integrals $T_{l,k}^{n,m}(0)$. On the contrary, we isolate here the dependence in a constant term α_c and we take into account the fact that α is y dependent, leading to converging integrals $T_{l,k}^{n,m}(y^n)$. Furthermore, LeRoy cannot deal with $\alpha < 0$ (i.e., $C_m < 0$), as we do in Sec. IV A.

Equation (9) has shown that

$$T_{l,0}^{n,m}(y^n) = \frac{B(\beta, 1/2)}{n} - \frac{y^{n\beta}}{n\beta} (1 + O(y^n)), \quad (29)$$

with the Euler Beta functions:

$$B(a, b) = \int_0^1 u^{a-1} (1-u)^{b-1} du; \quad a, b > 0$$

$$= \frac{\Gamma(a)\Gamma(b)}{\Gamma(a+b)} = \frac{a+b}{a} B(a+1, b). \quad (30)$$

Similarly we have to expand the integral (28) into a series about $y^n=0$ and then calculate the integral from 0 to 1. Inserting $1 = (1-u) + u$ and integrating by parts, we obtain the first term of the asymptotic series about $y^n=0$:

$$T_{l,1}^{n,m}(y^n) = \frac{1 + O(y^n)}{n} \times \begin{cases} -\frac{y^{n\delta}}{\delta} & \text{if } \delta < 0 \\ -\ln y^n & \text{if } \delta = 0 \\ (1-2\delta)B\left(\delta, \frac{1}{2}\right) + 2\beta B\left(\beta, \frac{1}{2}\right) & \text{if } \delta > 0, \end{cases} \quad (31)$$

with

$$\delta = \beta + \frac{n-m}{n} = \frac{3n-2m-2l+2}{2n}.$$

The case $\delta=0$, for instance for the set of values $(n, m, l) = (4, 5, 2)$ or $(6, 10, 0)$, is a quite interesting case due to a logarithmic term which has (to my knowledge) never been taken into account in any kind of NDE theory.

Let us focus hereafter on the first-order correction in α_c . Equation (25) leads to $y^n \approx y_0^n (1 - \alpha_0)$ and the formula (27) becomes

$$I_l^a = (-C_n)^{-1/2} \left(\frac{(R_+^c)^n}{y_0^n} \right)^\beta \times \left[(1 + \beta \alpha_0) T_{l,0}^{n,m} (y_0^n (1 - \alpha_0)) - \frac{1}{2} \alpha_0 T_{l,1}^{n,m} (y_0^n) \right], \quad (32)$$

where we have to consider only terms in formulas (29) and (31) without the $O(y^n)$ term. We have neglected terms that would be a part of the correction in the second order in α_c , and would lead to an explicit dependence of the NDE formulas on the cut-off R_+^c (which then will not be hidden any longer in a γ type term).

Finally, with those choices, the full (nonasymptotic) formula reads:

$$I_l \approx (-C_n)^{-1/2} \frac{B(\beta, 1/2)}{n} \left(\frac{D-E}{-C_n} \right)^{-\beta} + \left(I_l^{n,a}(D) - (-C_n)^{-1/2} \frac{(R_+^c)^{n\beta}}{n\beta} \right) + \frac{(-C_n)^{-1/2}}{n} \frac{C_m}{C_n} \left(\frac{D-E}{-C_n} \right)^{-\delta} \left[\beta B\left(\beta, \frac{1}{2}\right) + \begin{cases} \frac{1}{2\delta} \left(\frac{D-E}{-C_n/(R_+^c)^n} \right)^\delta & \text{if } \delta < 0 \\ \frac{1}{2} \ln(D-E) + \frac{1}{2} \ln \frac{(R_+^c)^n}{-C_n} & \text{if } \delta = 0 \\ (\delta - \frac{1}{2}) B(\delta, \frac{1}{2}) - \beta B(\beta, \frac{1}{2}) & \text{if } \delta > 0 \end{cases} \right]. \quad (33)$$

Before summarizing the results it might be useful to mention, at first glance, our strategy might not be the best one. Indeed, we know that $y = R_+^c/R_+$ is not necessarily small (but y^n will be). It might be better to approximate the integrals (28) by Pade series in y^n than by Taylor series. Another method would be to obtain an analytical solution for the integral (19), using, for instance, a third term (as, for instance, $-C_m^2/(C_n R^{2m-n})$) in the multipole expansion (17). However, as we shall see in Sec. IV A, it is difficult to improve the theory presented here without adding an extra (unknown) parameter in the final formula.

C. Summary

The complete (nonasymptotic) formula (33) concerning $I_l(E) = \int_{R_-(E)}^{R_+(E)} (1/[R^l \sqrt{E-V(R)}]) dR$ can be written in a more useful and compact form:

$$I_l \approx (-C_n)^{-1/2} \frac{B(\beta, 1/2)}{n} \left(\frac{D-E}{-C_n} \right)^{-\beta} + \gamma_\delta + \frac{(-C_n)^{-1/2}}{n} \frac{C_m}{C_n} \left(\frac{D-E}{-C_n} \right)^{-\delta} \times \begin{cases} \beta B(\beta, \frac{1}{2}) & \text{if } \delta < 0 \\ \frac{1}{2} \ln(D-E) & \text{if } \delta = 0 \\ (\delta - \frac{1}{2}) B(\delta, \frac{1}{2}) & \text{if } \delta > 0, \end{cases} \quad (34)$$

where $\delta = \beta + (n-m)/n = (3n-2m-2l+2)/2n$. γ_δ groups all the terms independent of the energy as the nonasymptotic ones. γ_δ depends on C_n, C_m, R_+^c but it should be considered just as an extra parameter. $B(a, b) = \Gamma(a)\Gamma(b)/\Gamma(a+b)$ are Euler Beta functions.

Ignoring the γ_δ term we recover LeRoy theory (for $C_m/C_n > 0$ and $\delta > 0$).¹⁵ Choosing $\gamma_\delta = C_m = 0$ we recover the usual ("non"improved) NDE formulas.

D. Vibration

We shall first develop an example of vibrational progression $v = (\sqrt{2\mu/\pi\hbar}) I_{-1,0}^{0,0} - 1/2$, it is nothing else than formula (5). The NDE development for $v_D - v$ is given by integrating the differential equation: $dv/dE = (\sqrt{2\mu/2\pi\hbar}) I_0$, leading to:

$$v_D - v \approx \frac{\sqrt{2\mu}}{2\pi\hbar} (-C_n)^{\beta-1/2} \frac{B(\beta, 1/2)}{n} \frac{(D-E)^{1-\beta}}{1-\beta} + \tilde{\gamma}_\delta (D-E) + \frac{\sqrt{2\mu}}{2\pi\hbar} \frac{(-C_n)^{\delta-1/2}}{n} \frac{C_m}{C_n} \frac{(D-E)^{1-\delta}}{1-\delta} \times \begin{cases} \beta B(\beta, \frac{1}{2}) & \text{if } \delta < 0 \\ \frac{1}{2} \ln(D-E) & \text{if } \delta = 0 \\ (\delta - \frac{1}{2}) B(\delta, \frac{1}{2}) & \text{if } \delta > 0, \end{cases} \quad (35)$$

where, for instance, $\tilde{\gamma}_\delta = (\sqrt{2\mu/2\pi\hbar}) \gamma_\delta$ for $\delta \neq 0$.

E. Rotation

Using the expression of the averaged semiclassical probability of presence (e.g., see Ref. 38) for the radial wave function $\psi_v: \omega\mu/\pi\sqrt{2\mu(E-V(R))}$, and expression for ω using formula (8), we derive the NDE analytical expression for the rotational constant $B_v = (\hbar^2/2\mu) \langle \psi_v | 1/R^2 | \psi_v \rangle$ ¹³

$$B_v = \frac{\hbar^2}{2\mu} \frac{I_2}{I_0}. \quad (36)$$

It is well known that this formula is less accurate than formula (3) for the vibrational progression. Indeed, we had to neglect in the nonasymptotic region (i.e., for small R values) the $1/R^2$ term in the B_v calculation. Falcetta *et al.*⁴⁵ have already improved the basic formula by adding a first-order linear correction in $v_D - v$. This is quite similar to our $\tilde{\gamma}_\delta$ term. Our improved formula (34) should also improve further by taking into account the C_m coefficient.

1324 J. Chem. Phys., Vol. 120, No. 3, 15 January 2004

Daniel Comparat

F. Kinetic energy

Similarly, we can compute in a similar way the average kinetic energy $\langle T \rangle = \langle \psi_v | E - V(R) | \psi_v \rangle^{14}$

$$\langle T \rangle = \frac{1}{2} \frac{(v+1/2)}{\frac{dv}{dE}(E)} = \frac{\pi \hbar}{\sqrt{2\mu}} \frac{v+1/2}{I_0} = \frac{I_{-1,0}^{0,0}}{I_0}. \quad (37)$$

This problem is indeed crucial in photoassociation. During its deexcitation, the kinetic energy of the PA excited molecule is transferred to the two free atoms. They can then leave the magneto-optical trap, if their speed is sufficient, leading to a detectable signal.

IV. ILLUSTRATIVE RESULTS AND TESTS

The validity of the usual LeRoy–Bernstein formula (16) with $\gamma=0$ has been studied^{10,15} but not extensively. The present derivation work for the cases considered in that earlier work. But it circumvent LeRoy's problem when $\delta \leq 0$ or $C_m > 0$. We are going to illustrate the own performances of our formula especially in this last case.

A. Testing the improved LeRoy–Bernstein formula with the Cs_2 $0_g^-(6s+6p_{3/2})$ state

In this section we are going to be anticipating the results of Sec. V A concerning the multipolar development of the Hund case (c) potential cover. For instance using Tables III and V, we see that for the $\text{Cs}_2\{0_g^-(6s+6p_{3/2})\}$ state we have: $n=3$, $m=6$, $l=0$ and $C_n \approx -10 e^2 a_0$, $C_m \approx 65\,000 e^2 a_0^5$. We have chosen the 0_g^- state (see Fig. 2), to test our theory because it is one of the most ruthless states to test a LeRoy–Bernstein-type formula. Indeed, as we shall see, almost all the assumptions used in its derivation are doubtful.

First, $\delta < 0$ (and $C_m > 0$) lead to problems that LeRoy encountered in Ref. 15. This is due to the fact that $T_{0,1}^{3,6}(0) = \infty$ in formula (31). Our derivation avoids them using $T_{0,1}^{3,6}(y^n)$ which is finite.

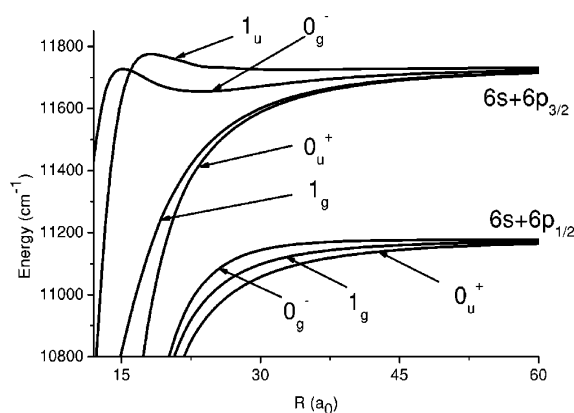


FIG. 2. Hund's case (c) potential curves for the $6s+6p_j$ dissociation limits in the cesium case. Only the 7 attractive allowed (for a dipolar transition, as the photoassociation one) curves are shown. The curves are the issue of the matching between short-range *ab initio* calculation (Ref. 56) and long range ones given by formula (40).

TABLE I. Estimation, for several $D-E$ values (in cm^{-1}), of the terms involved in v_D-v formula (35). We use the analytical $0_g^-(p_{3/2})$ potential curve with $C_g = \epsilon = 0$, where we have chosen $R_+^c = 35a_0$. Terms are labeled by the $D-E$ power in the formula (35). The three separate terms in formula (38) are respectively noted $\hat{\gamma}^{n,a}$, $\hat{\gamma}_\beta$, $\hat{\gamma}_\delta$. We also evaluate the contribution from the neglected $O(y^n)$ term in Eq. (29) which is the second term in formula (9).

$D-E(\text{cm}^{-1})$	30	10	1
$(D-E)^{1-\beta}$	172	143	97
$\hat{\gamma}^{n,a}(D) = \frac{\sqrt{2\mu}}{2\pi\hbar} I_l^{n,a}(D)$	12.7	4.2	0.4
$\hat{\gamma}^{n,a}(E) = \frac{\sqrt{2\mu}}{2\pi\hbar} I_l^{n,a}(E)$	16.2	4.5	0.4
$\hat{\gamma}_\beta$	-9.8	-3.3	-0.3
$\hat{\gamma}_\delta$	3.7	1.2	0.1
$(D-E)^{1-\delta}$	-1.8	-0.5	-0.03
$O(y^n)$	-0.7	-0.1	-0.001

Second, n is small and we use a “pure long-range state” where R is always large. Therefore, $x^n = (R/R_+)^n$ is not so small and keeping only the zero order, as done in the usual LeRoy–Bernstein derivation, in series (9) may not be accurate enough.

Thirdly, the term $C_m \approx 65\,000 e^2 a_0^5$ is larger than the usual Hund's case (a) potential curve, therefore, the C_m/R^m correction term is also large. Furthermore R_+^c is of greater value and $y = R_+^c/R_+$ is not small [see, for instance, formula (9)].

Fourth, the inner wall is smooth and less steep than usual (see Fig. 2). Consequently a small phase is accumulated on the inner wall [see formula (11)].

In the fifth place, the potential curve is only 80 cm^{-1} deep. So, $1/\sqrt{E-V(R)}$ is quite large and the nonasymptotic part, defined in expression (8), is therefore, important. For the same reason, the assumption: $1/\sqrt{E-V(R)} \approx 1/\sqrt{D-V(R)}$ in the intermediate region can also be inaccurate.

For $R_+ \approx 40 a_0$, i.e., $D-E \approx 30 \text{ cm}^{-1}$, the next asymptotic coefficient C_8/R^8 is already 4% of C_6/R^6 (it reaches 10% for $R \approx 25 a_0$). Therefore, a choice of $R_+^c \approx 35-40 a_0$ is probably good enough to obtain $|\alpha_c| < 0.1$ and a nonasymptotic part not too large. As mentioned in Sec. II C 1, we also need R_+/R_+^c large enough to get a good precision in our fit. Concerning the percent accuracy goal, the discussion following formula (9) has indicated a restriction for the fit at $R_+ > 1.6R_+^c \approx 55 a_0$ corresponding to $D-E < 12 \text{ cm}^{-1}$.

For a physical insight, we give Table I some typical values for all the terms present in formula (35). The potential curve used to numerically evaluate all the terms in Table I including the term

$$\begin{aligned} \hat{\gamma}_\delta = & \frac{\sqrt{2\mu}}{2\pi\hbar} \left(I_l^{n,a}(D) - (-C_n)^{-1/2} \frac{(R_+^c)^{n\beta}}{n\beta} \right. \\ & \left. + \frac{1}{2} (-C_n)^{-1/2} \frac{C_m}{C_n} \frac{(R_+^c)^{n\delta}}{n\delta} \right), \end{aligned} \quad (38)$$

is simply the diagonalization of the 0_g^- matrix described in

TABLE II. Value of the coefficients $D, C_3(0_g^-), v_D, \tilde{\gamma}_\delta, C_6$ for the $0_g^-(6s+6p_{3/2})$ cesium state. The numerical fit was done using formula (39) with k parameters for different set of N vibrational states (extract from the $v=0$ to $v=132$ of the 133 vibrational levels) determined by the range of available E_v values in cm^{-1} . When $\tilde{\gamma}_\delta=C_6=0$ ($k=3$), we recover the usual LeRoy–Bernstein formula (3). When $C_6=0$ ($k=4$), we recover the first improved formula (16). $\sigma^{\text{fit}}=\sqrt{1/N-k \sum_{j=1}^N (E_v-E_v^{\text{fit}})^2}$ is given in MHz units and has to be compared to the experimental accuracy $\sigma=150$ MHz.

Method	Range	N	D	$C_3(0_g^-)$	v_D	$\tilde{\gamma}_\delta$	C_6	σ^{fit}
(3)	all	133	0.85	-17.94	245.1	0	0	9887
	$-30 < E_v$	97	0.16	-14.09	228.7	0	0	1897
	-10	64	-0.03	-12.16	220.6	0	0	230
	-5	48	-0.06	-11.60	218.4	0	0	59
	-2	28	-0.08	-11.12	216.6	0	0	11
(16)	all	133	0.06	-12.42	222.6	4.8	0	1274
	-30	97	-0.06	-11.28	217.6	6.5	0	187
	-10	64	-0.084	-10.73	215.7	8.5	0	14
	-5	48	-0.088	-10.68	215.3	9.6	0	9
	-2	28	-0.091	-10.52	214.8	12.0	0	9
(39)	all	133	-0.079	-10.73	215.7	18.0	160000	121
	-30	97	-0.087	-10.60	215.2	19.5	180000	123
	-10	64	-0.090	-10.49	214.8	22.5	220000	9
	-5	48	-0.090	-10.48	214.7	23.9	246000	9
	-2	28	-0.090	-10.55	214.9	7.5	-88000	10

Table IV where the C_8 coefficients of formula (40) are zero. Results from Table I confirm the well-known fact the usual LeRoy–Bernstein formula [with the sole term $(D-E)^{1-\beta}$] will not give results better than one percent. This also confirms that the usual LeRoy–Bernstein formula is by chance much more accurate than it should be because the nonasymptotical parts $I_l^{\text{n.a.}}(D)$ in $\tilde{\gamma}_\delta$ almost perfectly canceled with the other terms such as $\hat{\gamma}_\beta$.

In the nonasymptotic part we have made the approximation $I_l^{\text{n.a.}}(E) \approx I_l^{\text{n.a.}}(D)$, as in formula (12), this v leads to an accuracy of the v_D-v value of about 0.3 (with $D-E \approx 10 \text{ cm}^{-1}$). This is of similar importance than other contributions listed in Table I. As a consequence, it is useless to take into account contributions smaller than 0.3. Therefore, in order to improve our formula, we shall not incorporate second-order terms [such as $O(y^n)$] but rather take into account the nonasymptotic part more carefully. This cannot be done without adding other unknown parameters in the development as $d\tilde{\gamma}_\delta/dE$ or R_+^c -dependent terms and without keeping E in formula (11). In a sense our theory is the best with only one single unknown parameter $\tilde{\gamma}_\delta$ added to v_D , D , C_n , and C_m . Finally it should be noticed that the method will not be accurate enough to extract the C_m value to better than a few tenths of a percent, except in the case where C_m is abnormally big. This is due to the fact the $(D-E)^{1-\delta}$ term containing C_m is very small (typically 1) and only a few times higher than the neglected ones (typically 0.3).

Expression (35) yields $v_D-v=f(D-E)$, but we would prefer to adjust the theory to the experimental energies, i.e., to fit using $D-E=f^{-1}(v_D-v)$. Table I indicates formula (35) is largely dominated by the first term $H_n^{-1}(D-E)^{1-\beta}$ and that we could safely, except for very large $D-E$ values, use only the first-order inversion procedure used, for instance, to derive formula (16) to find a general reversed formula:

$$\begin{aligned}
 D-E \approx & \left(\frac{v_D-v}{H_n^{-1}} \right)^{1/(1-\beta)} \\
 & \times \left[1 - \frac{1}{1-\beta} \frac{1}{v_D-v} \left(\tilde{\gamma}_\delta \left(\frac{v_D-v}{H_n^{-1}} \right)^{1/(1-\beta)} \right. \right. \\
 & + \frac{\sqrt{2\mu}}{2\pi\hbar} \frac{(-C_n)^{\delta-1/2}}{n} \frac{C_m}{C_n} \frac{1}{1-\delta} \left(\frac{v_D-v}{H_n^{-1}} \right)^{(1-\delta)/(1-\beta)} \\
 & \left. \left. \times \left[\begin{array}{ll} \beta B(\beta, \frac{1}{2}) & \text{if } \delta < 0 \\ \frac{1}{2} \ln \left(\frac{v_D-v}{H_n^{-1}} \right)^{1/1-\beta} & \text{if } \delta = 0 \\ (\delta - \frac{1}{2}) B(\delta, \frac{1}{2}) & \text{if } \delta > 0 \end{array} \right] \right] \right]. \quad (39)
 \end{aligned}$$

This formula gives an explanation for the origin of the Pade coefficients used in usual NDE formula,⁴⁶ as long as an explanation for their values. Indeed, Pade formulas assume a mathematical polynomial quotient expansion in v_D-v without *a priori* a physical insight.¹⁶ Our formula leads directly to such polynomial expansion and gives physical interpretation for the coefficients. Therefore, our theory could be used as a good starting point for NDE Pade analysis.

We will now test our “improved” LeRoy–Bernstein theory on the 0_g^- state. Vibrational energy levels from $v=0$ ($D-E_v \approx 77 \text{ cm}^{-1}$) to $v=132$ ($D-E_v \approx 0.4 \text{ cm}^{-1}$), of the external well of the 0_g^- state have been published in Ref. 47.

In Table II, we present results of several fits (done with MATHEMATICA software, with 100 iterations in the nonlinear fitting procedure) for all the vibrational levels and for the vibrational levels within the -30 , -10 , -5 , and -2 cm^{-1}

1326 J. Chem. Phys., Vol. 120, No. 3, 15 January 2004

Daniel Comparat

TABLE III. Multipolar coefficient in formula (40) for the cesium case at the $6s+6p$ asymptote. C_3 is closely related to the dipole matrix element (A5) and therefore the atomic lifetime [formula (4)]. The C_3 value given here is extracted from atomic lifetime measurement (Ref. 55). C_6 and C_8 coefficients were theoretically calculated (Ref. 32).

C_3	9.997(23)
C_6^{Σ}	-17390
C_6^{Π}	-11830
$C_8^{\Sigma_a}$	-5040000
$C_8^{\Sigma_s}$	-16560000
$C_8^{\Pi_a}$	-2256000
$C_8^{\Pi_s}$	-913100

form the dissociation limit of the 0_g^- state. We should remember the data comes from RKR computations where $C_3(0_g^-)$ was kept fixed at $-10.47e^2a_0^{247}$ and not at the most recent accurate value (see Table III and Ref. 37).

Results in Table II indicate a better agreement in the fit when using our formula as opposed to the usual LeRoy–Bernstein one. Our method is much more stable than the usual ones when the fitted energy range changes. Thus we are able to extract $C_3 \approx -10.5$, $v_D \approx 214.8$, $D \approx -0.09 \text{ cm}^{-1}$ which are very close to values found by a complete NDE-RKR analysis⁴⁷ $C_3 = -10.47$, $v_D \approx 214.6$, $D \approx -0.09 \text{ cm}^{-1}$.

The accuracy is much better than the experimental one because we use a NDE theory to fit the NDE-RKR calculated levels and not the experimental levels. This is also the reason why the fitted C_6 value is far from the predicted value. Indeed, let us treat a case with known potential curve: $V(R) = -10e^2a_0^2/R^3 + 65000e^2a_0^5/R^6$. The fit, taken into account the vibrational levels $v = 35-164$ ranging $-30 < E_v < -0.0007 \text{ cm}^{-1}$, gives results $C_3^{\text{fit}} = -10.05$ and $C_6^{\text{fit}} = 87000e^2a_0^5$ close to the input values. This confirms that our theory should be able to determine the C_n value at the percent accuracy level. But the C_m value cannot be determined better than 20%.

V. SPECTROSCOPIC IMPLICATIONS OF THE PRESENT THEORY

The previously performed tests indicate that our method seems suitable for extracting asymptotic coefficient C_n at the percent accuracy level. This is true for the $0_g^-(p_{1/2})$ state as well as for other states. We shall not present here a complete review of the former applications of the LeRoy–Bernstein law to (photoassociation) spectroscopy. We will not give an overview of the theoretical study of the Hund's case (c) long-range potential curve and we refer to the following books and articles.^{32,33,48–54} However, we shall give a brief introduction to the Hund's case (c) states and potential curves calculation for long-range molecules mainly discussing the case of neutral alkali-atoms. One goal is to obtain the C_n and C_m leadings coefficients for the long-range states and to be able to take into account all terms needed to reach 1% accuracy in the C_n value. We shall see this includes some correction factors which have never been used before.

TABLE IV. Matrix given $\Omega_{g,u}^{\pm}$ Hund's case (c) eigensystem (R variation is not written) for $ns+n'p$ limit. With $A = (E_{p_{3/2}} - E_{p_{1/2}})/2/3$. Where E_p is the dissociation limit energy $ns+n'p$.

$\pm 2_{g,u}$	$= V(^3\Pi_{g,u}) + \frac{A}{2}$
$\pm 1_{g,u}$	$= \begin{pmatrix} V(^3\Pi_{g,u}) & \frac{\mp A}{2} & \frac{A}{2} \\ \frac{\mp A}{2} & V(^1\Pi_{g,u}) & \frac{\pm A}{2} \\ \frac{A}{2} & \frac{\pm A}{2} & V(^3\Sigma_{g,u}^+) \end{pmatrix}$
$0_{g,u}^+$	$= \begin{pmatrix} V(^3\Pi_{g,u}^{\sigma=+}) - \frac{A}{2} & \frac{-A}{\sqrt{2}} \\ \frac{-A}{\sqrt{2}} & V(^1\Sigma_{g,u}^+) \end{pmatrix}$
$0_{g,u}^-$	$= \begin{pmatrix} V(^3\Pi_{g,u}^{\sigma=-}) - \frac{A}{2} & \frac{A}{\sqrt{2}} \\ \frac{A}{\sqrt{2}} & V(^3\Sigma_{g,u}^+) \end{pmatrix}$

A. Multipolar development for dialkalis molecules and relativistic correction

Hund's case (a) potential curve dissociating toward the $ns+n'p$ asymptotic limit of the two identical alkali atoms leads to the following multipolar expansion:

$$\begin{aligned}
 V_{3\Sigma_u^+} &= V_{1\Sigma_g^+} = 2 \frac{C_3}{R^3} + \frac{C_6^{\Sigma}}{R^6} + \frac{C_8^{\Sigma_s}}{R^8} + \dots, \\
 V_{3\Pi_g} &= V_{1\Pi_u} = \frac{C_3}{R^3} + \frac{C_6^{\Pi}}{R^6} + \frac{C_8^{\Pi_a}}{R^8} + \dots, \\
 V_{3\Pi_u} &= V_{1\Pi_g} = -\frac{C_3}{R^3} + \frac{C_6^{\Pi}}{R^6} + \frac{C_8^{\Pi_s}}{R^8} + \dots, \\
 V_{3\Sigma_g^+} &= V_{1\Sigma_u^+} = -2 \frac{C_3}{R^3} + \frac{C_6^{\Sigma}}{R^6} + \frac{C_8^{\Sigma_a}}{R^8} + \dots,
 \end{aligned} \tag{40}$$

where

$$C_3 = \left(\frac{D^2}{12\pi\epsilon_0} \right), \text{ and the dipole is}$$

$$D = \langle ns \| q_e r \| n'p \rangle = \sqrt{3} \langle n'p m_l = 0 | q_e z | ns m_l = 0 \rangle. \tag{41}$$

The other coefficients are given in Table III for the cesium case.

The Hund's case (c) potential curve (see Fig. 2) are obtained after diagonalization of the matrix $M + \delta M$. M is given in Table IV and can be found in Refs. 32, 53, and 54.

TABLE V. Two (sometimes three) main terms in the multipolar expansion in $1/R$ for Hund's case (c) potential curves. The dissociation is taken at $ns+n'p$ limit. Then, levels starting with $A/2$ dissociate toward $ns+n'p_{3/2}$, while the $-A$ levels dissociate toward $ns+n'p_{1/2}$.

$V_{\pm 2_u} = \frac{A}{2} - \frac{C_3}{R^3} + \frac{C_6^{\Pi_s}}{R^6}$
$V_{\pm 2_g} = \frac{A}{2} + \frac{C_3}{R^3} + \frac{C_6^{\Pi_u}}{R^6}$
$V_{\pm 1_u} = \begin{cases} \frac{A}{2} + \frac{(2+\sqrt{7})C_3}{3R^3} + \frac{9A(2(-1+\sqrt{7})C_6^{\Pi} + (2+\sqrt{7})C_6^{\Sigma}) + 2(-10+7\sqrt{7})C_3^2(1+\epsilon)^2}{27\sqrt{7}AR^6} \\ -A + \frac{2C_3(1+\epsilon)^2}{3R^3} + \frac{9A(2C_6^{\Pi} + C_6^{\Sigma}) - 28C_3^2(1+\epsilon)^2}{27AR^6} \end{cases}$
$V_{\pm 1_g} = \begin{cases} \frac{A}{2} - \frac{(-2+\sqrt{7})C_3}{3R^3} + \frac{9A(2(C_6^{\Pi} - C_6^{\Sigma}) + \sqrt{7}(2C_6^{\Pi} + C_6^{\Sigma})) + 2(10+7\sqrt{7})C_3^2(1+\epsilon)^2}{27\sqrt{7}AR^6} \\ -A - \frac{2C_3(1+\epsilon)^2}{3R^3} + \frac{9A(2C_6^{\Pi} + C_6^{\Sigma}) - 28C_3^2(1+\epsilon)^2}{27AR^6} \end{cases}$
$V_{0_u^+} = \begin{cases} -A - \frac{4C_3(1+\epsilon)^2}{3R^3} + \frac{9A(2C_6^{\Pi} + C_6^{\Sigma}) - 4C_3^2(1+\epsilon)^2}{27AR^6} \\ \frac{A}{2} - \frac{5C_3}{3R^3} + \frac{9A(C_6^{\Pi} + 2C_6^{\Sigma}) + 4C_3^2(1+\epsilon)^2}{27AR^6} \end{cases}$
$V_{0_g^+} = \begin{cases} -A + \frac{4C_3(1+\epsilon)^2}{3R^3} + \frac{9A(2C_6^{\Pi} + C_6^{\Sigma}) - 4C_3^2(1+\epsilon)^2}{27AR^6} \\ \frac{A}{2} + \frac{5C_3}{3R^3} + \frac{9A(C_6^{\Pi} + 2C_6^{\Sigma}) + 4C_3^2(1+\epsilon)^2}{27AR^6} \end{cases}$
$V_{0_u^-} = \begin{cases} -A + \frac{A(2C_6^{\Pi} + C_6^{\Sigma}) - 4C_3^2(1+\epsilon)^2}{3AR^6} + \frac{2C_8^{\Pi_s} + C_8^{\Sigma_s}}{3R^8} \\ \frac{A}{2} + \frac{C_3}{R^3} + \frac{A(C_6^{\Pi} + 2C_6^{\Sigma}) + 4C_3^2(1+\epsilon)^2}{3AR^6} + \frac{C_8^{\Pi_s} + 2C_8^{\Sigma_s}}{3R^8} \end{cases}$
$V_{0_g^-} = \begin{cases} -A + \frac{A(2C_6^{\Pi} + C_6^{\Sigma}) - 4C_3^2(1+\epsilon)^2}{3AR^6} + \frac{2C_8^{\Pi_u} + C_8^{\Sigma_u}}{3R^8} \\ \frac{A}{2} - \frac{C_3}{R^3} + \frac{A(C_6^{\Pi} + 2C_6^{\Sigma}) + 4C_3^2(1+\epsilon)^2}{3AR^6} + \frac{C_8^{\Pi_u} + 2C_8^{\Sigma_u}}{3R^8} \end{cases}$

δM is a relativistic correction matrix linked with the atomic lifetime through a corrective term ϵ . Its derivation is performed in the Appendix and the final corrective matrix δM is given in Table VI and has to my knowledge never been published before.

TABLE VI. The relativistic correction δM to the matrix proposed in Table IV; ϵ value is defined by formula (A4). States g correspond to $\omega' = 1$ and u to $\omega' = -1$.

$\delta_{\pm 2_{gu}} = 0,$
$\delta_{\pm 1_{gu}} = (-1)^{\omega'+1} \frac{\epsilon C_3}{9R^3} \begin{pmatrix} 2(\epsilon-3) & \pm 2\epsilon & -(3+2\epsilon) \\ \pm 2\epsilon & 2(3+\epsilon) & \mp(9+2\epsilon) \\ -(3+2\epsilon) & \mp(9+2\epsilon) & 2(6+\epsilon) \end{pmatrix},$
$\delta 0_{gu}^+ = (-1)^{\omega'+1} \frac{\epsilon C_3}{9R^3} \begin{pmatrix} -4(3+2\epsilon) & -\sqrt{2}(9+4\epsilon) \\ -\sqrt{2}(9+4\epsilon) & -4(3+\epsilon) \end{pmatrix},$
$\delta 0_{gu}^- = (-1)^{\omega'+1} \frac{\epsilon C_3}{3R^3} \begin{pmatrix} -4 & -\sqrt{2} \\ -\sqrt{2} & 4 \end{pmatrix}.$

In the cesium case $\epsilon \approx 0.005$, therefore, the correction factors as $(1+\epsilon)^2$ are (just) needed to have the percent accuracy we are dealing with. After the diagonalization of $M + \delta M$ we calculate the multipolar expansion, i.e., the power series by respect to $1/R$. Results are summarized in Table V.

Let us mention that the “real” accurate expansion will contain other terms coming from retardation ($1/R$ dependence),^{57–63} rotation and Coriolis ($1/R^2$ dependence) or spin–spin ($1/R^3$ dependence) effects.⁵¹ But these effects are negligible compared to the C_n/R^n term in the multipolar expansion for the range of internuclear distance ($20\text{--}200 a_0$) we are working with. Some other ones as kinetics coupling and mass polarization terms (see Ref. 64) or exchange, overlap, damping terms and R dependence of the spin–orbit coupling are also usually negligible as described in Ref. 37.

B. Prospects for photoassociation analysis

The improved formula could be accurate enough to need the correction factors as the δM matrix which has never been used up to now except (to my knowledge) in one work of our group in Ref. 37. We hope our method and the publication of the δM matrix will stimulate some further works. For instance, the method can be applied to the $0_g^-(p_{1/2})$ or the $1_g(p_{3/2})$ states. The $0_g^-(p_{1/2})$ state has a $1/R^6$ asymptotic behavior (see Table V) and then should give information concerning the next multipolar coefficients C_6^Σ and C_6^Π . The $1_g(p_{3/2})$ leads to $n=3$ and $m=8$ in the cesium case because (see Table VI and the value given in Table III) the $1/R^6$ term is accidentally very small and, therefore, negligible compared to the $1/R^8$ term.

VI. CONCLUSION

We have derived general improved NDE expansion formulas (34), including LeRoy–Bernstein one (39), leading to a better accuracy in the determination of the asymptotic coefficients.

Such expressions can be useful for further experiments to extract the asymptotic coefficient C_n and the atomic lifetime.

The method gives also a physical meaning for the Pade coefficients used in usual NDE formula. The method could then be used as a starting guide for Pade coefficients calculation. Furthermore our theory includes, as physical parameters, the two leading multipolar coefficients C_n and C_m . The single added parameter $\tilde{\gamma}_\delta$ contains information on the repulsive branch, the intermediate internuclear distance behavior and analytical calculation of the nonasymptotic part of the vibrational phase in a C_n/R^n potential curve. We have shown that, without adding another parameters, it is not reasonable to develop, further than we did, the approximation in series development of the asymptotical part.

ACKNOWLEDGMENTS

The author thank C. Amiot, H. Blanchard, O. Dulieu, D. Hardin, and N. Vanhaecke for many helpful discussions. Laboratoire Aimé Cotton is associated with Université Paris-Sud. web site: www.lac.u-psud.fr

APPENDIX: RELATIVISTIC CORRECTION TO LONG-RANGE STATES

In heavy alkali atoms, the spin–orbit Hamiltonian H^{SO} is quite larger than the electronic one H^{el} at large internuclear distance. Consequently the Hund's case (a) basis is not the best and it is better to work with a “fine structure” Hund's case (e) basis $|1:nljm_j\rangle_A \otimes |2:n'l'jm'_j\rangle_B$ where H^{SO} is diagonal.

To calculate the only missing perturbation H^{el} we need to find a well (molecular)-symmetrized basis.^{33,50} To avoid such a work, we take advantage on the already known matrix given in Table IV. By definition the Hund's case (e) basis is just formed by the eigenstates of the matrices given in Table IV when only the spin–orbit is present (all the electrostatic interactions V_Π, V_Σ are set to zero).

Let us just illustrate it on the 0_g^- case. The transition matrix is:

$$P_{a \rightarrow e} = \begin{pmatrix} \frac{1}{\sqrt{3}} & \sqrt{\frac{2}{3}} \\ \sqrt{\frac{2}{3}} & -\frac{1}{\sqrt{3}} \end{pmatrix}.$$

Then the desired matrix of H^{el} in the Hund's case (e) basis is just $M_{(e)}^{0_g^-} = P M_{(a), H^{\text{SO}} + H^{\text{el}}}^{0_g^-} P^{-1}$. It is then better to use a reduced matrix element related to $n'p_j$ (Ref. 65)

$$D_{3/2} = \langle ns_{1/2} \| Q_1 \| n'p_{3/2} \rangle = \frac{2}{\sqrt{3}} \langle ns \| Q_1 \| n'p \rangle, \quad (\text{A1})$$

$$D_{1/2} = \langle ns_{1/2} \| Q_1 \| n'p_{1/2} \rangle = \frac{\sqrt{2}}{\sqrt{3}} \langle ns \| Q_1 \| n'p \rangle, \quad (\text{A2})$$

to have the new matrix:

$$M_{(e)}^{0_g^-} = \begin{pmatrix} E_{p_{3/2}} - \frac{1}{16\pi\epsilon_0} \frac{D_{3/2}^2}{R^3} & \frac{1}{8\pi\epsilon_0} \frac{D_{3/2}D_{1/2}}{R^3} \\ \frac{1}{8\pi\epsilon_0} \frac{D_{3/2}D_{1/2}}{R^3} & E_{p_{1/2}} \end{pmatrix}, \quad (\text{A3})$$

where, for sake of simplicity, we have kept only the C_3'/R^3 leading term in expression (40). As expected the spin–orbit is diagonal leading to the dissociation limit toward $ns + n'p_{3/2}$ with an energy $E_{p_{3/2}} = E_p + A/2$ and toward $ns + n'p_{1/2}$ with an energy $E_{p_{1/2}} = E_p - A$.

This new matrix, already derived by Ref. 33 but in another way, can be used to add a relativistic correction to the C_3 coefficient in the case $n=n'$. Indeed, the experimental lifetime measurements noted $\tau_{3/2}$ and $\tau_{1/2}$ for $np_{3/2}$ and $np_{1/2}$ ^{55,66,67} disagree with the predicted ratio $D_{3/2}/D_{1/2} = \sqrt{2}$ [see formulas (A1) and (A2)]. This relativistic correction has to be taken into account. Let us define the ϵ correction by

$$\frac{D_{1/2}}{D_{3/2}} = (1 + \epsilon) \sqrt{\frac{1}{2}} = \sqrt{\frac{\tau_{3/2}E_{3/2}^3}{2\tau_{1/2}E_{1/2}^3}} \approx \sqrt{\frac{1}{1.9809(9)}}, \quad (\text{A4})$$

where the experimental value is given for cesium. A new definition for C_3 :

$$C_3 = \frac{1}{4} \frac{1}{\pi\epsilon_0} |\langle ns_{1/2} \| Q_1 \| np_{3/2} \rangle|^2, \quad (\text{A5})$$

leads to the same value than the previous one [see formula (A1)] for $\epsilon=0$ (the value for cesium is $C_3 = 9.997(23)^{55}$).

Then the new matrix (A3) is:

$$M_{(e)}^{0_g^-} = \begin{pmatrix} E_{p_{3/2}} - \frac{C_3}{R^3} & \sqrt{2} \frac{C_3(1+\epsilon)}{R^3} \\ \sqrt{2} \frac{C_3(1+\epsilon)}{R^3} & E_{p_{1/2}} \end{pmatrix}.$$

Using the transition matrix P we can then include the perturbation in the Hund's case (a) matrix to find:

$$M_{(a)}^{0-} = \begin{pmatrix} E_p + \frac{C_3 \left(1 + \frac{4\epsilon}{3}\right)}{R^3} - \frac{\hbar^2 A^{\text{SO}}}{2} & \frac{\sqrt{2}}{3} \epsilon \frac{C_3}{R^3} + \frac{\hbar^2 A^{\text{SO}}}{\sqrt{2}} \\ \frac{\sqrt{2}}{3} \epsilon \frac{C_3}{R^3} + \frac{\hbar^2 A^{\text{SO}}}{\sqrt{2}} & E_p - 2 \frac{C_3 \left(1 + \frac{2\epsilon}{3}\right)}{R^3} \end{pmatrix}. \quad (\text{A6})$$

Comparing this matrix to the one calculated without the ϵ correction leads to the correction matrix $\delta M_{(a)}$ given in Table VI. In the cesium case $\epsilon \approx 0.005$, therefore, the corrections factor $(1 + \epsilon)$ [or even more $(1 + \epsilon)^2$] are (just) needed to have the percent accuracy we are dealing with.

¹H. Margenau, Rev. Mod. Phys. **11**, 1 (1939).

²R. S. Mulliken, Phys. Rev. **57**, 500 (1940).

³T. Y. Chang, Rev. Mod. Phys. **39**, 911 (1967).

⁴E. I. Dashevskaya, A. I. Vorovin, and E. E. Nikitin, Can. J. Phys. **47**, 1237 (1969).

⁵M. Movre and G. Pichler, J. Phys. B **13**, 2631 (1977).

⁶W. C. Stwalley, Contemp. Phys. **19**, 65 (1978).

⁷W. C. Stwalley, Y-H. Uang, and G. Pichler, Phys. Rev. Lett. **41**, 1164 (1978).

⁸A. Dalgarno and W. D. Davison, Adv. At. Mol. Phys. **2**, 2 (1966).

⁹B. Bussery and M. Aubert-Frécon, J. Chem. Phys. **82**, 3224 (1985).

¹⁰R. J. LeRoy, *Semiclassical Methods in Molecular Scattering and Spectroscopy*, edited by M. S. Child (Reidel, Dordrecht, 1980), pp. 109–126.

¹¹J. Vigué, Ann. Phys. (Paris) **3**, 155 (1982).

¹²R. J. LeRoy and R. B. Bernstein, J. Chem. Phys. **52**, 3869 (1970).

¹³R. J. LeRoy, Can. J. Phys. **50**, 953 (1972).

¹⁴W. C. Stwalley, J. Chem. Phys. **58**, 3867 (1973).

¹⁵R. J. LeRoy, J. Chem. Phys. **73**, 6003 (1980).

¹⁶R. J. LeRoy, J. Chem. Phys. **101**, 10217 (1994).

¹⁷F. Masnou-Seeuws and P. Pillet, Adv. At., Mol., Opt. Phys. **47**, 53 (2001).

¹⁸V. N. Ostrovsky, V. Kokoouline, E. Luc-Koenig, and F. Masnou-Seeuws, J. Phys. B **34**, L27 (2001).

¹⁹V. Kokoouline, C. Drag, P. Pillet, and F. Masnou-Seeuws, Phys. Rev. A **65**, 062710 (2002).

²⁰H. J. Metcalf and P. van der Straten, *Laser Cooling and Trapping* (Springer, New York, 1999).

²¹H. R. Thorsheim, J. Weiner, and P. S. Julienne, Phys. Rev. Lett. **58**, 2420 (1987).

²²J. Weiner, V. S. Bagnato, S. Zilio, and P. S. Julienne, Rev. Mod. Phys. **71**, 1 (1999).

²³W. C. Stwalley and H. Wang, J. Mol. Spectrosc. **195**, 194 (1999).

²⁴A. P. Mosk, M. W. Reynolds, and T. W. Hijmans, Phys. Rev. Lett. **82**, 307 (1999).

²⁵N. Herschbach, P. J. J. Tol, W. Wassen, W. Hogervorst, G. Woestenenk, J. W. Thomsen, P. Van der Straten, and A. Niehaus, Phys. Rev. Lett. **84**, 1874 (2000).

²⁶G. Zinner, T. Binnewies, F. Riehle, and E. Tiemann, Phys. Rev. Lett. **85**, 2292 (2000).

²⁷Y. Takasu, K. Komori, K. Honda, K. Kumakura, Y. Takahashi, and T. Yabuzaki, available at <http://www.wspc.com.sg/icap2002/article/3171012.pdf>

²⁸J. P. Shaffer, W. Chalupczak, and N. P. Bigelow, Phys. Rev. Lett. **82**(6), 1124 (1999).

²⁹U. Schlöder, C. Silber, and C. Zimmermann, Appl. Phys. B: Lasers Opt. **73**, 801 (2001).

³⁰R. Wynar, R. S. Freeland, D. J. Han, C. Ryu, and D. J. Heinzen, Science **287**, 1016 (2000).

³¹M. Marinescu, H. R. Sadeghpour, and A. Dalgarno, Phys. Rev. A **49**, 982 (1994).

³²M. Marinescu and A. Dalgarno, Phys. Rev. A **52**, 311 (1995).

³³M. Marinescu and A. Dalgarno, Z. Phys. D: At., Mol. Clusters **36**, 239 (1996).

³⁴W. I. McAlexander, E. R. I. Abraham, and R. G. Hulet, Phys. Rev. A **54**, R5 (1996).

³⁵K. M. Jones, P. S. Julienne, P. D. Lett, W. D. Phillips, E. Tiesinga, and C. J. Williams, Europhys. Lett. **35**, 85 (1996).

³⁶H. Wang, J. Li, X. T. Wang, C. J. Williams, P. L. Gould, and W. C. Stwalley, Phys. Rev. A **55**, R1569 (1997).

³⁷C. Amiot, O. Dulieu, R. F. Gutterres, and F. Masnou-Seeuws, Phys. Rev. A **66**, 052506 (2002).

³⁸L. Landau and E. Lifchitz, *Quantum Mecanique* (Mir, Moscou, 1988).

³⁹B. Gao, Phys. Rev. Lett. **83**, 4225 (1999).

⁴⁰C. Eltschka, H. Friedrich, and M. J. Moritz, Phys. Rev. Lett. **86**, 2693 (2001).

⁴¹C. Boisseau, E. Audouard, and J. Vigué, Phys. Rev. Lett. **86**, 2694 (2001).

⁴²M. J. Moritz, C. Eltschka, and H. Friedrich, Phys. Rev. A **63**, 042102 (2001).

⁴³G. F. Gribakin and V. V. Flambaum, Phys. Rev. A **48**, 546 (1993).

⁴⁴C. Boisseau, E. Audouard, and J. Vigué, Europhys. Lett. **41**, 349 (1998).

⁴⁵M. F. Falcetta, M. J. Dorko, and P. E. Siska, J. Chem. Phys. **113**, 11044 (2000).

⁴⁶A.-R. Hashemi-Attar, C. L. Beckel, W. N. Keeping, and S. A. Sonleitner, J. Chem. Phys. **70**, 3881 (1979).

⁴⁷A. Fioretti, D. Comparat, C. Drag, C. Amiot, O. Dulieu, F. Masnou-Seeuws, and P. Pillet, Eur. Phys. J. D **5**, 389 (1999).

⁴⁸G. Herzberg, *Spectra of Diatomic Molecules. Molecular Spectra and Molecular Structure* (Krieger, Malabar, Florida, 1989); <http://physics.nist.gov/Pubs/Mono115/verhst.shtml>

⁴⁹J. T. Hougen, Nat. Bur. Stand. Monograph **115**, 1 (1970).

⁵⁰E. E. Nikitin and S. Ya. Umanskii, *Theory of Slow Atomic Collisions. Springer Series in Chemical Physics* (Springer-Verlag, Berlin, 1984).

⁵¹H. Lefebvre-Brion and R. W. Field, *Perturbations in the Spectra of Diatomic Molecules* (Academic, London, 1986).

⁵²M. Marinescu and H. R. Sadeghpour, Phys. Rev. A **59**, 390 (1999).

⁵³M. Aubert-Frcon, S. Rousseau, G. Hadinger, and S. Magnier, J. Mol. Spectrosc. **192**, 239 (1998).

⁵⁴M. Aubert-Frcon, G. Hadinger, S. Magnier, and S. Rousseau, J. Mol. Spectrosc. **188**, 182 (1998).

⁵⁵R. J. Rafac, C. E. Tanner, A. E. Livingston, and H. G. Berry, Phys. Rev. A **60**, 3648 (1999).

⁵⁶N. Spiess, Ph.D thesis, Fachbereich Chemie, Universität Kaiserslautern, 1989.

⁵⁷M. J. Stephen, Chem. Phys. Lett. **40**, 669 (1964).

⁵⁸W. J. Meath, J. Chem. Phys. **48**, 227 (1968).

⁵⁹L. Gomberoff and E. A. Power, Proc. R. Soc. London **295**, 477 (1966).

⁶⁰L. Spruch, *Long-Range Casimir Forces*, edited by F. S. Levin and D. A. Micha (Plenum, New York, 1993).

⁶¹E. A. Power, Adv. Chem. Phys. **12**, 167 (1967).

⁶²M. Marinescu, J. F. Badd, and A. Dalgarno, Phys. Rev. A **50**, 3096 (1994).

⁶³M. Marinescu and L. You, Phys. Rev. A **59**, 1936 (1999).

⁶⁴M. Marinescu and A. Dalgarno, Phys. Rev. A **57**, 1821 (1994).

⁶⁵D. A. Varshalovich, A. N. Moskalev, and V. K. Khersonskii, *Quantum Theory of Angular Momentum* (World Scientific, Singapore, 1989).

⁶⁶U. Volz and H. Schmoranzner, Phys. Scr. **T65**, 48 (1996).

⁶⁷R. J. Rafac and C. E. Tanner, Phys. Rev. A **58**, 1087 (1998).

⁶⁸A. J. Kermon, J. M. Sage, S. Sainis, D. DeMille, and T. Bergamon, arXiv:physics/0308020.

Accumulation of Cold Cesium Molecules via Photoassociation in a Mixed Atomic and Molecular Trap

Nicolas Vanhaecke, Wilson de Souza Melo, Bruno Laburthe Tolra, Daniel Comparat, and Pierre Pillet*

Laboratoire Aimé Cotton,[†] CNRS II, Bâtiment 505, Campus d'Orsay, 91405 Orsay cedex, France

(Received 9 August 2001; published 23 July 2002)

We have realized a mixed atomic and molecular trap, constituted by a Cs vapor-cell magneto-optical trap and a quadrupolar magnetic Cs₂ trap, using the same magnetic field gradient. We observed the trapping of 2×10^5 molecules, formed and accumulated in the metastable $a^3\Sigma_u^+$ state at a temperature of $30 \pm 10 \mu\text{K}$ through a ≈ 150 ms photoassociation process. The lifetime of the trapped molecular cloud limited by the Cs background gas pressure is on the order of 1 s.

DOI: 10.1103/PhysRevLett.89.063001

PACS numbers: 32.80.Pj, 33.20.-t, 33.80.Ps, 34.20.-b

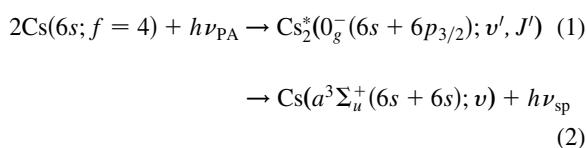
The recent developments in the cold-molecule field (for reviews, see [1,2]) require, for many applications, further efforts to obtain a cold, large, and dense sample of cold molecules. Because of the cold molecules' formation rates implied in the photoassociation (PA) schemes, it is necessary to accumulate during a time of the order of 1 s and therefore to keep the molecules in a trap. In this Letter, we report an experimental setup where cold molecules formed via photoassociation are accumulated and trapped.

The formation of cold molecules via photoassociation of cold atoms is, up to now, the only way to prepare a molecular sample in the μK range [3]. The cesium dimer presents very efficient schemes for forming cold molecules either in the ground state or in the lowest triplet state depending on the chosen photoassociated state [3–5]. Temperatures in the range of 20–200 μK [4] (identical to the initial atomic temperature) and formation rates up to one molecule per second and per atom have been measured [6]. The formation of translationally cold molecules through PA has also recently been observed for the potassium dimer using a two-step excitation scheme, and for the rubidium dimer [7–9].

Different molecular traps have already been reported. Trapping of cold molecules present in a Cs vapor-cell magneto-optical trap has been demonstrated using a CO₂ quasielectrostatic trap [10]. As far as we know, no cold molecules formed via PA have been trapped in that experiment. Stimulated Raman PA has been used in a Rb condensate, where the formation of cold molecules is demonstrated through the line shapes of the resonances. These molecules should also be trapped in the magnetic time orbital potential trap used for the condensate [11], but the molecule trapping demonstration was not made. Another technique, quite different, consists of the magnetic trapping of ground state CaH molecules [12] in the tesla range at 400 mK, produced via laser ablation of solid CaH₂ and cryogenically cooled by a ³He buffer gas. More recently, an electrostatic trap and a hexapole torus storage ring loaded with deuterated ammonia molecules, at 350 and 10 mK temperatures, respectively, have been achieved

after slowing an adiabatically cooled beam of polar molecules by time-varying inhomogeneous electric fields [13,14].

In our experiment, the molecular cloud produced through photoassociation is in the μK range so that a magnetic gradient in the mT/cm range is sufficient to store it efficiently. The cold atomic cloud, in which PA takes place, is provided by a Cs vapor-cell magneto-optical trap (MOT). In a common MOT, the photoassociated molecules fall down due to the gravity (see, for instance, Fig. 12 in Ref. [4]). But, in the current experiment, the quadrupole magnetic field gradient has been increased to be high enough to compensate earth gravity for molecules, in order to provide both an atomic (magneto-optical) trap and a molecular (magnetic) trap. The cold molecules are formed in the MOT region via PA resonant excitation of two free colliding atoms in a chosen rovibrational level of the $0_g^-(6s + 6p_{3/2})$ state, followed by spontaneous emission towards vibrational levels of the lowest triplet state $a^3\Sigma_u^+$ [see Fig. 1(a)]:



In the presence of a magnetic field, the motion of the cold molecules depends on their magnetic moment. Only molecules formed with a magnetic moment opposite to the local magnetic field, in the so-called low field seeking states, can be accumulated and trapped. Because of earth gravity, the other molecules leave the MOT zone and the detection area within 20 ms.

Most of the elements of the experimental setup have been described in previous papers (see, for instance, [15]). The cold atoms in the $6sf=4$ hyperfine level are provided by a Cs vapor-loaded MOT with residual gas pressure about 10^{-7} Pa. In order to optimize accumulation and trapping, the laser intensities have been reduced and the magnetic field gradient has been increased comparatively

to the common MOT operation. The six 8 mm diameter trapping laser beams are tuned 15 MHz to the red of the atomic transition and have a cumulated intensity of 12 mW/cm^2 . The magnetic field is of 6 mT/cm, produced by a pair of anti-Helmholtz coils, which is 4 times higher than for the field in a usual MOT. The Gaussian radius of the cold atomic sample is $\approx 200 \mu\text{m}$, and the number of atoms in the trap is $\approx 10^7$, leading to a peak density on the order of $10^{17} \text{ atoms/m}^3$. The temperature of the cold atomic sample is estimated to be $\approx 25 \mu\text{K}$ [16,17]. The PA laser is provided by a Ti:sapphire laser (Coherent 899 ring laser) pumped by an argon-ion laser. The laser beam is focused to a $\approx 300 \mu\text{m}$ waist, and the available intensity in the MOT zone is up to 500 W/cm^2 . In order to observe the formed translationally cold Cs_2 molecules, they are photoionized into Cs_2^+ ions, which are detected with a pair of microchannel plates through a time-of-flight mass spectrometer. Ionization ($\approx 3\%$ efficiency [6]) is provided by a pulsed dye laser (duration: 7 ns; energy: 1 mJ) pumped by the second harmonic of a Nd-YAG, focused to a $300 \mu\text{m}$ waist. Most of the data were taken while running the Nd-YAG laser at a 1 Hz repetition rate, limiting to about 1 s the lifetime analysis.

The main results of the experiment are the accumulation and the trapping shown in Fig. 1(b)(1). In this experiment, the atomic and molecular traps run simultaneously. The PA pulse excites, in the MOT region, the $v' = 103$ vibrational level of the $0_g^-(6s + 6p_{3/2})$ state. A few million molecules per second [6] are formed in several vibrational triplet state levels [see Eq. (2)]. While PA is on, the molecules are

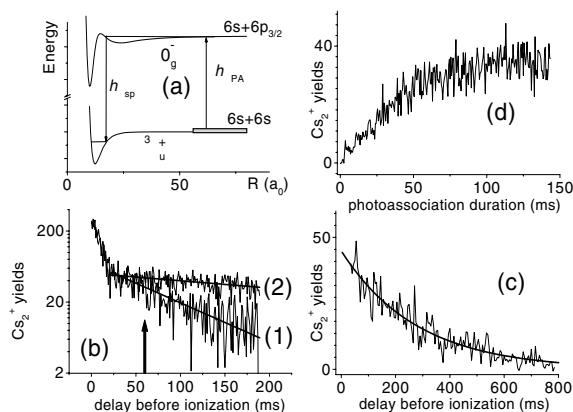


FIG. 1. (a) Schematics of the PA process for the formation of the cold molecules. (b) (1) and (2) In vertical log scale, the evolution of the number of Cs_2^+ ions in the MOT zone after the 150 ms PA process has stopped at $t = 0$: (1) MOT lasers switched on. (2) MOT laser beams switched off. (c) Same as (b2) but with a higher background gas pressure and longer time observation of the trapping, at 0.5 Hz repetition rate and (solid line) exponential decay fitted lifetime. (d) The accumulation process observed 60 ms after the end of the PA process [see arrow in (b)].

constantly formed and the 300 ion signal visible at $t = 0$ corresponds to the 10^4 molecules currently present in the detection area. At the end of the PA pulse, nonmagnetically trapped molecules drop out of the $300 \mu\text{m}$ detection (and MOT) area within $\approx 20 \text{ ms}$. The molecules which are clearly detected in the ionization area after this first step are trapped in the shallow quadrupolar magnetic trap. For a molecular temperature similar to the atomic one, the molecular magnetic trap is expected to be roughly a thousand times larger in volume than the MOT, as explained in the later discussion concerning Fig. 3. Therefore, the Cs_2^+ ionic signal left due to the roughly hundreds of molecules present in the ionization area corresponds to an approximately thousand times larger number of molecules actually trapped. The molecular trapping lifetime fitted in Fig. 1(b)(1) is $\approx 0.15 \text{ s}$. The influence of the trapping lasers on the molecular trap is shown in Fig. 1(b)(2). The trapping lifetime of the molecular cloud is found to be 4 times longer when the MOT lasers are switched off at the same time as the PA pulse. Then we observe a 0.6 s trapping lifetime as shown in Fig. 1(b)(2).

The accumulation of cold molecules during the PA is studied by varying the PA pulse length from 0 to 150 ms. The results are shown in Fig. 1(d). The trapped molecules are ionized 60 ms after the end of the PA pulse [see arrow in Fig. 1(b)(1)]. The accumulation of the Cs_2 in the magnetic trap saturates after a PA pulse length of $\approx 100 \text{ ms}$. The origin of this effect is linked to the presence of laser light (trapping and PA lasers) during the PA process. Such light can excite and depolarize the trapped molecules, limiting the accumulation process. In order to minimize that effect, trapping and PA laser intensities have been adjusted to quite low values, respectively, 12 mW/cm^2 and 35 W/cm^2 for all the spectra presented in this paper.

With such optimized values, we observed the accumulation and the trapping of cold molecules populated by desexcitation of each rovibrational state [$J' = 0$ to 6 in Eq. (1)] reached through photoassociation [18] when the rotational structure is resolved. Figure 2 shows spectra of rotational progressions for two vibrational levels, obtained by detecting the molecules 60 ms after switching off the PA laser (see arrow in Fig. 1). An important observation is the disappearance of trapping in all the rotational levels for any magnetic field gradient below 2.5 mT/cm. It corresponds approximately to the magnetic field gradient $-m_{\text{Cs}}g/\mu_B \approx 2.3 \text{ mT/cm}$ necessary to compensate the gravity g for one Cs atom in the hyperfine Zeeman sublevel $f = 4, m_f = 4$, which has a magnetic moment given by the Bohr magneton $\mu_B = q\hbar/(2m_e)$. Such a result is explained hereafter by evaluating the Zeeman energy of the trapped molecular states.

The trapped cesium dimers are in the lowest triplet state, which is an interesting molecular state due to its large (second order) spin-orbit effect [19], and its even larger hyperfine structure. The spin-orbit coupling which is large at a very small internuclear distance becomes roughly

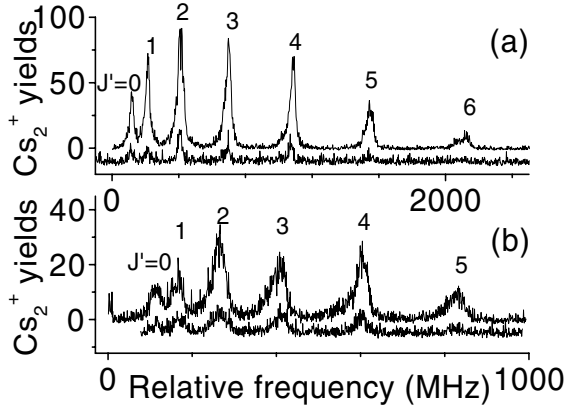


FIG. 2. Trapped molecules for the rotational progressions of $v' = 6$ (a) and $v' = 55$ (b), with a 6 mT/cm magnetic field gradient. For every figure (a) and (b), data of the above are taken at $t = 0$ ms when the PA laser is turned off, and $t = 60$ ms (underneath curve) corresponds to the time given by the arrow in Fig. 1(b).

equal to the hyperfine coupling at the very bottom of the potential curve. The rotation, on the order of $\hbar^2/(2\mu R^2)$, becomes larger than the spin-orbit effect at larger internuclear distances than $\approx 18a_0$, but remains still smaller than the hyperfine structure. In the current experiment, we photoassociate atoms towards the $0_g^-(v', J')$ state, the de-excitation of which occurs at the classical inner turning point $R_- \approx (22-17)a_0$ for the vibrational levels with resolved rotational structure ($v' = 0-74$) [18,20]. Consequently, for the so-formed cold molecules, the spin $\vec{S}$ is always coupled to the nuclear momentum $\vec{I}$, but not strongly to the rotation of the molecule; this is the Hund's case $b_{\beta S}$ [21,22]. Considering that the Zeeman interaction for two atoms in the s state in a magnetic field $\vec{B}$ is given by

$$H^{\text{Zeeman}} = -2 \frac{\mu_B}{\hbar} \vec{S} \cdot \vec{B}, \quad (3)$$

the maximal value of the Zeeman energy is reached when $\vec{S}$ lies along the magnetic field. This maximal value corresponds to molecular states with a magnetic momentum which is twice the Bohr magneton almost independently of the rotational level. Since the molecular mass is twice the atomic one, this description is in reasonable agreement with the experimental results, indicating the trapping of all the rotational levels with the same magnetic field gradient as needed for one atom.

Figure 3 shows the spatial analysis of the trapped molecular cloud at time $t = 50$ ms, done by sweeping the ionization laser horizontally at given vertical positions (compared to the MOT location). The shape of the molecular cloud is a 2 mm horizontal and 6 mm vertical "pear" shape, the peak density of which is located ≈ 1 mm below the MOT zone. By integrating the ion signal

on the whole molecular gas, and assuming an ionization efficiency near 3% [6], the total number of molecules is evaluated to be 2×10^5 . Taking into account a cold-molecule formation rate of the order of 1 molecule per atom and per second, a hundred ms range accumulation process is the only way to explain the experimental number of trapped molecules. Because of the complex hyperfine structure description, the populations of the different rovibrational sub-Zeeman levels in the triplet state are unknown. The temperature of such a distribution is constrained by the maximal value of the molecular magnetic momentum of $2\mu_B$, which gives a maximal temperature of 40 μ K. The values of the magnetic momenta of the trapped molecules lie between zero and that maximal value, so that averaging over the Boltzmann distribution of the molecular sample leads to an effective temperature of $30 \pm 10 \mu$ K.

As mentioned above, the lifetime of the molecular cloud is 0.6 s. It may be limited by collisions with trapped species, by nonadiabatic transfer in a nontrappable state (Majorana transitions), by the radiative lifetime of the molecules, or by collisions with the residual background gas. The molecular trap is so large that the Majorana transitions would limit the lifetime in the range of several hours [23]. Similarly, in the trap, molecules (or atoms) are so diluted (densities $< 10^{14} \text{ m}^{-3}$) that the collisional processes between the trapped species would limit the lifetime to several minutes (estimated by taking a maximum unitary value for the collisional cross section). These two processes are therefore negligible. Another less obvious effect limiting the lifetime of the molecules inside the trap is the spontaneous emission of the lowest triplet state of the cesium dimer. Indeed, due to the second order spin-orbit effect, the $a^3\Sigma_u^+$ state has admixtures from excited states (as $B^1\Pi_u$) resulting in a nonzero dipole moment with the ground state $X^1\Sigma_g^+$. Spontaneous decay of an

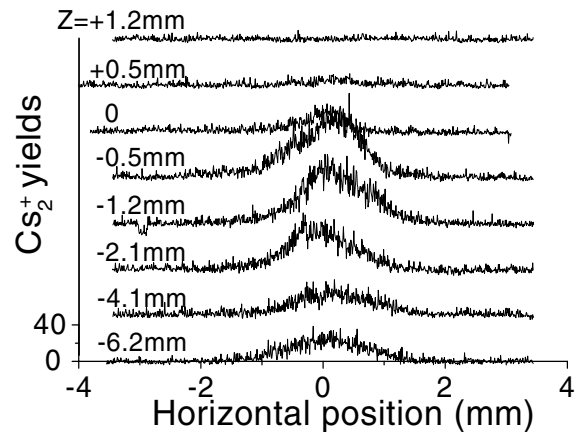


FIG. 3. Molecular cloud analyzed at different positions compared to the MOT position. Z gives the vertical position, and the MOT is located at $Z \approx 0$. All the vertical scales are the same.

$a^3\Sigma_u^+$ vibrational level towards a $X^1\Sigma_g^+$ is therefore possible. In Ref. [24] a value on the order of 100 s is given for rubidium. A scaling argument leads to a lifetime in the range of tens of seconds for cesium, larger than the measured lifetime of the molecular trap. By considering that the residual vacuum corresponds essentially to Cs atoms at room temperature, we estimate a density $n_{\text{res}} \approx 10^{14} \text{ atoms m}^{-3}$ (which has effectively been measured by absorption) and an average velocity $\bar{v} \approx 200 \text{ m/s}$. Taking a lifetime $\tau_{\text{res}} = (n_{\text{res}} \sigma \bar{v})^{-1}$ close to the experimental value of 0.6 s leads to a collisional cross section σ ranging 10^{-17} m^2 , close to the atom-atom one ($\sigma_{\text{at}} \approx 3.10^{-17} \text{ m}^2$ [25]). In order to discriminate between all these possible effects, we have varied the background gas pressure to check if the storage time does depend on it. As an example, Fig. 1(c) shows a trapping lifetime of about 0.4 s, taken with the same experimental conditions as in Fig. 1(b)(2), except for the background gas pressure, which has been increased. A more detailed study has been done and has shown that indeed, in our current setup, the background gas limits the storage time below 1 s. A better vacuum is then needed to be able to observe the radiative lifetime of the triplet state.

To conclude, accumulation and trapping are essential to achieve samples with large numbers of cold molecules. We have demonstrated a convenient tool formed by a mixed atomic and molecular trap. The setup is constituted in a Cs vapor-cell MOT with magnetic field gradient high enough to trap the Cs_2 dimers. The presence of the laser beams limits the accumulation process around 100 ms and therefore the number of trapped cold molecules. The lifetime of trapped cold molecules is actually limited by the background gas below 1 s. We observed 2×10^5 molecules in the lowest triplet state in a $2 \text{ mm} \times 6 \text{ mm}$ trap at a temperature to about $30 \mu\text{K}$. Further improvements could be investigated, for instance, the use of a denser atomic cloud in order to enhance the PA and cold molecules' formation rate. It would also be interesting to use this mixed trap to store cold molecules in a selected rovibrational level of the lowest triplet state via multiphoton photoassociation schemes [8,26]. This way, we could expect to obtain a large and dense sample of cold molecules in a single rovibrational level, useful for studies of cold collisions, evaporation process, molecule optics, and interferometry or coherent control.

The authors thank S. Boussen, A. Crubellier, C. Dion, C. Drag, O. Dulieu, A. Fioretti, S. Guibal, N. Hoang,

F. Masnou-Seeuws, B. T'Jampens, and, especially, C. Lisdar for many helpful discussions. This work is supported by "Action Concertée Incitative Photonique" of the French Research Ministry.

*Email address: pierre.pillet@lac.u-psud.fr

†Laboratoire Aimé Cotton is associated with Université Paris-Sud.

Electronic address: www.lac.u-psud.fr

- [1] F. Masnou-Seeuws and P. Pillet, *Adv. At. Mol. Opt. Phys.* **47**, 53 (2001).
- [2] J. T. Bahns *et al.*, *Adv. At. Mol. Opt. Phys.* **42**, 171 (2000).
- [3] A. Fioretti *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 4402 (1998).
- [4] D. Comparat *et al.*, *Eur. Phys. J. D* **11**, 59 (2000).
- [5] C. Dion *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 2253 (2001).
- [6] C. Drag *et al.*, *IEEE J. Quantum Electron.* **36**, 1378 (2000).
- [7] A. N. Nikolov *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 703 (1999).
- [8] A. N. Nikolov *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 246 (2000).
- [9] C. Gabbanini *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 2814 (2000).
- [10] T. Takekoshi *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 5105 (1998).
- [11] R. Wynar *et al.*, *Science* **287**, 1016 (2000). Experiment concerning trapping of cold molecules in a quadrupolar trap are in progress in this lab (private communication).
- [12] J. D. Weinstein *et al.*, *Nature (London)* **395**, 148 (1998).
- [13] H. L. Bethlem *et al.*, *Nature (London)* **406**, 491 (2000).
- [14] F. M. H. Crompvoets *et al.*, *Nature (London)* **411**, 174 (2001).
- [15] D. Comparat *et al.*, *J. Mol. Spectrosc.* **195**, 229 (1999).
- [16] C. G. Townsend *et al.*, *Phys. Rev. A* **52**, 1423 (1995).
- [17] A. Höpe *et al.*, *Europhys. Lett.* **22**, 669 (1993).
- [18] A. Fioretti *et al.*, *Eur. Phys. J. D* **5**, 389 (1999).
- [19] S. Kotochigova *et al.*, *Phys. Rev. A* **63**, 012517 (2000).
- [20] The $v' = 103$ is a special level, so-called "giant" line, with a complex structure studied in M. Vatasescu *et al.*, *Phys. Rev. A* **61**, 044701 (2000).
- [21] Y. Liu *et al.*, *J. Chem. Phys.* **115**, 3647 (2001).
- [22] C. H. Townes and A. L. Schawlow, *Microwave Spectroscopy* (Dover Publications, Inc., New York, 1975), p. 198.
- [23] W. Petrich *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 3352 (1995).
- [24] S. J. J. M. F. Kokkelmans *et al.*, *Phys. Rev. A* **63**, 031601 (2001).
- [25] H. S. W. Massey, *Electronic and Ionic Impact Phenomena* (Oxford University Press, London, 1971), Vol. 3, p. 1324.
- [26] F. H. Mies *et al.*, *J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol.* **101**, 521 (1996).

Atom-Molecule Collisions in an Optically Trapped Gas

N. Zahzam,* T. Vogt, M. Mudrich,† D. Comparat, and P. Pillet

Laboratoire Aimé Cotton[‡], CNRS, Campus d'Orsay Bâtiment 505, 91405 Orsay, France

(Received 14 September 2005; published 19 January 2006)

Cold inelastic collisions between confined cesium (Cs) atoms and Cs_2 molecules are investigated inside a CO_2 laser dipole trap. Inelastic atom-molecule collisions can be observed and measured with a rate coefficient of $\sim 2.6 \times 10^{-11} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$, mainly independent of the molecular rovibrational state populated. Lifetimes of purely atomic and molecular samples are essentially limited by rest gas collisions. The pure molecular trap lifetime ranges 0.3–1 s, 4 times smaller than the atomic one, as is also observed in a pure magnetic trap. We give an estimation of the inelastic molecule-molecule collision rate to be $\sim 10^{-11} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$.

DOI: 10.1103/PhysRevLett.96.023202

PACS numbers: 34.50.-s, 32.80.Pj, 33.55.Be, 33.80.Ps

Cold molecular gases have established a novel field of research in the past few years. After demonstrations of several methods to prepare cold samples of molecules, spectacular advances have been achieved, one of them being the formation of molecular condensates from atomic Fermi gases [1,2]. Increasing interdisciplinary efforts are motivated by a wide range of new phenomena and applications [3]; e.g., cold polar molecules are candidate systems for precision measurements [4] and for quantum information schemes [5].

Understanding and controlling the collisional properties of mixed atomic and molecular gases is crucial to achieve the regime of quantum degenerate molecular gases. Up to now, very few experimental data have been available, and systematic studies of stored atoms, molecules, or mixture of both, have just started [6–8]. As a recent highlight, the formation of ultracold Cs_4 molecules by Feshbach collisions of Cs_2 molecules has been observed [9].

Although a large variety of techniques for the production of cold molecular samples is currently being developed [3], sub-mK temperatures are only reached by photoassociation (PA) out of an initially ultracold atomic sample [10], and by molecule association through magnetic Feshbach resonances [11]. The two techniques are complementary with respect to the nature of the formed molecules: While Feshbach association leads to loosely bound molecules occupying the most weakly bound rovibrational levels, PA allows to populate deeper bound rovibrational states.

Cold molecular samples can be stored using magnetic trapping as demonstrated with Cs_2 [12] and KRb [13] in their triplet state. Trapping molecules in any state is possible in an optical trap as demonstrated by using a CO_2 laser (quasielectrostatic trap, QUEST) with Cs_2 molecules present in a magneto-optical trap (MOT) [14] or formed through a Feshbach resonance [9] and with Rb_2 molecules formed via PA [15].

In this letter, we report the realization of a CO_2 -laser-based QUEST for mixed samples of Cs atoms and Cs_2 molecules. The Cs_2 molecules are formed in the electronic ground state or in the lowest triplet state via PA of cold trapped atoms and are also efficiently trapped inside the

QUEST. Lifetime measurements are performed for both atomic and molecular samples. We characterize the inelastic collisions between cold atoms, between cold atoms and cold molecules, and even between cold molecules inside the QUEST. Quantitative data analysis gives us access to the collision rate coefficients.

The basic experimental setup has been previously described (see, e.g., [12]). The main change here is the implementation of a CO_2 laser to realize the QUEST. The cold atoms are provided by a Cs vapor-loaded MOT with a residual gas pressure in the range of 10^{-7} – 10^{-8} Pa. The shape of the atomic cloud is approximately spherical, with a radius of 300 μm . The number of atoms in the magneto-optical trap (MOT) is 10^7 , leading to a peak density of $2 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ by assuming a Gaussian density distribution. A cw CO_2 laser (Synrad Firestar f100) is focused into the MOT zone with a waist of $\sim 80 \mu\text{m}$ at an available power of $\sim 110 \text{ W}$.

The temporal sequence for the loading of the QUEST from the MOT is the following. The CO_2 laser is permanently on. First we cool the atoms with an optical molasses phase of 15 ms by switching off the magnetic field gradient and by red-detuning the cooling laser from 2.5 to 27 Γ relative to the atomic transition $6s_{1/2}, f = 4 \rightarrow 6p_{3/2}, f' = 5$; here $\Gamma \approx 2\pi \times 5.2 \text{ MHz}$ corresponds to the decay rate of the $6p_{3/2}$ state. The efficiency of the transfer of atoms from the MOT to the QUEST is typically around 3%. The detection of the atoms is performed by a resonant three-photon ionization process via the level 10 s, using a pulsed dye laser ($\lambda = 706.7 \text{ nm}$) pumped by the second harmonic of a Nd:YAG laser. To prepare the atoms in the hyperfine level $f = 3$ ($f = 4$), we switch off the repumping beam 3 ms before (after) the end of the molasses phase.

Figure 1 shows the temporal evolution of the number of atoms in the QUEST, $N_{\text{Cs}}(t)$. For the hyperfine ground state level $f = 3$, we observe an exponential drop with a lifetime of $2.7 \pm 0.2 \text{ s}$, limited by the background vacuum pressure. However, for $f = 4$ hyperfine level, inelastic two-body collisions lead to a clearly nonexponential decay at short times. Assuming a Gaussian distribution of the atoms and considering the binary collision parameter

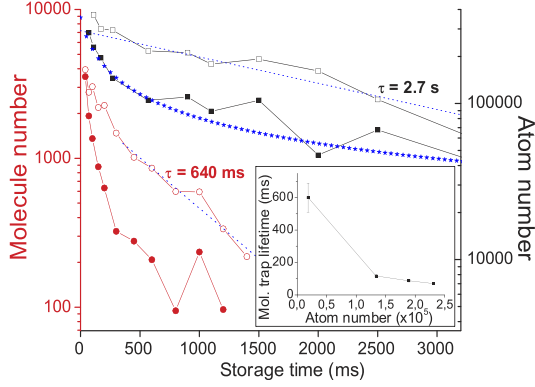


FIG. 1 (color online). Temporal evolution of the atomic and molecular population in the QUEST. The evolution of the number of trapped atoms prepared in the hyperfine states $f = 3$ (open squares line) and $f = 4$ (solid squares line) is plotted. The decay of atoms in $f = 3$ is fitted by an exponentially decreasing function (dot line) with a time constant $\tau = 2.7$ s, whereas, for atoms in $f = 4$, a fit function accounting for two-body collisions (solid stars) is necessary. The solid circles curve shows the evolution of the number of molecules in a mixed atomic and molecular trap. In the inset, we plot the decay constant associated with the molecular trap for different numbers of atoms in $f = 3$ left in the QUEST. We also represent the evolution of a pure molecular sample (open circles line), fitted by an exponential decay function (dotted line) with a time constant $\tau = 640$ ms. In these experiments, molecules are formed via PA of the state $0_g^-(6s + 6p_{3/2})(\nu = 6, J = 2)$.

$G_{Cs} = 1.1 \pm 0.3 \times 10^{-11} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ [16], we were able to determine an average density $\bar{n}_{Cs}(0) = 4^{+4.4}_{-2.4} \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ after loading the trap. Considering similar atomic QUEST experiments [16], we assume an atomic trap temperature $T \approx 40^{+10}_{-10} \mu\text{K}$. The number of atoms is then $N_{Cs}(0) \approx 3.5 \times 10^5$.

The cold trapped atoms are photoassociated in a chosen rovibrational level (ν, J) , of state $\Omega_{u,g}^{+,-}$, converging towards the electronically excited limit $6s + 6p$

$$2Cs(6s, f) + h\nu_{PA} \longrightarrow Cs_2(\Omega_{u,g}^{+,-}(6s + 6p_{1/2,3/2}); \nu, J).$$

We have considered different states, $0_g^-, 1_u(6s + 6p_{3/2})$ and $0_u^+(6s + 6p_{1/2})$, leading, for u symmetry (g symmetry), to the formation of cold molecules in a bunch of rovibrational levels (ν', J') in the ground state, $X^1\Sigma_g^+$ ($\nu' \sim 132$ after PA of 0_u^+) (in the lowest triplet state, $a^3\Sigma_u^+$) [17]. The PA laser is provided by a Ti:sapphire laser (Coherent 899 ring laser) pumped by an Argon-ion laser. The laser beam is focused to a $\approx 300 \mu\text{m}$ spot with an available intensity of 300 W cm^{-2} . The maximum number of formed molecules in the QUEST is obtained by applying the PA laser during 30 ms. For longer times, the number of molecules decreases due to the excitation of the molecules by the PA laser. In order to detect the translationally cold Cs_2 molecules, we photoionize them into Cs_2^+

ions (REMPI process), and selectively detect them with a pair of microchannel plates through a time-of-flight mass spectrometer. Molecular photoionization is provided by the same pulsed dye laser as the one used for atomic detection, but using a slightly different wavelength, around 712 nm. We detect an initial number of molecules $N_{Cs_2}(0) \approx 4000$, corresponding to an average molecular density $\bar{n}_{Cs_2}(0) \approx 10^{10} \text{ cm}^{-3}$.

Figure 2 shows typical PA spectra obtained in a MOT and in a QUEST, corresponding to the $0_g^-(6s + 6p_{3/2}) \times (\nu = 6, J)$ excitation. For the MOT spectrum the rotational levels $J = 0$ to 3 are shown, and for the QUEST only $J = 2$ level was recorded in this figure. We observe a 42 MHz shift of the resonance between the two spectra because of the dynamical Stark effect due to the CO_2 laser. The expected value of this shift is given by $\Delta\nu = (\alpha_{6s} - \alpha_{6p_{3/2}})P/(\pi\hbar\epsilon_0cw_0^2)$, where α_{6s} and $\alpha_{6p_{3/2}}$ are the electrostatic polarizabilities of atoms in $6s$ and $6p_{3/2}$ states [18], P is the power of the laser beam and w_0 its waist. Considering an available power of 110 W, we find $w_0 = 84 \pm 4 \mu\text{m}$, leading to an atomic potential depth of 0.9 mK and a molecular one of 1.5 mK, calculated with the Cs_2 static polarizability given in [19]. The molecular temperature is roughly identical to the atomic one since the PA process does not induce any additional heating [10]. We want to mention here that the analysis of the PA line shape (see fit in Fig. 2) allows us to observe the magnetic sub levels structure of the $J = 2$ state whose degeneracy is lifted by the CO_2 laser electric field [20,21]. This leads to a PA line broadening of ≈ 5 MHz in addition to the natural linewidth of ≈ 10 MHz. The full analysis of the PA line shape is here in agreement with a temperature of $\approx 40 \mu\text{K}$.

Figure 1 shows the temporal evolution of the number of atoms and molecules in the trap. The lower curve of this figure (solid circles) shows a lifetime of 110 ms for the molecular cloud in presence of cold atoms, which is quite short compared to the 2.7 s lifetime of the atomic cloud. This molecular trap lifetime does not depend on whether

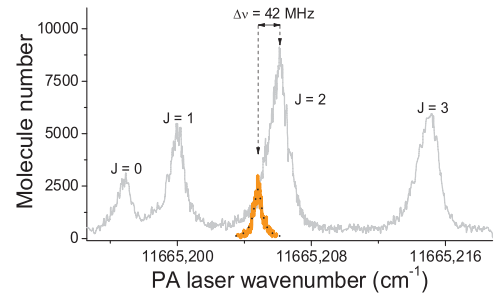


FIG. 2 (color online). PA spectrum of the $0_g^-(6s + 6p_{3/2})(\nu = 6, J)$ lines in the MOT (gray line) and in the optical trap [dark line (orange)]. A fit of the latter is also represented (dotted line) (see text).

PRL **96**, 023202 (2006)

PHYSICAL REVIEW LETTERS

week ending
20 JANUARY 2006

the atoms left in the trap are in $f = 3$ or $f = 4$ hyperfine state. Similar lifetime measurements are obtained after PA of atoms in any of those two hyperfine states. We interpret this lifetime as the result of inelastic collisions between cold atoms and cold molecules. By pushing the atoms outside the QUEST, using a resonant laser beam on the transition $6s_{1/2}, f = 4 \rightarrow 6p_{3/2}, f' = 5$ (the repumping beam is on again during this phase), we observe an increase of this lifetime up to 640 ms. The inset of Fig. 1 shows the evolution of the molecular sample lifetime versus the number of atoms left in the QUEST. We can see that this lifetime is quite sensitive even to a small number of atoms in the trap. The dynamics of the molecular population for the mixed trap is given by the rate equation

$$\begin{aligned} \frac{dN_{\text{Cs}_2}(t)}{dt} \simeq & -[\Gamma_{\text{Cs}_2} + K_{\text{Cs}_2\text{Cs}}\bar{n}_{\text{Cs}}(t)]N_{\text{Cs}_2}(t) \\ & - 2G_{\text{Cs}_2}\bar{n}_{\text{Cs}_2}(t)N_{\text{Cs}_2}(t), \end{aligned}$$

where Γ_{Cs_2} is the background loss rate, $K_{\text{Cs}_2\text{Cs}}$ and G_{Cs_2} are the atom-molecule and molecule-molecule collision rate coefficient, respectively. The molecular population decay is analyzed assuming that the loss of molecules occurred mainly due to collisions with cold atoms, in $f = 3$ hyperfine level. Assuming a constant atomic density, it results an exponential decay of the molecules number. We extract from our data (inset of Fig. 1) the parameter $K_{\text{Cs}_2\text{Cs}} = 2.6^{+4}_{-1.3} \times 10^{-11} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$. This uncertainty on the value of $K_{\text{Cs}_2\text{Cs}}$ comes from the uncertainty on the atomic density previously determined.

As already mentioned, PA in the potentials $0_g^-, 1_u(6s + 6p_{3/2})$, and $0_u^+(6s + 6p_{1/2})$ was also performed, as shown in Fig. 3(a). We have also considered a particular scheme for the formation of molecules [see Fig. 3(b)], where atoms are photoassociated into one level ($\nu = 103$) of the outer well of the $0_g^-(6s + 6p_{3/2})$ potential, coupled by tunneling effect with those of the inner one and predicted to form deeper bound molecules ($\nu' = 7-9$ [22] whereas after PA via $\nu = 6$ we obtain cold molecules in $\nu' = 33-47$ [23]) in the triplet ground state [24]. Cold atom-molecule collision rate and molecule collision rate with background gas does not seem to depend on the photoassociated state.

All observed lifetimes of a pure molecular trap are about 4 times smaller than those observed for the atomic cloud ($f = 3$) in the same conditions of vacuum background. To explain this difference, we have first tested the role of the CO_2 laser intensity on both trap lifetimes. We have considered two different waists (84 and 100 μm) for the QUEST leading to two different laser intensities. We have not observed any difference for the atomic and molecular trap lifetime for both waists. It does not seem that the CO_2 laser induces significant transitions between rovibrational levels which are electric-dipole allowed due to the contribution of the second-order spin-orbit interaction [25]. It seems that the explanation for this factor 4 comes

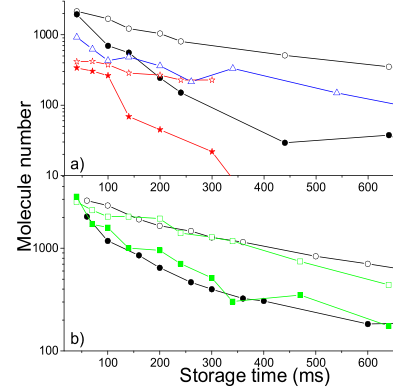


FIG. 3 (color online). (a) Trap lifetime of a molecular sample with atoms (solid symbols) and without (open symbols), after PA of the $0_g^-(6s + 6p_{3/2})$ (circles line), $1_u(6s + 6p_{3/2})$ (triangles line), and $0_u^+(6s + 6p_{1/2})$ (stars line) states. (b) Evolution of the number of trapped molecules with atoms (solid symbols) and without (open symbols) after PA of the $\nu = 6$ (circle symbols) and $\nu = 103$ (square symbols) level of the $0_g^-(6s + 6p_{3/2})$ state. Except for 1_u state, molecules are formed via PA of atoms in hyperfine level $6 s f = 4$ ($f = 3$ in the case of 1_u).

from the fact that the cross section for collisions between hot atom and cold molecules is larger by the same factor compared to the hot atom-cold atom cross section. This result is not so surprising if we consider that the formed and detected molecules are in a bunch of rovibrational levels close in energy to the dissociation limit $6s + 6s$. These molecules have large maximum elongations leading to large impact parameters. To confirm this assertion, we have measured the atomic and molecular trap lifetimes in the case of a pure magnetic confinement with a setup similar to the one of [25]. Here the atomic and molecular densities are 2 orders of magnitude lower, and the inelastic collisions between cold species can be ignored. We have seen that both lifetimes are limited by the background gas collisions and are mostly identical to those observed in the QUEST, with the same factor 4 between atomic and molecular case.

The role of molecule-molecule collisions is not dominant in our experiment compared to the one of background gas collisions. Figure 4 gives the evolution of a pure molecular sample with a reduced background gas pressure. The molecules are formed via PA of cold atoms prepared here in $f = 3$ hyperfine level, which provides a higher rate of cold molecules formation. A simple exponential decay function does not fit very well the data. Nevertheless, with a two-body fit function, the data are better adjusted and we estimate $G_{\text{Cs}_2} = 1.0(5) \times 10^{-11} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$, in agreement with results given in reference [9].

To conclude, we have reported the realization and the characterization of an atomic and molecular QUEST which constitutes a quite exciting tool to trap homonuclear molecules. A systematic collisional study inside the QUEST

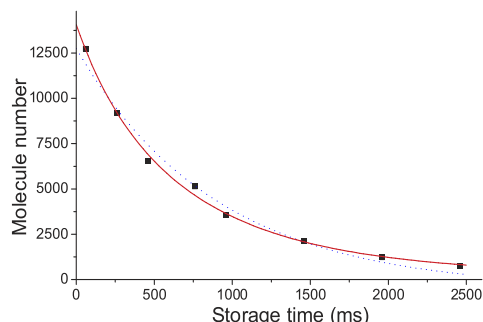


FIG. 4 (color online). Trap lifetime of a pure molecular sample. The evolution of the number of molecules, formed via PA of the $0_g^-(6s + 6p_{3/2})$ ($v = 6, J = 2$) state, is plotted (solid squares) and fitted with a function accounting for two-body collisions (solid line). A fit with an exponential decay function is also represented (dotted line). The fit yields a lifetime of 900 ms and a two-body rate coefficient of $G_{\text{Cs}_2} = 1.0(5) \times 10^{-11} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$.

allowed us to determine the atom-molecule and molecule-molecule collision rates. Both rates are close to the unitarity limit ($\approx 1.5 \times 10^{-11} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ for atom-molecule collisions and $\approx 8 \times 10^{-12} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ for molecule-molecule collisions) and are not compatible with the formation of a stable Bose-Einstein condensate of molecules formed initially from bosonic atoms. The theoretical Ref. [26] predicts an atom-molecule collisional rate quite sensitive to the vibrational level of the formed molecule. In our experiment, we have not seen any evidence of such dependence, but further experiments with selected rovibrational levels are necessary to definitely conclude. Concerning the lifetime of a pure molecular trap, molecule collisions with background gas is the limiting process; the collision cross section being about a factor 4 higher than the one for the atoms. To go further, it can be interesting to increase the trap lifetime by decreasing the vacuum background pressure, which should permit us to measure the lifetime of the metastable molecular triplet state $a^3\Sigma_u^+$, to study more precisely molecule-molecule collisions and to observe molecular transitions induced by the CO_2 laser.

Up to now, the molecules are preferentially formed in high vibrational levels. An interesting challenge is to prepare the molecules in low vibrational levels of the singlet state which may exhibit different behavior against collisional processes. Two-photon PA [27,28] toward highly excited states can offer good configuration. Another challenge is to prepare the molecules in a well defined rovibrational level using Raman PA [27,28], chirped pulse PA [29] or microwave PA. At term a dense and cold molecular

sample could be prepared in the lowest rovibrational level ($v = 0, J = 0$) of the ground state where Bose-Einstein condensation of such a gas would not be impeded by inelastic collisions.

M.M. received support from the COMOL network (Contract No. HPRN-CT-2002-00309). The authors thank N. Vanhaecke for the preliminary design of the laser trap, and A. Fioretti, O. Dulieu, A. Crubellier, and F. Masnou-Seeuws for stimulating discussions.

Note added.—We recently became aware that similar work has been carried out simultaneously in the group of M. Weidemüller at the Physikalisches Institut in Freiburg, Germany [30].

*Email address: nassim.zahzam@lac.u-psud.fr

†Present address: Physikalisches Institut, Universität Freiburg, 79104 Freiburg, Germany.

‡Electronic address: www.lac.u-psud.fr

- [1] M. Greiner *et al.*, Nature (London) **426**, 537 (2003).
- [2] S. Jochim *et al.*, Science **302**, 2101 (2003).
- [3] J. Doyle *et al.*, Eur. Phys. J. D **31**, 149 (2004).
- [4] J.J. Hudson *et al.*, Phys. Rev. Lett. **89**, 023003 (2002).
- [5] D. Demille, Phys. Rev. Lett. **88**, 067901 (2002).
- [6] C. A. Regal *et al.*, Phys. Rev. Lett. **92**, 083201 (2004).
- [7] T. Mukaiyama *et al.*, Phys. Rev. Lett. **92**, 180402 (2004).
- [8] G. Quémener *et al.*, Phys. Rev. A **71**, 032722 (2005), and references therein.
- [9] C. Chin *et al.*, Phys. Rev. Lett. **94**, 123201 (2005).
- [10] A. Fioretti *et al.*, Phys. Rev. Lett. **80**, 4402 (1998).
- [11] S. Inouye *et al.*, Nature (London) **392**, 151 (1998).
- [12] N. Vanhaecke *et al.*, Phys. Rev. Lett. **89**, 063001 (2002).
- [13] D. Wang *et al.*, Phys. Rev. Lett. **93**, 243005 (2004).
- [14] T. Takekoshi *et al.*, Phys. Rev. Lett. **81**, 5105 (1998).
- [15] A. Fioretti *et al.*, Opt. Commun. **243**, 203 (2004).
- [16] M. Mudrich *et al.*, Phys. Rev. A **70**, 062712 (2004).
- [17] C. M. Dion *et al.*, Phys. Rev. Lett. **86**, 2253 (2001).
- [18] R. Marruset *et al.*, Phys. Rev. **147**, 55 (1966).
- [19] V. Tarnovsky *et al.*, J. Chem. Phys. **98**, 3894 (1993).
- [20] S. D. Kraft *et al.*, Phys. Rev. A **71**, 013417 (2005).
- [21] B. Friedrich *et al.*, Phys. Rev. Lett. **74**, 4623 (1995).
- [22] M. Vatasescu, Ph.D. thesis, Université Paris XI, 1999.
- [23] C. Drag *et al.*, IEEE J. Quantum Electron. **36**, 1378 (2000).
- [24] M. Vatasescu *et al.*, Phys. Rev. A **61**, 044701 (2000).
- [25] N. Vanhaecke, Ph.D. thesis, École polytechnique, 2003.
- [26] N. Balakrishnan *et al.*, Phys. Rev. Lett. **80**, 3224 (1998).
- [27] R. Wynar *et al.*, Science **287**, 1016 (2000).
- [28] N. Vanhaecke *et al.*, Eur. Phys. J. D **28**, 351 (2004).
- [29] C. P. Koch *et al.*, Phys. Rev. Lett. **94**, 193001 (2005).
- [30] P. Staunum *et al.*, Phys. Rev. Lett. **96**, 023201 (2006).

REPORTS

Optical Pumping and Vibrational Cooling of Molecules

Matthieu Viteau,¹ Amodsen Chotia,¹ Maria Allegrini,^{1,2} Nadia Bouloufa,¹ Olivier Dulieu,¹ Daniel Comparat,¹ Pierre Pillet^{1*}

The methods producing cold molecules from cold atoms tend to leave molecular ensembles with substantial residual internal energy. For instance, cesium molecules initially formed via photoassociation of cold cesium atoms are in several vibrational levels v of the electronic ground state. We applied a broadband femtosecond laser that redistributes the vibrational population in the ground state via a few electronic excitation/spontaneous emission cycles. The laser pulses are shaped to remove the excitation frequency band of the $v = 0$ level, preventing re-excitation from that state. We observed a fast and efficient accumulation ($\sim 70\%$ of the initially detected molecules) in the lowest vibrational level, $v = 0$, of the singlet electronic state. The validity of this incoherent depopulation pumping method is very general and opens exciting prospects for laser cooling and manipulation of molecules.

Over the past 20 years, the field of atomic physics has made enormous strides, with laser cooling and the achievement of atomic Bose-Einstein condensation. Similar advances are expected with cold molecules, involving applications, for instance, in molecular clocks, tests on fundamental physical constants, or quantum computing. Thus, the preparation of dense molecular samples in the ground state at low temperatures offers exciting prospects in both physics and chemistry (1–3).

An important step in the field of cold molecules has been the demonstration of a method for producing translationally cold samples of ground-state Cs_2 molecules via photoassociation of cold Cs atoms (4). This result has been quickly followed by the elaboration of various methods to prepare cold molecular samples. Methods that start with pre-formed molecules, usually in the lowest vibrational level, access translational temperatures down to a few millikelvins (5–9). Accessing temperatures even lower than these

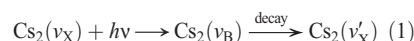
presents a major challenge. Cold molecules in the micro- or nanokelvin temperature range can only be achieved starting with cold atoms using collisional processes such as photoassociation in a thermal atomic cloud (4), Feshbach magneto-association in atomic Bose-Einstein condensates (10), or three-body collisions in an atomic Fermi sea to prepare molecular Bose-Einstein condensates (11). However, these methods of producing (translationally) cold molecules from cold atoms lead to the production of vibrationally excited molecules; that is, those with residual internal energy. For additional applications of cold molecules (1–3), the challenge is therefore to prepare and control molecules in the ground vibrational and rotational state.

Various experimental schemes can favor the formation of cold molecules in their lowest vibrational level. In a quantum gas, the adiabatic transfer of population [stimulated Raman adiabatic passage (STIRAP)] from a high ro-vibrational level toward a lower one has been achieved recently for molecules formed by magneto-association (12). In a cold thermal gas, a fraction of cold ground state Rb-Cs molecules, initially formed by photoassociation, has been prepared into the lowest vibrational level, $v = 0$, with a rate of $\sim 500 \text{ s}^{-1}$ by transferring $\sim 6\%$ of the population

of a given high vibrational level into $v = 0$ (13). A few $v = 0$ cold ground-state potassium dimers have also been observed with the use of a two-photon process for photoassociation (14), but several other vibrational levels are populated as well. For further applications, what is needed is a molecular analog of optical pumping of atoms to realize vibrational laser cooling, which would transfer all the populations of the different vibrational levels into the lowest one.

Several theoretical approaches have been proposed to favor spontaneous emission toward the lowest ro-vibrational level: for instance, the use of an external cavity (15) or controlled interplay of coherent laser fields and spontaneous emission through quantum interferences between different transitions (16–18). As in these latter coherent control propositions, our approach uses a shaped pulsed laser but is based on an incoherent process of depopulation pumping with a train of several identical weak femtosecond laser pulses. More closely related to our work is the proposition of using a tailored incoherent broadband light source for the rotational cooling of molecular ions (19, 20).

Here, we report the transfer of populations from an ensemble of vibrational levels of cold Cs_2 molecules, prepared in the electronic ground-state via photoassociation, into $v = 0$. The main idea is to use a broadband laser tuned to the transitions between the different vibrational levels (labeled v_X and v_B) of the singlet-ground-state X and an electronically excited state B. The absorption/spontaneous emission cycles lead, through optical pumping, to a redistribution of the vibrational population into the ground state (Eq. 1)

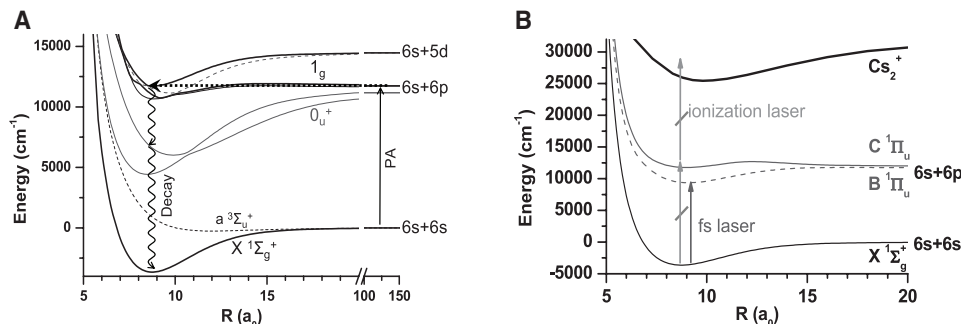


where ideally $v'_X < v_X$ to realize vibrational cooling. The broadband character of the laser permits repetition of the pumping process from multiple vibrational states. By removing the laser frequencies corresponding to the excitation of the $v_X = 0$ level, we make it impossible to pump molecules out of this level, thus making $v_X = 0$ a dark state. As time progresses, the absorption/spontaneous emission cycle described by Eq.

¹Laboratoire Aimé Cotton, CNRS, Université Paris-Sud, Bâtiment 505, 91405 Orsay, France. ²Consorzio Nazionale Interuniversitario per le Scienze Fisiche della Materia, Dipartimento di Fisica, Università di Pisa, Largo Pontecorvo 3, 56127 Pisa, Italy.

*To whom correspondence should be addressed. E-mail: pierre.pillet@lac.u-psud.fr

Fig. 1. Relevant schematic molecular potential curves of the Cs dimer, converging toward the dissociation limits $6s+6s$, $6s+6p$, and $6s+5d$ (for clarity, the fine structure is not labeled). (A) Photoassociation of cold atoms and formation of cold molecules. The cw laser (PA) is tuned $\sim 1 \text{ cm}^{-1}$ below the atomic transition $6s_{1/2} \rightarrow 6p_{3/2}$. For the potentials of 1_g symmetry, long-range radial wave function is coupled to short range radial wave function by internal coupling of the potentials (26). The ground-state molecules, $X^1\Sigma_g^+$, are formed by a spontaneous emission cascade via the 0_u^+ potentials. (B) REMPI ionization process via the $C^1\Pi_u$ state by the pulsed dye laser, and electronic transition $X^1\Sigma_g^+ \rightarrow B^1\Pi_u$ induced by the femtosecond laser. a_0 is the Bohr radius.



1 leads to an accumulation of the molecules in the $v_X = 0$ level. We thereby realize vibrational laser cooling.

In our experiment, the formation of cold molecules is achieved in a Cs vapor-loaded magneto-optical trap (MOT) via photoassociation (4). Two colliding cold atoms resonantly absorb a photon with a frequency tuned slightly (~ 1 cm $^{-1}$) below the atomic $6s_{1/2} - 6p_{3/2}$ transition to create a molecule in an excited electronic state. The photoassociated molecules decay by spontaneous emission into stable vibrational levels of the molecular ground state $X^1\Sigma_g^+$ (Fig. 1A). They are then detected by resonance enhanced multiphoton ionization (REMPI). In contrast with previous studies (4), the REMPI frequency is tuned to ionize deeply bound vibrational levels of the X state

through the excited $C^1\Pi_u$ molecular state (Fig. 1B). The complete mechanism for the formation of cold molecules in the singlet ground state is currently being studied, but the most probable scenario is shown in Fig. 1A. Photoassociation is achieved using a cw Titanium:Sapphire laser (intensity = 300 W cm $^{-2}$) pumped by an Argon-ion laser. The REMPI detection uses a pulsed dye laser (wave number ~ 16000 cm $^{-1}$, spectral bandwidth = 0.3 cm $^{-1}$) pumped by the second harmonic of a pulsed Nd:YAG (Nd-yttrium-aluminum-garnet) laser (repetition rate = 10 Hz, duration = 7 ns). The formed Cs_2^+ ions are detected with a pair of microchannel plates through a time-of-flight mass spectrometer. In the experimental spectrum obtained by scanning the REMPI laser wavelength (Fig. 2A), we assigned the observed lines to known

transitions from the ground state levels $v_X = 1$ to 7 to various levels of the C state (21). In this first step, no molecules in the vibrational level $v_X = 0$ are detected. The present low REMPI resolution does not provide the capability of analyzing the rotational population of the molecules.

To achieve vibrational cooling, we applied a broadband femtosecond mode-locked laser (repetition rate = 80 MHz, pulse duration = 100 fs, SD-Gaussian bandwidth = 54 cm $^{-1}$, average intensity = 50 mW/cm ^{2} , and central wavelength = 773 nm or wave number = 12,940 cm $^{-1}$) tuned to the electronic transitions from $X^1\Sigma_g^+(v_X)$ to $B^1\Pi_u(v_B)$ (Fig. 1B). Without shaping the femtosecond laser pulses, we observe a modification of the vibrational distribution, which we interpret as a transfer of population between vibrational levels as indicated by Eq. 1. The relative strengths of the transitions between the vibrational levels of the X-B states are given by the Franck-Condon factors (Fig. 3B). If we consider, for instance, a molecule in $v_X = 4$, the most probable excitation is to $v_B = 1$, which decays as in Eq. 1 with a partitioning ratio of $\sim 30\%$ to $v'_X = 0$ and 70% distributed essentially among $v'_X = 3, 4$, and 5. To control the optical pumping of the molecules, we shaped the femtosecond laser pulses by suppressing the frequencies above 13,030 cm $^{-1}$ that could induce electronic excitation from $v_X = 0$ (Fig. 3A and hatched area in Fig. 3B). We used a home-built shaper with a diffraction grating (1800 lines/mm) after which high frequencies of the laser beam are screened out (lower part of Fig. 3A). After a few cycles of absorption of laser light and spontaneous emission, considering the populations in the observed vibrational levels ($v_X = 0 - 10$), a large fraction ($65 \pm 10\%$) of the molecules are accumulated in the lowest vibrational level ($v_X = 0$).

On application of the shaped laser pulses, the resonance lines corresponding to transition from $v_X = 0$ to $v_C = 0$ to 3 emerged strongly in the

Fig. 2. Cs_2^+ ion spectra.

(A) Spectrum without the shaped laser pulse. The spectrum has a background due to other REMPI processes that do not mask the resonance lines. Vertical dashed lines indicate the positions of all the resonances for vibrational transitions between the ground state, $X^1\Sigma_g^+$ ($v_X = 0$ to 7) and the electronically excited $C^1\Pi_u$ state (v_C). (B) Spectrum with the shaped laser pulse applied continuously, offset by 40 ions for higher visibility. The observed transitions from $v_X = 0$ correspond to $v_C = 0, 1, 2$, and 3. Their broadening corresponds to the saturation of the resonance in the REMPI process. Most of the lines present in spectrum (A) are greatly reduced, whereas the $v_X = 0$ lines grow more intense. The resonance labeled 1-4 indicates imperfect depopulation of $v_X = 1$ because of the roughness of the shaping.

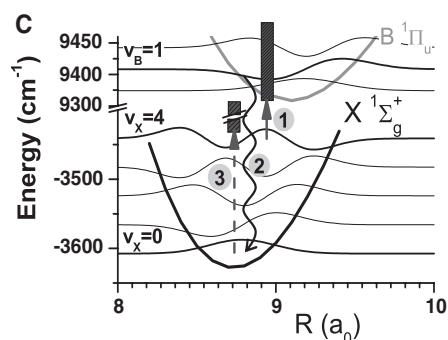
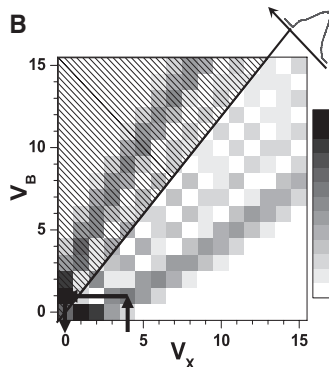
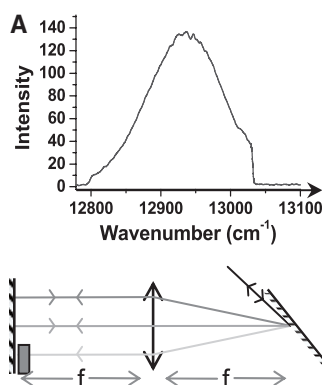
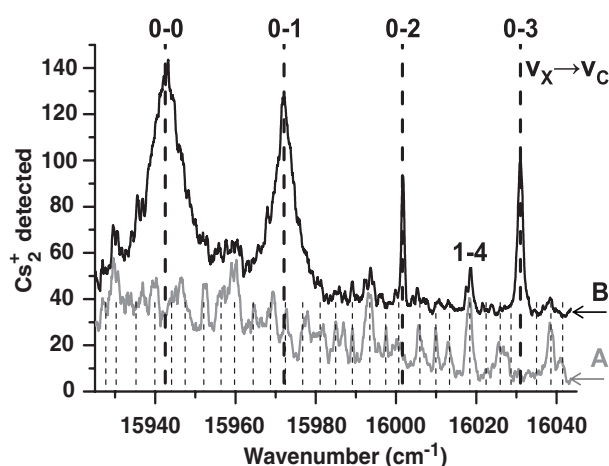


Fig. 3. Optical pumping scheme with a shaped femtosecond laser pulse. (A) (Top) Line gives the laser spectrum profile with shaping [also shown in (B)], close to a Gaussian profile sharply cut off at 13,030 cm $^{-1}$. (Bottom) 4-f shaping arrangement (from right to left: grating, cylindrical lens $f = 500$ mm, blocker, mirror). (B) Condon parabola indicating the importance (level of gray) of the Franck-Condon (FC) factors (square of the wave function overlap), corresponding to the relative transition probabilities from v_X to v_B . The diagonal line corresponds to the shaped laser cutoff frequency (13,030 cm $^{-1}$).

The hatched area cannot be accessed in the presence of the blocker. (C) Optical pumping scheme and vibrational wave functions. The vertical black boxes indicate the spectral bandwidth of the laser. In (B) and (C), arrows indicate the optical pumping for $v_X = 4$ molecules. The most probable optical pumping scheme is to reach $v_X = 0$ through excitation into $v_B = 1$. Step 1, excitation toward $v_B = 1$; step 2, spontaneous decay to $v_X = 0$; and step 3, molecules in $v_X = 0$ are trapped. The incoherent dark state formed by the laser pulse shaping does not allow the excitation from $v_X = 0$ to any v_B level.

REPORTS

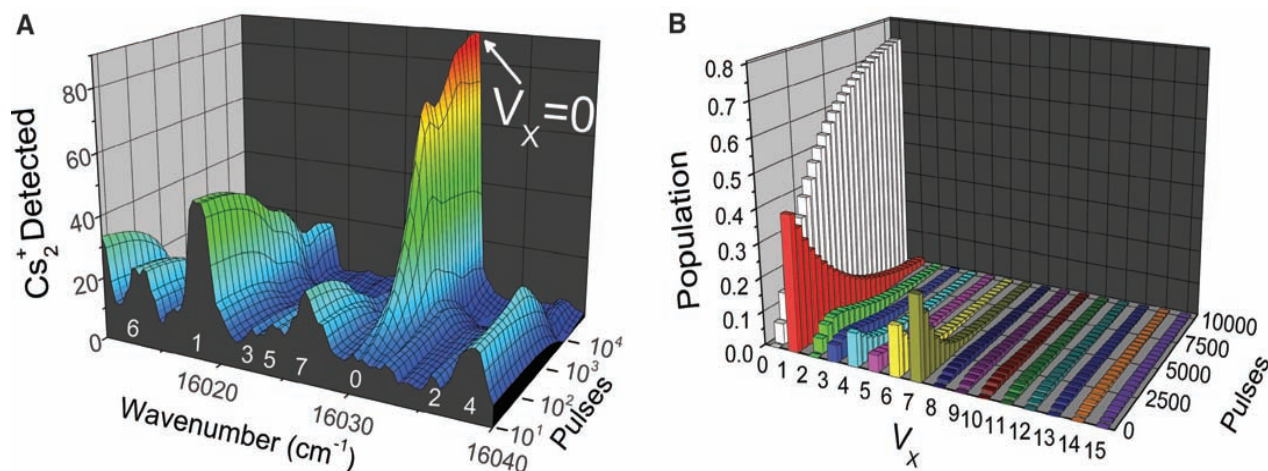


Fig. 4. Temporal evolution (pulse separation = 12.5 ns) of the populations in the different vibrational levels of the ground state. Because of our weak laser intensity, the excitation probability is only 0.1% for a single pulse. **(A)** Experimental population versus the number of applied femtosecond pulses, smoothed from five

spectra (similar to Fig. 2 but taken after a controlled number of pulses). The frequencies correspond to transitions from $v_x = 0 - 7$ to v_c levels (white label). **(B)** Theoretical simulation where we represent the temporal evolution of $v_x = 0$ to 15 starting with initial conditions close to the experimental ones.

REMPI spectra (Fig. 2B). The intensity of the lines indicates efficient transfer of the molecules into the lowest vibrational level $v_x = 0$. By controlling the number of femtosecond laser pulses with an acousto-optic modulator, we analyzed the time dependence of the optical pumping scheme (Fig. 4A). At the weak laser intensities applied here, the transfer of population into the $v_x = 0$ level is almost completed after an exposure of the sample to 5000 pulses over 60 μs . Taking into account the efficiency of the detection, the detected ion signal corresponds to about 1000 molecules in the $v_x = 0$ level in the MOT area and thus to a formation rate of $v_x = 0$ molecules of more than 10^5 per second, which represent roughly 1% of the atomic loading flux in the MOT.

We have modeled the optical pumping process using the experimentally known $X^1\Sigma_g^+$ and $B^1\Pi_u$ potential curves (22, 23). In our perturbative regime, the excitation probabilities are proportional to the laser spectral density at the transition frequencies. The lifetime of the electronically excited state B (~ 15 ns) is close to the 12.5-ns repetition period of the femtosecond laser, leaving negligible accumulation of coherence in the sample from pulse to pulse (24). We then assumed in our rate equation model an instantaneous spontaneous decay. The model shows that the vibrational population (v_x) proceeds by random walk, mostly through low vibrational levels, until reaching the $v_x = 0$ level. More than 70% of the total population is transferred into the $v_x = 0$ level (Fig. 4B) when we start from a distribution of vibrational levels close to the experimental one. The simulation shows that the limitation of the efficiency of the mechanism is in the optical pumping toward higher vibrational levels. Nevertheless, the simulation demonstrates that, for instance, increasing the bandwidth of the laser would reduce this detri-

mental pumping and would increase the population in $v_x = 0$. The theoretical model agrees well with the data in Fig. 4A. Furthermore, it indicates that only about five absorption/spontaneous emission cycles, corresponding to ~ 5000 laser pulses, are necessary for a molecule to be transferred into the $v_x = 0$ level. This small number of cycles does not substantially modify the temperature of the molecular sample. The theoretical simulation takes into account the rotational levels and demonstrates, for the experiment, the possibility to achieve rotational cooling for an adapted shaping, accurate enough to resolve the rotational structure.

The method—optical pumping of diatomic molecules using a shaped broadband source—is expected to be generally applicable to most molecular sample experiments that present a distribution of population of the low vibrational levels in the ground state. The efficiency will depend on the transition strengths between the different vibrational levels of the considered electronic states, but it could be optimized with a suitable shaping. The optical pumping should not be limited to cold samples of molecules prepared via photoassociation of cold atoms but should also be applicable to other cases, such as molecules in a molecular beam. Broadband shaped optical pumping could also be used as a repumping laser in laser manipulation of atoms and molecules, opening prospects in laser cooling of new species (25).

References and Notes

1. J. Doyle, B. Friedrich, R. V. Krems, F. Masnou-Seeuws, *Eur. Phys. J. D* **31**, 149 (2004).
2. R. V. Krems, *Int. Rev. Phys. Chem.* **24**, 99 (2005).
3. O. Dulieu, M. Raoult, E. Tiemann, *J. Phys. B* **39**, 19 (2006).
4. A. Fioretti *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 4402 (1998).
5. J. D. Weinstein, R. Decarvalho, T. Guillet, B. Friedrich, J. M. Doyle, *Nature* **395**, 148 (1998).

6. H. L. Bethlem, G. Berden, G. Meijer, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 1558 (1999).
7. M. S. Elioff, J. J. Valentini, D. W. Chandler, *Science* **302**, 1940 (2003).
8. M. Gupta, D. Herschbach, *J. Phys. Chem. A* **103**, 10670 (1999).
9. S. A. Rangwala, T. Junglen, T. Rieger, P. W. Pinkse, G. Rempe, *Phys. Rev. A* **67**, 043406 (2003).
10. M. Theis *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 123001 (2004).
11. S. Jochim *et al.*, *Science* **302**, 2101 (2003), published online 13 November 2003; 10.1126/science.1093280.
12. K. Winkler *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 043201 (2007).
13. J. M. Sage, S. Sainis, T. Bergeman, D. Demille, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 203001 (2005).
14. A. N. Nikolov *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 703 (1999).
15. G. Morigi, P. W. H. Pinkse, M. Kowalewski, R. de Vivie-Riedle, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 073001 (2007).
16. D. J. Tannor, R. Kosloff, A. Bartana, *Faraday Discuss.* **113**, 365 (1999).
17. A. Bartana, R. Kosloff, D. J. Tannor, *J. Chem. Phys.* **99**, 196 (1993).
18. S. G. Schirmer, *Phys. Rev. A* **63**, 013407 (2000).
19. I. S. Vogelius, L. B. Madsen, M. Drewsen, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 173003 (2002).
20. I. S. Vogelius, L. B. Madsen, M. Drewsen, *J. Phys. B* **37**, 4571 (2004).
21. M. Raab, G. Höning, W. Demtröder, C. R. Vidal, *J. Chem. Phys.* **76**, 4370 (1982).
22. W. Weickenmeier *et al.*, *J. Chem. Phys.* **82**, 5354 (1985).
23. U. Diemer, R. Duchowicz, M. Ertel, E. Mehdizadeh, W. Demtröder, *Chem. Phys. Lett.* **164**, 419 (1989).
24. D. Felinto, C. A. C. Bosco, L. H. Acioli, S. S. Vianna, *Opt. Commun.* **215**, 69 (2003).
25. J. T. Bahns, W. C. Stwalley, P. L. Gould, *J. Chem. Phys.* **104**, 9689 (1996).
26. C. M. Dion *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 2253 (2001).
27. We thank T. F. Gallagher for helpful discussions during the redaction of this article and acknowledge fruitful debates with F. Masnou-Seeuws, E. Luc-Koenig, A. Crubellier, and B. Chatel about the applications at the frontier of the ultracold and ultrafast fields. M.A. thanks the EC-Network EMALI. This work is supported by the Institut Francilien de Recherche sur les Atomes Froids. The laser cooling development is performed in the frame of the Agence Nationale de la Recherche grant NTOS-2 41885 CORMOL.

23 April 2008; accepted 9 June 2008
10.1126/science.1159496

Continuous transfer and laser guiding between two cold atom traps

E. Dimova^{1,a}, O. Morizot^{2,b}, G. Stern¹, C.L. Garrido Alzar², A. Fioretti¹, V. Lorent², D. Comparat¹, H. Perrin², and P. Pillet¹

¹ Laboratoire Aimé Cotton, CNRS, bâtiment 505, Université Paris-Sud, 91405 Orsay, France

² Laboratoire de physique des lasers, CNRS-Université Paris 13, 99 av. Jean-Baptiste Clément, 93430 Villetaneuse, France

Received 27 September 2006 / Received in final form 8 December 2006

Published online 2nd February 2007 – © EDP Sciences, Società Italiana di Fisica, Springer-Verlag 2007

Abstract. We have demonstrated and modeled a simple and efficient method to transfer atoms from a first Magneto-Optical Trap (MOT) to a second one. Two independent setups, with cesium and rubidium atoms respectively, have shown that a high power and slightly diverging laser beam optimizes the transfer between the two traps when its frequency is red-detuned from the atomic transition. This pushing laser extracts a continuous beam of slow and cold atoms out of the first MOT and also provides a guiding to the second one through the dipolar force. In order to optimize the transfer efficiency, the dependence of the atomic flux on the pushing laser parameters (power, detuning, divergence and waist) is investigated. The atomic flux is found to be proportional to the first MOT loading rate. Experimentally, the transfer efficiency reaches 70%, corresponding to a transfer rate up to 2.7×10^8 atoms/s with a final velocity of 5.5 m/s. We present a simple analysis of the atomic motion inside the pushing-guiding laser, in good agreement with the experimental data.

PACS. 07.77.Gx Atomic and molecular beam sources and detectors – 32.80.Lg Mechanical effects of light on atoms, molecules, and ions – 32.80.Pj Optical cooling of atoms; trapping

1 Introduction

The realization of degenerate quantum gases requires the production of an initial dense and cold trapped atomic sample. The lifetime of the trapped atoms must be long enough to allow for appropriate evaporative cooling ramps, lasting up to several tens of seconds. A standard vapour Magneto-Optical Trap (MOT) setup cannot always satisfy this last condition because of the relatively high background pressure of the atomic vapour in the cell. The use of a dispenser [1] or of a desorption source [2,3] to load the MOT does not usually provide a trap lifetime longer than a few seconds. To obtain the required lifetime, the MOT has to be placed in an ultra-high vacuum chamber and loaded from a cold atom source, in general a slow and cold atomic beam. One of the demonstrated and widely used methods to create a cold atomic beam is the Zeeman slower technique. However, this solution requires an important technical development of different experimental techniques than the one implied in a MOT setup. In this paper, we will then concentrate on the transfer of atoms from a first cold source to a trap situated in a second high vacuum chamber.

There are several ways to transfer atoms from a cold atomic source to the high vacuum chamber. Mechanical devices [4] or magnetic guides [5] are used to implement an efficient transfer of atoms initially in a MOT directly to either magnetic, electrostatic or atom chip traps. Other techniques, based on quasi-resonant light forces, allow a faster transfer to a recapture MOT. Beam velocities low enough to allow the capture in a MOT in an ultra-high vacuum chamber can be obtained by the pyramidal MOT [6,7], the conical mirror funnel [8] or the two-dimensional MOT [9–12]. Even simpler devices exist such as the low velocity intense atomic source (LVIS) [13–15]. Very high flux, up to 3×10^{12} atoms/s, have been reported with a transversely cooled candlestick Zeeman slower type of setup [16]. However, the counterpart of this large flux is a higher atomic velocity, 116 m/s in this last experiment, which is by far too high to load a second MOT. A pulsed multiple loading, starting from a three-dimensional MOT, has been performed in reference [17]. The atoms are pushed by a near resonant laser beam resulting in a high number of atoms 1.5×10^{10} in second MOT, loading rate 2×10^8 atoms/s and allow lower velocity 16 m/s. However, the transfer is based on using an hexapole magnetic field, produced by a current above 60 A, which complicates the experiment. Simpler devices, without magnetic guiding, have achieved similar result by using continuous

^a e-mail: Emiliya.Dimova@lac.u-psud.fr

^b e-mail: morizot@lpl.univ-paris13.fr

transfer [18–20]. In these experiments, a thin extraction column is created in the centre of a MOT and, due to a radiation pressure imbalance, a continuous beam of cold atoms is produced. It is possible to couple these simple devices with a distinct dipolar atomic guide [21]. We propose here to use the same laser beam for pushing and guiding the atoms, resulting in an even simpler setup.

This paper reports on a double MOT setup combining the ability of a pushing laser to extract the atoms from a first trap (MOT1) and to guide them to a second trap (MOT2). The idea is to merge the leaking MOT technique [13,18,19] with the red-detuned far off-resonance optical dipole guide technique [22–24]. Two experiments have been simultaneously performed in two different laboratories, with different atoms: ^{133}Cs at Laboratoire Aimé Cotton and ^{87}Rb at Laboratoire de physique des lasers. Our setups are as simple as the one used in the leaking MOT techniques, but provide a higher flux and a lower atomic beam velocity. We can achieve a transfer efficiency up to 70% with a mean atomic velocity 4 to 12 m/s depending on the pushing beam parameters. Our setups are very robust against misalignments of the pushing and guiding laser beam, and small variations of its detuning or power. The only requirement is a sufficiently high laser power (tens of mW) to produce a significant dipolar force to guide the atoms during their flight.

This paper is organized as follows: in Section 2 we give details on the experimental realization of the beam and discuss the role of MOT1 parameters. In Section 3 we describe theoretically the pushing and guiding processes during the atom transfer. Section 4 discusses the experimental parameter dependences of the setup as compared with the theory. Finally we present a comparison with other available techniques.

2 Experimental realization

2.1 Experimental setup

The vacuum system is similar in both experiments, except for a slight difference in the design of the differential vacuum tubes and the MOT2 cells.

For the cesium (resp. rubidium) experiment the setup consists of two cells vertically separated (see Fig. 1). The distance between the two traps is $D = 57$ cm (resp. $D = 72$ cm). A reservoir connected to the upper source cell supplies the atomic vapour. The recapture chamber is a glass cell with $1 \times 1 \times 10 \text{ cm}^3$ (resp. $1.25 \times 7.5 \times 12 \text{ cm}^3$) volume. A differential pumping tube located 3 cm (resp. 10 cm) below MOT1 provides a vacuum within the 10^{-11} mbar range in the bottom MOT2 cell while in the MOT1 cell it is in the 10^{-8} – 10^{-9} mbar range. For the cesium experiment, the tube is 18 cm long and has a conical shape (3 mm diameter at its top and 6 mm at its bottom part) whereas it is cylindrical, 12 cm long and 6 mm diameter in the rubidium experiment.

In both cases, MOT1 runs in a standard magneto-optical trap configuration with a magnetic field gradient around 15 G/cm along the horizontal axis of the

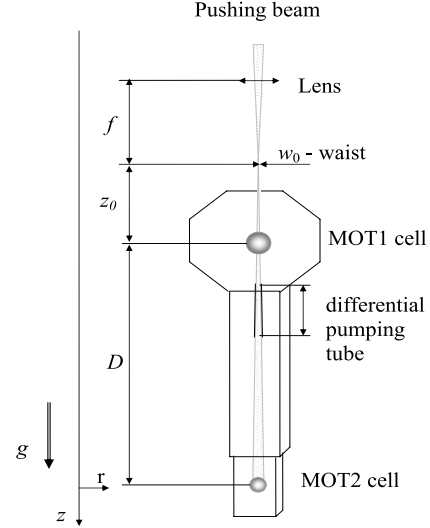


Fig. 1. Scheme of the experimental setups. The parameters used in the discussion (f , D , z_0 , w_0) are labeled on the picture. The vertical z -axis is oriented downwards.

MOT1 coils. All the laser beams have a 2.5 cm diameter (clipped by the mounts of the quarter-wave plates) and are provided by laser diodes. In the rubidium experiment, the laser is divided into 3 retroreflected beams carrying 10 mW laser power. They are 10 MHz red-detuned from the ^{87}Rb $5s(F=2) \rightarrow 5p_{3/2}(F'=3)$ transition. In the cesium experiment, two 5 mW radial beams are retroreflected and make an angle $\pm 45^\circ$ with the vertical axis. Each of the two (non reflected) axial beams carries 10 mW laser power. They are 15 MHz red-detuned from the Cs $6s(F=4) \rightarrow 6p_{3/2}(F'=5)$ transition. The 5 mW repumping light, with a frequency on resonance respectively with the Cs transition $6s(F=3) \rightarrow 6p_{3/2}(F'=4)$ and the ^{87}Rb transition $5s(F=1) \rightarrow 5p_{3/2}(F'=2)$, is mixed with all the trapping beams. In MOT2, the trapping beams are limited to about $2R = 8$ mm in diameter in both experiments due to the cell dimensions and in order to reduce the scattered light.

In addition to these trapping lasers, the linearly polarized pushing-guiding beam, red-detuned from the MOT ($F \rightarrow F+1$) transition ($F=4$ for Cs, $F=2$ for ^{87}Rb) with maximum power of $P_0 = 63$ mW for Cs (resp. $P_0 = 21$ mW for Rb), is aligned vertically into the trap. The parameters used in both experiments are summarized in Table 1. In contrast with the similar setups reported in [18,19], the pushing lasers are not frequency-locked in our experiments. The detuning is chosen to optimize the transfer efficiency and is found to be such that the number of atoms in MOT1 is roughly reduced by a factor ten when the “pushing-guiding beam” is present. The beam is focused at position $z_0 = -34$ cm (resp. $z_0 = -13$ cm) before MOT1 by a lens $f = 2$ m (resp. $f = 1$ m). It is not perfectly Gaussian, however the waist at position z is still given by $w(z) = w_0 \sqrt{1 + (z - z_0)^2 / z_R^2}$,

Table 1. Pushing beam parameters used in cesium and rubidium experiments (see text and Fig. 1). All distances are given in mm, the laser power P is in mW. w_0 , w_1 and w_2 are the pushing beam radius at $1/e^2$ at focus, MOT1 and MOT2 positions, respectively.

exp.	D	f	$ z_0 $	w_0	w_1	w_2	z_R	P
Cs	570	2000	340	0.2	0.65	1.7	110	< 63
Rb	720	1000	130	0.3	0.33	1.0	260	< 21

where $w_0 = 200 \mu\text{m}$ (resp. $300 \mu\text{m}$) is the measured minimum waist and $z_R = 110 \text{ mm}$ is the estimated Rayleigh length (resp. 260 mm , measured value for Rb). It diverges to a $1/e^2$ -radius of $w_1 = 0.65 \text{ mm}$ (resp. 0.33 mm) in MOT1 and about 1.7 mm (resp. 1.0 mm) in MOT2. The larger size of the beam at the position of MOT2 limits the perturbation of the trapping and cooling mechanisms.

2.2 Flux from MOT1

Experimentally, the main features of the atomic beam are deduced from the loading characteristics of MOT1 and MOT2, where the number of atoms is determined using a calibrated photodiode monitoring the scattered MOT light. The main goal is to have the highest possible recapture rate of atoms in the MOT2 region. This ingoing flux is obviously related to the characteristics of MOT1.

The extraction process can be summarized as follows [18,19]. In MOT1 hot atoms are first decelerated by the MOT radiation pressure, then slowly moved to the centre of the trap where they are extracted by the pushing laser. In addition to its pushing effect, the laser beam shifts the atomic levels by a few natural linewidths so that a transverse cooling of the atomic beam takes place during extraction, limiting the initial atomic temperature to about $25 \mu\text{K}$ for Cs ($40 \mu\text{K}$ for Rb). Moreover, the trapping forces are reduced and the pushing beam becomes dominant. Hence, atoms are extracted from the trap and accelerated in the direction of MOT2. After the transfer to the second chamber, the atoms are finally recaptured in MOT2 by radiation pressure.

In a first set of experiments, we study the flux of atoms extracted from the upper chamber. This outgoing flux depends on the number of captured atoms in MOT1, which is related to the background pressure of the alkali vapour. As there is no direct access to the background pressure value, we have measured the loading time of MOT1, which, in a large regime of operating parameters, is inversely proportional to the atomic pressure in the source cell. The number of atoms in a MOT in the stationary regime is [25]

$$N = \frac{L}{\gamma + \gamma_p + \beta n}, \quad (1)$$

where L represents the loading rate of the MOT, γ is the loss rate due to background collisions, γ_p gives the loss rate induced by the pushing laser, β is the rate of the cold two-body collisions between the trapped atoms, and n is the average atomic density in the MOT. The density in

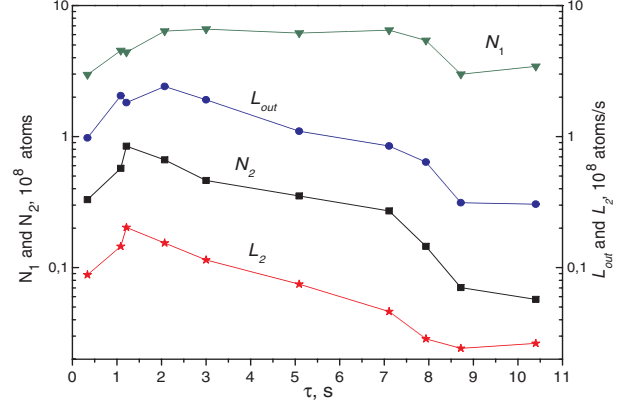


Fig. 2. (Color online) Dependence of the MOT2 parameters on the MOT1 loading time τ in the Cs experiment. N_1 is the number of atoms in MOT1 without pushing beam, L_{out} is the atomic flux, L_2 the loading rate of MOT2 and N_2 the number of recaptured atoms in MOT2.

MOT1 is limited to about $10^{10} \text{ atoms/cm}^3$, so that the term βn is negligible in both setups.

Loading rates in both MOTs are given by the measured initial slope of the number of trapped atoms in the MOT versus time. In MOT2, this measure is performed after suddenly switching on the pushing laser and waiting for the arrival of the first atoms. In MOT1, the loss rate γ is inferred by measuring the $1/e$ -loading time τ ($\gamma = 1/\tau$ in a wide range of vapour pressure [25]) or by dividing the loading rate L_1 by the number of atoms N_1 measured when the pushing beam is off. When the pushing laser is switched on, the loss processes in MOT1 increase drastically. If N_1^p is the number of atoms in MOT1 in the presence of the pushing beam, then $L_{\text{out}} = \gamma_p N_1^p$ is the flux of atoms leaking out of MOT1 through the optical guide. We deduce it from parameters we already measured via the formula:

$$L_{\text{out}} = L_1 - \gamma N_1^p. \quad (2)$$

To get the data plotted in Figure 2, τ is tuned by varying the background pressure. Whatever the background pressure, the number N_1 of atoms is approximately constant. At high background pressure (i.e. low values of τ), the outgoing atomic flux L_{out} increases with the loading time τ because the number of atoms without pushing beam N_1 slightly does. Then at relatively low pressure L_{out} decreases, following the behaviour of the MOT1 loading rate L_1 (inversely proportional to τ). The loading rate of MOT2 L_2 and the number of atoms N_2 in MOT2 are presented as a function of τ in Figure 2. Their dependence with the MOT1 loading time is similar to that of the atomic flux L_{out} . The overall efficiency of the transfer process is defined by the incoming flux in MOT2 divided by the outgoing flux from MOT1, that is L_2/L_{out} .

We conclude that for higher MOT2 loading rate we need a relatively high background pressure in MOT1 and a large laser power in the trapping beams (to have higher N_1 value). For our experimental conditions the optimum

is at a MOT1 loading time of about 1–2 s. The data presented here were not taken with optimized pushing–guiding beam parameters, the efficiency being here limited to typically 10%. Once these parameters are well set we are able to achieve maximum transfer efficiency of about 70% for Cs (resp. 50% for ^{87}Rb), without affecting the overall dependence of the different quantities on the MOT1 loading time.

3 Pushing and guiding processes

After leaving the MOT1 region, the atomic beam is no longer affected by the MOT1 lasers and is guided due to the attractive dipolar force created by the red-detuned pushing–guiding beam. In this section, we describe the guiding process using an analytical model similar to that given in references [22, 24]. The total force applied on the atoms is the sum of a radiation pressure “pushing force” $\mathbf{F}_{\text{push}}$ and of a dipolar “guiding force” $\mathbf{F} = -\nabla U$, where U is the guiding potential. The gravitational force plays a minor role in the loading process.

A two-level model function of the laser parameters (power, detuning and waist) describes qualitatively the experimental dependence of the transfer efficiency between the two MOTs. A more detailed quantitative analysis of the processes is proposed in the rest of this section.

3.1 Two-level model

In this first simple model we neglect gravity, the initial velocity and temperature of the atoms and beam divergence. We consider the atoms as a two-level system with a transition energy $\hbar\omega_0$, a natural linewidth Γ ($\Gamma/2\pi = 5.2$ MHz for Cs, 5.9 MHz for Rb) and a saturation intensity $I_s = \frac{1}{6}\hbar c k^3 \frac{\Gamma}{2\pi}$ (1.1 mW/cm² for Cs, 1.6 mW/cm² for Rb). We use here z as the vertical coordinate along the laser beam propagation with origin in the centre of MOT1 and r for the radial cylindrical coordinate (see Fig. 1). For this two-level model, the waist w of the pushing–guiding laser is assumed to be constant and equal to its experimental value at MOT1 position $z = 0$. The laser beam has a power P_0 , a wave vector $k = 2\pi/\lambda$, and an angular frequency ω detuned by $\delta = \omega - \omega_0$ with respect to the atomic transition.

The on-axis light shift is given by $U_0 = \frac{\hbar\delta}{2} \ln(1 + s)$ where $s = (I/I_s)/(1 + 4\delta^2/\Gamma^2)$ is the saturation parameter and $I = 2P_0/(\pi w^2)$ is the peak laser intensity. As the laser is far detuned, saturation is always very low and one can simply replace $\ln(1 + s)$ by s in this expression. In this limit, the guiding potential is

$$U_0 e^{-\frac{2r^2}{w^2}}. \quad (3)$$

As the waist is considered constant, the guide does not affect the longitudinal motion. On the contrary, it is crucial for confining the transverse motion.

The atoms absorb and emit spontaneously photons at a rate

$$\Gamma' = \frac{\Gamma}{2} \frac{s}{1 + s} = \frac{\Gamma}{2} \frac{I/I_s}{1 + 4\frac{\delta^2}{\Gamma^2} + I/I_s}, \quad (4)$$

which gives a pushing force

$$F_{\text{push}} = \Gamma' \hbar k = \Gamma' M v_{\text{rec}}, \quad (5)$$

where $v_{\text{rec}} = \hbar k/M$ is the recoil velocity and M the atomic mass. The velocity increases due to photon absorption, and the number of scattered photons to reach the position z is approximately $v(z)/v_{\text{rec}} = \sqrt{2\Gamma'z/v_{\text{rec}}}$. The pushing process is also responsible for a heating due to random spontaneous emission in all directions. The mean horizontal kinetic plus potential energy per atom $2k_B T$ in the 2D confining potential is increased by two third of the recoil energy $E_{\text{rec}} = M v_{\text{rec}}^2/2 = k_B T_{\text{rec}}/2$ at each scattering event [24, 26]. This gives rise to a horizontal kinetic temperature

$$T_h(z) = \frac{v(z)}{v_{\text{rec}}} \frac{T_{\text{rec}}}{6}. \quad (6)$$

To have an efficient pushing–guiding beam we require in this simple two-level approach that the atoms remain trapped in two dimensions inside the guide during the whole transfer. This condition is

$$2k_B T_h(z) < |U_0| \text{ for all } z. \quad (7)$$

As the horizontal velocity spread increases with z , this is equivalent to $2k_B T_h(D) < |U_0|$. A second constraint is that the beam velocity at the MOT2 position (v_{beam}) should be lower than the capture velocity (v_{capture}) of the MOT

$$v_{\text{beam}} < v_{\text{capture}}. \quad (8)$$

The value of v_{capture} is on the order of the maximal velocity for an atom to be stopped on the MOT beam diameter distance $2R$, that is $v_{\text{capture}} = \sqrt{TRv_{\text{rec}}}$ [25]. As a result, we evaluate v_{capture} to be about 21 m/s for cesium and 30 m/s for rubidium.

The efficiency of the pushing–guiding process is determined by how deep the conditions (7) and (8) are verified. To describe qualitatively the guiding efficiency in relation with these conditions, we propose to describe each condition by a function f , equal to zero when the inequality is strongly violated and to 1 when it is fully verified, with a continuous transition between these two extremes. The guiding efficiency is then described by the product $f(\frac{2k_B T_h(D)}{|U_0|}) \times f(\frac{v_{\text{beam}}}{v_{\text{capture}}})$ of the two conditional functions. The result is given for Cs in Figure 3 as function of the laser detuning, with $v_{\text{capture}} = 21$ m/s and the function f chosen arbitrarily to be $f(x) = \frac{1}{1+x^{10}}$.

A comparison of the two-level model with experimental results (see Fig. 7, left) presents a good qualitative agreement, reproducing the presence of an optimal red detuning at given laser power. The maximum transfer efficiency increases with the power of the pushing beam while the position of the peak is shifted to larger absolute values of the detuning. This simple model is sufficient to

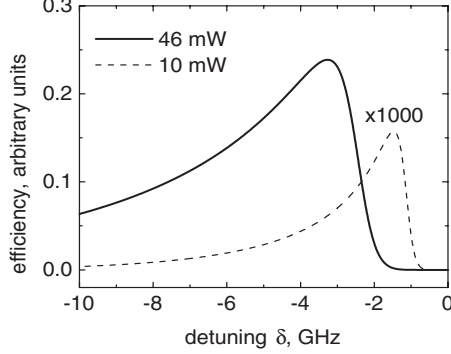


Fig. 3. Efficiency (see text) of the pushing-guiding processes versus laser detuning δ for a $650\ \mu\text{m}$ waist laser beam with different laser power 10 mW (dashed line $\times 1000$) and 46 mW (solid line). The other parameters are: initial temperature $T_0 = 25\ \mu\text{K}$, $I_{\text{sat}} = 1.1\ \text{mW}/\text{cm}^2$, $\Gamma = 2\pi \times 5.2\ \text{MHz}$, $v_{\text{rec}} = 3.5\ \text{mm/s}$, $T_{\text{rec}} = 0.2\ \mu\text{K}$ and the two MOT cells are separated by 57 cm (the values used are those of the Cs experiment).

derive the main conclusion: the transfer is more efficient with a far red-detuned and intense laser beam. However, the theory predicts a peak further from resonance than observed experimentally. Moreover, the sensitivity to the laser power is much more pronounced than observed in the experiment. This motivates a more detailed analysis of the processes operating during the travel of the atoms from MOT1 to MOT2. In particular, the effect of optical pumping to the lower hyperfine state has to be considered.

3.2 Optical pumping

The absorbed photons can lead to optical pumping between the two hyperfine levels of the ground state which have different laser detuning with respect to the pushing laser. Indeed, very quickly after leaving the MOT1 region, the atoms are pumped essentially in the lower ground state $F = 3$ for cesium (resp. $F = 1$ for rubidium) as there is no repumping laser light superimposed with the pushing laser beam. This optical pumping is essential for a good transfer efficiency, as it greatly reduces the final velocity of the atomic beam (see Sects. 3.6 and 4.2). However, a small population in the other ground state is still present, typically 1 to 3 percent for a linearly polarized beam, as we shall see [27]. As the radiation pressure is much larger for atoms in the upper ground state (about 100 times larger for detuning values discussed here), even this small fraction plays a role and both ground state populations have to be taken into account for the estimation of the pushing force. On the contrary, the dipolar force may be estimated by assuming that the atoms are only in the lower ground state, as this force is only about 10 times smaller than in the upper ground state, which is 100 times less populated.

An estimate of the populations in the ground states is obtained by assuming an equal detuning for the tran-

sitions from the upper hyperfine ground state to all the hyperfine excited states. We define an “effective” detuning $\bar{\delta} \approx \delta + \Delta'_{\text{HFS}}/2$, where Δ'_{HFS} is the total width of the hyperfine structure in the excited state ($\Delta'_{\text{HFS}} \simeq 600\ \text{MHz}$ for Cs and $\Delta'_{\text{HFS}} \simeq 500\ \text{MHz}$ for ^{87}Rb respectively). Using this mean detuning $\bar{\delta}$ we calculate the pumping rates between the two hyperfine ground states. This is fairly good for large detunings (above 1 GHz from the cycling transition). To illustrate our results we will choose the following typical values: $\delta/2\pi = -2\ \text{GHz}$ from the ($F = 4 \rightarrow F' = 5$) transition of the Cs (i.e. $\bar{\delta}/2\pi = -1.70\ \text{GHz}$) and $\delta/2\pi = -1\ \text{GHz}$ (i.e. $\bar{\delta}/2\pi = -750\ \text{MHz}$) from the ($F = 2 \rightarrow F' = 3$) transition of the ^{87}Rb . We also define Δ_{HFS} as the hyperfine structure interval in the ground state ($2\pi \times 9.2\ \text{GHz}$ for Cs, $2\pi \times 6.8\ \text{GHz}$ for ^{87}Rb) (see [28]).

The ratio of populations in the upper hyperfine ground state N_{F+1} and in the lower one N_F may then be estimated as:

$$\eta = \frac{N_{F+1}}{N_F + N_{F+1}} \approx \frac{N_{F+1}}{N_F} = \alpha \left(\frac{\bar{\delta}}{\bar{\delta} - \Delta_{\text{HFS}}} \right)^2$$

$$\text{with } \alpha = \frac{2F+3}{2F+1} = \begin{cases} 9/7 & \text{for Cs}(F=3) \\ 5/3 & \text{for } ^{87}\text{Rb}(F=1) \end{cases} \quad (9)$$

The factor α is simply the ratio between the number of substates in the $F+1$ and F ground states, to which N_{F+1}/N_F should be equal at a detuning large as compared to the hyperfine structure Δ_{HFS} ; the term involving the detuning is related to the ratio of excitation rates from the two hyperfine ground states. The formula leads to $\eta = 3.2\%$ of the atoms in the Cs ($6s, F=4$) state and $\eta = 1.6\%$ in the Rb ($5s, F=2$). This value is in excellent agreement with a full calculation taking into account all the different detunings with the hyperfine excited states.

3.3 Pushing force

Another factor should be considered: the laser mode shape. Indeed, a relatively strong divergence is needed in order to both efficiently push and guide atoms in the MOT1 region and not affect the MOT2 operation. The guiding beam waist varies with position, according to

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + (z - z_0)^2/z_R^2}. \quad (10)$$

The depth U_0 is then modified along the atomic trajectory due to the change in the laser intensity and, taking into account the results of the previous section, the pushing force in the centre of the beam may be estimated as follows:

$$F_{\text{push}}(z) = \frac{\Gamma}{2} \hbar k \bar{s}(z) \left((1 - \eta) + \eta \left(\frac{\bar{\delta} - \Delta_{\text{HFS}}}{\bar{\delta}} \right)^2 \right)$$

$$\simeq \frac{\Gamma}{2} \hbar k \bar{s}(z) (1 + \alpha), \quad (11)$$

where $\bar{s}(z)$ is the saturation parameter calculated for the lower ground state, at detuning $\bar{\delta} - \Delta_{\text{HFS}}$. We take into account the linear polarization of the pushing beam by multiplying $\bar{s}$ by a factor 2/3 in all calculations. We neglect however the small change in $\bar{\delta}$ due to the light shift, which is even reduced when the waist $w(z)$ becomes larger.

The mean pushing force is reduced due to the Gaussian transverse profile of the pushing beam and the finite size of the atomic cloud. This may be taken into account approximately by dividing the force by a factor 2 [24]. Note that this underestimates the initial pushing force, when the atoms are still well guided (rms radius less than $w(z)/2$), and overestimates it when the cloud size becomes larger than half the waist. As the mean pushing force now depends only on z , it may be written as the derivative of a “pushing potential” U_{push} :

$$U_{\text{push}}(z) = \frac{\Gamma}{2} \hbar k s_0 z_R (1 + \alpha) \arctan \frac{z - z_0}{z_R} \quad (12)$$

where $s_0 = \bar{s}(z_0)$. The velocity at each point is then easily calculated by energy conservation (z -axis is oriented downwards):

$$v(z) = \left[v_0^2 + 2gz + \Gamma v_{\text{rec}} s_0 z_R (1 + \alpha) \times \left(\arctan \frac{z - z_0}{z_R} + \arctan \frac{z_0}{z_R} \right) \right]^{1/2}, \quad (13)$$

where v_0 is the input velocity in the guide. The effect of gravity is not dominant, but was taken into account by the $2gz$ term. v_0 can be estimated as the output velocity of the MOT1 region. We have calculated it using formula (13) assuming that the atoms in the MOT1 region have a zero initial velocity and are in the upper hyperfine ground state due to the presence of the repumping light ($\eta = 1$). For instance, using a travel distance z roughly equals to the MOT1 region radius (10 mm) and a laser power of 21 mW, we find that atoms enter the guide with a velocity $v_0 \approx 9$ m/s for Rb; for the Cs parameters, we obtain in the same way $v_0 \approx 3.1$ m/s. From equation (13), we also infer the traveling time as $\Delta t = \int_0^D dz/v(z)$.

3.4 Guiding condition

As previously discussed, the light shift of the lower ground state is dominant in our case. The atoms leaving MOT1 are thus guided by the on-axis light shift potential given by

$$U_0(z) = \frac{\hbar(\bar{\delta} - \Delta_{\text{HFS}})}{2} \bar{s}(z). \quad (14)$$

Equation (7) is still the strongest constraint for the choice of the parameters and becomes more and more difficult to fulfil as z increases, because $|U_0|$ is reduced due to the beam divergence. The horizontal kinetic temperature $T_h(z)$ is evolving due to two opposite effects: photon scattering [29] is responsible for an increase of T_h while adiabatic cooling tends to lower it as the waist increases.

The adiabaticity condition $|d\omega_p/dt| \ll \omega_p^2$, where ω_p is the transverse oscillation frequency of the guide, is well fulfilled in both experiments except when the atoms move in the non harmonic part of the potential. This breakdown of the adiabaticity occurs only when the atoms are close to leave the guide. This only marginally affects the guiding condition and will not be taken into account here. ω_p varies with the inverse squared waist, and one has $\omega_p(z) = \omega_p(0)w^2(0)/w^2(z) = \omega_p(0) \frac{z_0^2 + z_R^2}{(z - z_0)^2 + z_R^2}$. To obtain an expression for $T_h(z)$, valid while the atoms remain guided, we write the change in T_h for a small change δz in z . As the phase space density is conserved during this adiabatic cooling, the cooling contribution is proportional to the inverse squared waist. Spontaneous scattering is responsible for a supplementary heating term, proportional to the number of photons scattered during $\delta t = \delta z/v$:

$$T_h(z + \delta z) = T_h(z) \frac{w^2(z)}{w^2(z + \delta z)} + \frac{\Gamma}{2} \bar{s}(z) \frac{T_{\text{rec}}}{6} \frac{\delta z}{v(z)}. \quad (15)$$

The temperature increase is $T_{\text{rec}}/6$ for each spontaneous scattering event. $\bar{s}(z)$ is proportional to $1/w(z)^2$, just like the oscillation frequency. Using the dependence in $w(z)$, we obtain the following differential equation for T_h :

$$\frac{dT_h}{dz} = -T_h(z) \frac{2}{w(z)} \frac{dw}{dz} + \frac{T_{\text{rec}}}{6} \frac{w^2(0)}{w^2(z)} \frac{\Gamma}{2} \bar{s}(0) \frac{1}{v(z)}. \quad (16)$$

Using the expression of $w(z)$, the solution of this equation reads:

$$T_h(z) = \frac{z_0^2 + z_R^2}{(z - z_0)^2 + z_R^2} \left[T_0 + \frac{T_{\text{rec}}}{6} \frac{\Gamma}{2} \bar{s}(0) \int_0^z \frac{dz'}{v(z')} \right] \quad (17)$$

where T_0 is the initial temperature at the guide entrance. The integral in the last term is the time necessary for an atom to travel to position z . In the range of parameters explored in our experiments, the sum of these two terms decreases with z , but slower than the trap depth. As can be seen in Figure 4 (left), the mean horizontal energy $2k_B T_h$ becomes larger than the trap depth at some position z_{out} before reaching MOT2. However, as will be discussed below, this partial guiding is sufficient for limiting the size of the atom cloud to below the MOT2 beam diameter.

3.5 Recaptured atoms

For a good transfer efficiency, two main criteria have to be fulfilled. First, the atomic beam should stay roughly collimated on a distance long enough to pass through the differential tube, and then the transverse cloud radius at the end should be comparable to the capture radius of MOT2. This means that even if they leave the guide before reaching MOT2, the atoms can still be recaptured. Second, the final longitudinal velocity of the atomic beam must not exceed the capture velocity of MOT2. As the atomic beam velocity is in any case lower than the capture velocity of MOT2, the recapturing mechanism is mostly

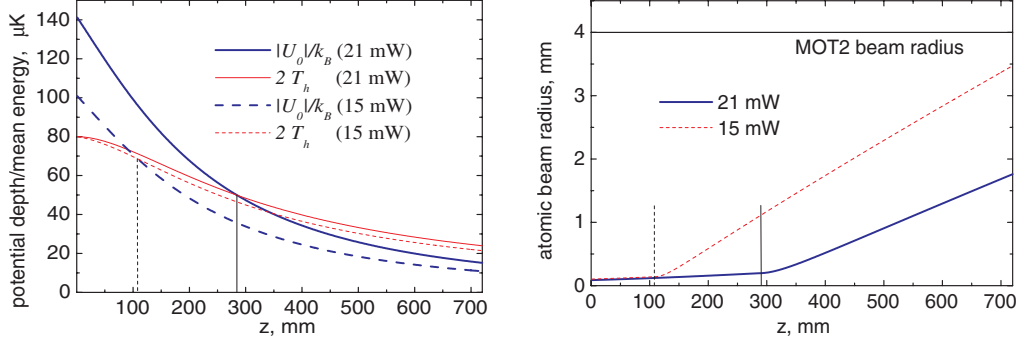


Fig. 4. (Color online) Evolution for the ^{87}Rb experiment of different parameters with the traveling distance z between the two MOTs, at different powers: 15 mW (dashed lines) and 21 mW (solid lines); the initial temperature at the guide entrance was set to $T_0 = 40 \mu\text{K}$. The point z_{out} where the atoms leave the guide is marked by a vertical line. Left: mean horizontal energy $2k_B T_h$ (thin lines, Eq. (17)) and trap depth $|U_0|$ (bold lines, Eq. (14)). Right: rms radius of the guided atomic beam. The radius of the MOT2 beams is marked by a horizontal line.

limited by the matching between the atomic beam size and the size of the capturing region of MOT2.

The capture size of MOT2 is limited by the radius $R = 4 \text{ mm}$ of the collimated trapping laser beams. According to the former considerations about heating of the guided atoms (see Sect. 3.4), the mean horizontal energy of the cloud is lower than the guiding trap depth over a distance $z_{\text{out}} = 38 \text{ cm}$ for a laser power of 63 mW and an initial temperature $T_0 = 25 \mu\text{K}$ in the case of Cs (resp. $z_{\text{out}} = 28.5 \text{ cm}$ with $T_0 = 40 \mu\text{K}$ and a laser power of 21 mW in the case Rb) (see Fig. 4). For simplicity we consider hereafter that all the atoms remain pushed and guided up to that point and then undergo a free ballistic expansion as they keep falling. Including this assumption in our model, we can evaluate the size of the atomic cloud Δr_f as it reaches MOT2. While the atoms remain trapped, the cloud size is of the order of $\omega_p^{-1}(z)\sqrt{k_B T_h/m}$. The guiding step ends when $k_B T_h$ reaches $|U_0(z)|/2$, such that the rms size at the guide output is $\Delta r_{\text{out}} = \omega_p^{-1}(z)\sqrt{|U_0(z)|/2m} = w(z)/\sqrt{8}$, that is $\Delta r_{\text{out}} = 470 \mu\text{m}$ for Cs (resp. $\Delta r_{\text{out}} = 200 \mu\text{m}$ for Rb). We assume a fixed temperature for the falling atoms, as the adiabatic cooling is not efficient for a non trapped cloud and the heating rate is also very low after z_{out} . T_h is about $10 \mu\text{K}$ for Cs and $25 \mu\text{K}$ Rb. After the remaining falling time of 36 ms (resp. 36 ms for Rb) the atomic beam has a typical standard deviation for the transverse Gaussian atomic density distribution of $\Delta r_f \approx 1 \text{ mm}$ for Cs and $\Delta r_f \approx 1.75 \text{ mm}$ for Rb, smaller than MOT2 radius, meaning that almost all the atoms are recaptured in MOT2 for both experiments. Note that this model allows to predict $\Delta r(z)$ at any position z , as shown in Figure 4, right.

3.6 Transfer efficiency

We come back now to an estimation of the transfer efficiency as discussed in Section 3.1 and presented in Figure 3. Within the frame of the refined model presented

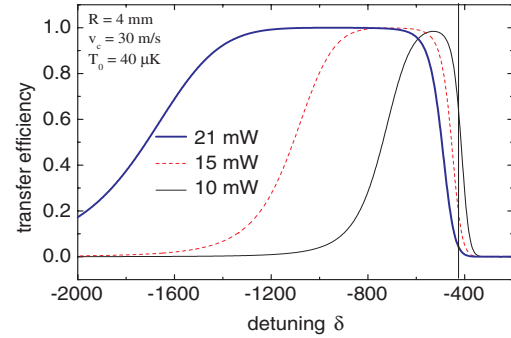


Fig. 5. (Color online) Efficiency (see text) of the pushing-guiding processes versus laser detuning δ , calculated for ^{87}Rb for the parameter of the pushing beam given in text, with different laser power 10 mW (thin solid line, black), 15 mW (dashed line, red) and 21 mW (thick solid line, blue). The maximal capture velocity in MOT2 has been fixed to $v_{\text{capture}} = 30 \text{ m/s}$, the initial temperature to $T_0 = 40 \mu\text{K}$ and the MOT2 beam radius R to 4 mm. The corresponding experimental values are shown in Figure 7, right.

now, we are able to compute a transfer efficiency in the same spirit. As we have seen in the previous section, the guiding is not required until the end for the whole cloud to be recaptured. We thus retained the two following conditions: (i) the arrival velocity has to be smaller than v_{capture} and (ii) the cloud size must be less than the MOT2 beam waist. We then calculate the efficiency $f[\Delta r(D)/R] \times f[v(D)/v_{\text{capture}}]$, with the function f previously used in Section 3.1, and plot it in Figure 5. The model predicts a good efficiency in a detuning range between -0.5 GHz and -1.6 GHz , the width of the large efficiency region being reduced with a smaller laser power. These predictions have to be compared with the rubidium experimental data of Figure 7, right. The agreement is qualitatively good, and reproduces the main features. The two limits of the large efficiency region have different

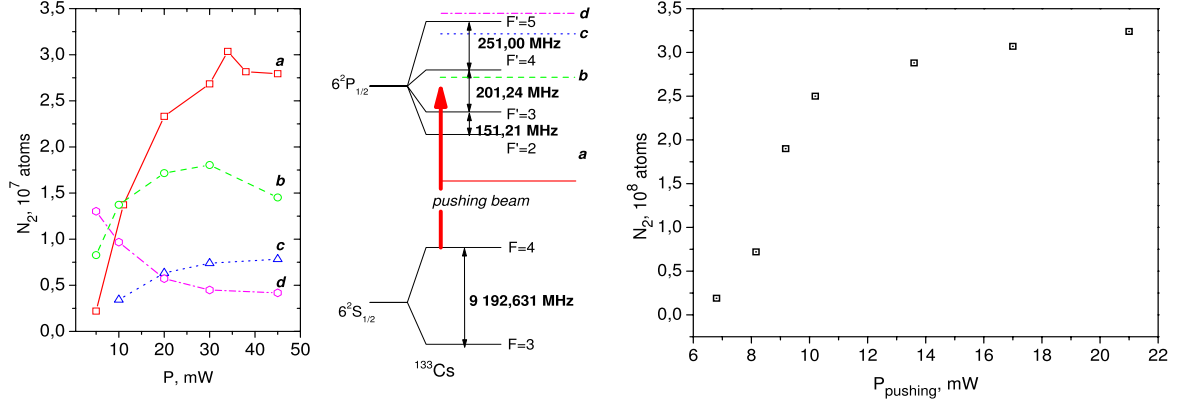


Fig. 6. (Color online) Dependence of the number of recaptured atoms N_2 in MOT2 on the pushing beam power. Left: Cs data. The experiment is done at four different frequencies (see the diagram in the centre). Right: ^{87}Rb data, recorded at -1 GHz detuning from the $5\text{S}_{1/2}(F=2) \rightarrow 5\text{P}_{3/2}(F'=3)$ transition.

origins: on the large detuning side, the efficiency drops due to an increase in the atomic cloud size, as the guiding potential is weaker. On the lower detuning side, close to resonance, the efficiency becomes limited by the final velocity, which is larger than the capture velocity of MOT2. On this side, theory fails to predict the less measured efficiency at lower laser power, as the mean detuning $\bar{\delta}$ approach (Sect. 3.2) is not valid any more. In particular, the efficiency should drop to zero at the resonance with the rubidium $5\text{S}_{1/2}(F=2) \rightarrow 5\text{P}_{3/2}(F'=1)$ line, situated at $\delta/2\pi = -424$ MHz and marked with a vertical line in Figure 5.

4 Experimental results

In this section, we present the experimental study of the guiding process and compare it with the above theoretical model. The dependence of the recaptured atom number on the pushing beam parameters are first investigated. We then measure the mean atomic velocity and the traveling time. During the experimental investigation the atom vapour pressure in MOT1 is kept constant.

4.1 Pushing beam parameters

The parameters of the pushing beam that we have experimentally optimized are its divergence, waist, power and detuning.

Divergence and waist

In order to optimize the atomic beam characteristics we have first investigated the role of the laser beam waist, related to the divergence of the pushing beam and to the pushing force. It is clear that the pushing-guiding beam should diverge, to have a significant effect on MOT1 without disturbing MOT2. Moreover, this divergence provides

an horizontal adiabatic cooling of the guided atoms. We have used three different lenses ($f = 0.75$ m ; 1 m ; 2 m) to focus the pushing beam. For each lens the transfer efficiency is studied as a function of the focus distance from MOT1. The position of the lens is more critical than its focal length. The optimum is obtained with a lens $f = 2$ m for the Cs experiment (resp. $f = 1$ m for ^{87}Rb) and distance from MOT1 34 cm (resp. ≈ 13 cm), where the beam diameter on the MOT1 region is ≈ 1.3 mm (resp. ≈ 0.6 mm). The measured waist at the focal point is $200 \mu\text{m}$ (resp. $300 \mu\text{m}$). It leads to a divergence w_0/z_R of about 2 mrad (resp. 1 mrad).

In conclusion we found that the best transfer efficiency occurs when the pushing beam, focused before MOT1, has a diameter smaller than 1 mm in MOT1 and a divergence such that the beam diameter at MOT2 position is less than 3 mm. In this sense our results are similar to the one found in references [18,19].

Power and detuning

The recaptured number of atoms into MOT2 at different laser powers of the pushing beam and at different detunings for the two elements Cs and ^{87}Rb is shown resp. on left and right of Figure 6.

It is first obvious that the best experimental conditions are achieved with a laser frequency red-detuned with respect to all atomic transitions (curve (a) in Fig. 6, left). The transfer efficiency is larger for a red-detuned laser frequency than for the other laser frequencies due to the fact that after leaving the MOT1 area the atoms feel the pushing light also as a guide. For such detunings, the atomic flux as well as the number of recaptured atoms N_2 in MOT2 increase when the power of the pushing light increases, and saturates at large power when all the atoms are efficiently guided to MOT2 (see also Fig. 6, right). At a given detuning, an increase of the laser power leads to a decrease of the transfer efficiency, due to an excessive

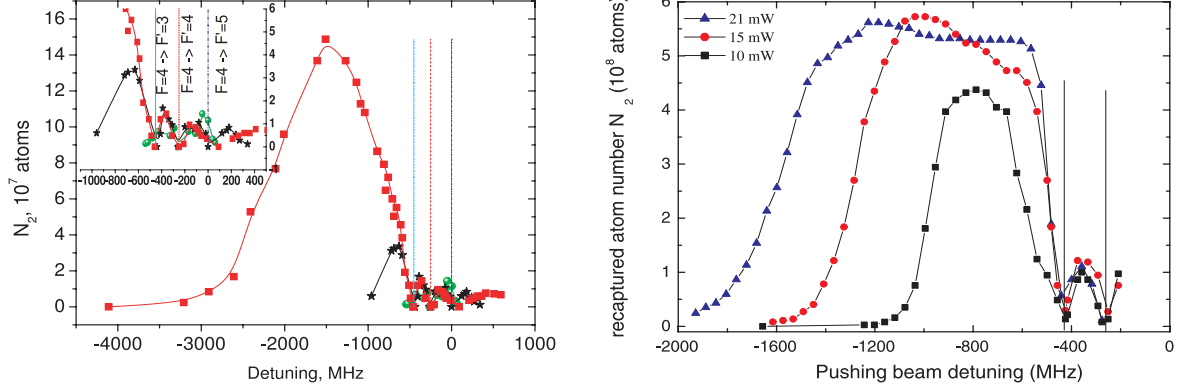


Fig. 7. (Color online) Number of atoms recaptured in MOT2 N_2 vs. pushing beam detuning for different optical powers. The vertical lines indicate the position of hyperfine resonance frequencies. Left: Cs data. The detuning is given with respect to the $6S_{1/2}(F=4) \rightarrow 6P_{3/2}(F'=5)$ transition. The pushing beam power is 46 mW (squares), 10 mW (stars) or 2 mW (circles). Right: ^{87}Rb data. The frequency is measured relatively to the $5S_{1/2}(F=2) \rightarrow 5P_{3/2}(F'=3)$ cycling transition. Pushing beam power: 10 mW (squares), 15 mW (circles), and 21 mW (triangles).

final velocity, a strong perturbation of both MOTs, and a large heating of the atoms.

In order to optimize the conditions for the atomic beam, the influence of the detuning of the pushing light was investigated in more details (see Fig. 7 left and right resp. for Cs and ^{87}Rb). For a frequency close to resonance (corresponding to the best conditions found in Refs. [18, 19]) the number of recaptured atoms into MOT2 is much smaller than the one we could achieve with a much more red-detuned light and a higher power. In conclusion we find that the best loading of MOT2 is at highest possible power of the pushing laser beam and, given this power, at the value of red detuning optimizing the flux.

4.2 Atomic beam velocity

For a high recapture efficiency, a relatively slow and collimated atomic beam is required (see Sect. 3.5). After the pushing and guiding process, the atoms reach MOT2 within a time delay Δt . This time has been measured in two different ways. First, one can record the MOT2 fluorescence after having suddenly removed the atoms in MOT1 (the MOT1 laser beams are stopped by a mechanical shutter). In this case, one observes the delay after which the number of atoms in MOT2 starts to drop. The second method consists in pulsing the pushing beam through a permanently loaded MOT1. Both methods lead to the same result $\Delta t \approx 130$ ms for the Cs experiment at 63 mW power. In the Rb experiment presented in Figure 8, the measured time delay as a function of the pushing beam power is obtained by using the second method. A similar dependence on the pushing beam power is observed in the cesium experiment. The two-level model is not sufficient to describe accurately the atomic beam velocity, the predicted transfer time Δt being by far too short (see Fig. 8, lower curve). On the contrary, the theoretical model presented in Section 3.3, equation (13) describes well the ex-

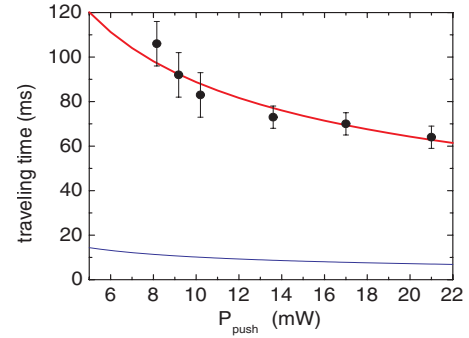


Fig. 8. (Color online) Experimental (points) and theoretical results (solid lines) for the traveling time Δt between MOT1 and MOT2 for different pushing beam powers. The beam is red-detuned by 1 GHz from the cycling transition of ^{87}Rb , $5S_{1/2}(F=2) \rightarrow 5P_{3/2}(F'=3)$. The theoretical calculations are done for both the two-level model approximation (blue lower curve) and for the more detailed model described above (red upper curve). In the calculations the radius of MOT1 trapping region is 10 mm.

perimental results as demonstrated in Figure 8. From the model, we also deduce the final longitudinal velocity of the atomic beam $v \approx 5.5$ m/s (resp. 12.6 m/s for Rb). Note that this final velocity is not very different from the mean velocity $D/\Delta t$, as the acceleration stage takes place essentially in the MOT1 zone, where the atoms remain in the $F+1$ state thanks to the repumping MOT beams.

5 Conclusion

In our work we have studied a very efficient setup to transfer cold atoms from a first MOT to a second one. Our

setups have a similar geometry to the ones described in references [18,19], but due to the higher laser power (tens of mW) we could achieve a partial dipolar guide for the atoms at a larger detuning (1 GHz typically). As a result, the mean longitudinal velocity of the atomic beam is lower (4.3–12 m/s) than in these previous experiments (15 m/s). Moreover, thanks to the lower sensibility of the method to the frequency of the pushing laser, its frequency does not need to be locked (see for instance the detuning dependence in Fig. 7, right) and the setup is much more robust to small misalignments of the pushing beam. The atomic flux is limited only by the number of atoms loaded into MOT1. We estimated the transfer efficiency to MOT2 which is about 70% for the ^{133}Cs experiment and about 50% for the ^{87}Rb experiment.

We used a two-level system model to describe the processes during the atomic transfer. A good qualitative agreement between theory and experiment was found. The transfer efficiency is maximum for a large red detuning, and this maximum efficiency increases with the laser power. A more detailed discussion of the pushing, guiding and recapture processes is presented for a better understanding of the atomic transfer between the two traps. Our theoretical description, which takes into account the optical pumping, the pushing force and the guiding potential nicely reproduces the experimentally observed traveling time.

In conclusion, we experimentally described and theoretically modelled a method to transfer cold atoms between two traps. Two different setups lead qualitatively to the same optimized parameters – a large laser power (tens of mW), ≈ 1 GHz detuning, 300 μm waist. The implementation of this technique in our setups brought in both cases a much better stability and improved loading efficiency, with respect to the use of a near resonant laser beam.

This work was partially supported by European RTN networks COMOL, QUACS, FASTNet and Atom Chips. LAC and LPL are members of IFRAF. LAC is UPR 3321 of CNRS associée à l'Université Paris-Sud and member of LUMAT FR 2764, and LPL is UMR 7538 of CNRS and Université Paris 13. We are very grateful to Brigitte Mercier for giving us the seminal idea of this pushing–guiding scheme. The authors also thank Laurent Vernac for helpful discussions on optical pumping and for providing us a computing code on the calculation of the populations in the magnetic sublevels.

References

1. U.D. Rapol, A. Wasan, V. Natarajan, *Phys. Rev. A* **64**, 023402 (2001)
2. B.P. Anderson, M.A. Kasevich, *Phys. Rev. A* **63**, 023404 (2001)
3. S.N. Atutov, R. Calabrese, V. Guidi, B. Mai, A.G. Rudavets, E. Scansani, L. Tomassetti, V. Biancalana, A. Burchianti, C. Marinelli, E. Mariotti, L. Moi, S. Veronesi, *Phys. Rev. A* **67**, 053401 (2003)
4. H.J. Lewandowski, D.M. Harber, D.L. Whitaker, E.A. Cornell, *J. Low Temp. Phys.* **132**, 309 (2003)
5. M. Greiner, I. Bloch, T.W. Hänsch, T. Esslinger, *Phys. Rev. A* **63**, 031401(R) (2001)
6. J.J. Arlt, O. Maragò, S. Webster, S. Hopkins, C.J. Foot, *Opt. Commun.* **157**, 303 (1998)
7. J.M. Kohel, J. Ramirez-Serrano, R.J. Thompson, L. Maleki, J.L. Bliss, K.G. Libbrecht, *J. Opt. Soc. Am. B* **20**, 1161 (2003)
8. K.H. Kim, K.I. Lee, H.R. Noh, W. Jhe, N. Kwon, M. Ohtsu, *Phys. Rev. A* **64**, 013402 (2001)
9. K. Dieckmann, R.J. Spreeuw, M. Weidemüller, J.T. Walraven, *Phys. Rev. A* **58**, 3891 (1998)
10. J. Schoser, A. Batär, R. Löw, V. Schweikhard, A. Grabowski, Y.B. Ovchinnikov, T. Pfau, *Phys. Rev. A* **66**, 023410 (2002)
11. R.S. Conroy, Y. Xiao, M. Vengalattore, W. Rooijakkers, M. Prentiss, *Opt. Commun.* **226**, 259 (2003)
12. T. Lahaye, J.M. Vogel, J.M. Günter, Z. Wang, J. Dalibard, D. Guéry-Odelin, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 093003 (2004)
13. Z.T. Lu, K.L. Corwin, M.J. Renn, M.H. Anderson, E.A. Cornell, C.E. Wieman, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 3331 (1996)
14. P. Cren, C.F. Roos, A. Aclan, J. Dalibard, D. Guéry-Odelin, *Eur. Phys. J. D* **20**, 107 (2002)
15. B.K. Teo, T. Cubel, G. Raithel, *Opt. Commun.* **212**, 307 (2002)
16. C. Slowe, L. Vernac, L. Vestergaard Hau, *Rev. Sci. Instrum.* **76**, 103101 (2005)
17. C.J. Myatt, N.R. Newbury, R.W. Ghrist, S. Loutzenhiser, C.E. Wieman, *Opt. Lett.* **21**, 290 (1996)
18. W. Wohlleben, F. Chevy, K. Madison, J. Dalibard, *Eur. Phys. J. D* **15**, 237 (2001)
19. L. Cacciapiuoti, A. Castrillo, M. de Angelis, G.M. Tino, *Eur. Phys. J. D* **15**, 245 (2001)
20. Yan Shu-Bin, Geng Tao, Zhang Tian-Cai, Wang Jun-Min, *Chin. Phys.* **15**, 1746 (2006)
21. D. Müller, E.A. Cornell, D.Z. Anderson, E.R. Abraham, *Phys. Rev. A* **61**, 033411 (2000)
22. L. Pruvost, D. Marescaux, O. Houde, H.T. Duong, *Opt. Commun.* **166**, 199 (1999)
23. K. Szymaniec, H.J. Davies, C.S. Adams, *Europhys. Lett.* **45**, 450 (1999)
24. B.T. Wolschrijn, R.A. Cornelussen, R.J.C. Spreeuw, H.B. van Linden van den Heuvell, *New J. Phys.* **4**, 69 (2002)
25. A.M. Steane, M. Chowdhury, C.J. Foot, *Phys. Rev. A* **9**, 2142 (1992)
26. R. Grimm, M.s Weidemüller, Y.B. Ovchinnikov, *Adv. At. Mol. Opt. Phys.* **42**, 95 (2000)
27. This population ratio may be adjusted by using an elliptically polarized laser beam. It may be a way to optimize experimentally the final atomic beam velocity. In the model, we restrict ourselves to a linear polarization for sake of simplicity
28. Daniel A. Steck, Alkali D Line Data, October 2003, <http://steck.us/alkalidata/>
29. In this model, we have neglected the heating term related to the fluctuations of the guiding force when the atom jumps between the two hyperfine states. However, this contribution is smaller by about a factor $[\lambda\delta/(2\pi wI)]^2$ than the spontaneous scattering term, that is more than two orders of magnitude everywhere along the guide

Optimized production of large Bose-Einstein condensates

D. Comparat,^{1,*} A. Fioretti,¹ G. Stern,¹ E. Dimova,¹ B. Laburthe Tolra,² and P. Pillet¹

¹Laboratoire Aimé Cotton, CNRS II, Bâtiment 505, Campus d'Orsay, 91405 Orsay Cedex, France

²Laboratoire de Physique des Lasers, UMR 7538 CNRS, Université de Paris 13, 99 Avenue J.-B. Clément, 93430 Villetaneuse, France

(Received 1 February 2006; published 18 April 2006)

We describe several routes to quantum degenerate gases based on simple schemes to efficiently load atoms into and evaporate them from a “dimple” crossed dipolar trap. The dimple is loaded nonadiabatically by collisions between atoms which are trapped in a reservoir which can be provided either by a dark spontaneous-force magneto-optical trap (MOT), the (aberrated) laser beam itself, or by a quadrupolar or quadratic magnetic trap. Optimal loading parameters for the dimple, relatively high temperature, and tight optical trap are derived from thermodynamic equations including possible inelastic and Majorana losses. Evaporative cooling is described by a set of simple equations, taking into account gravity, the possible occurrence of the hydrodynamical regime, Feshbach resonances, and three body recombination. The solution implies that to have efficient evaporation the elastic collisional rate (in s^{-1}) must be on the order of the trap frequency and lower than 100 times the temperature in microkelvins. Following this approach Bose-Einstein condensates with more than 10^7 atoms should be obtained in much less than 1 s starting from an ordinary MOT setup.

DOI: [10.1103/PhysRevA.73.043410](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.73.043410)

PACS number(s): 32.80.Pj, 03.75.Ss, 34.10.+x, 42.50.Vk

I. INTRODUCTION

The creation of degenerate atomic and molecular gases is one of the major achievements in the last decade in physics. Using a magneto-optical trap (MOT) laser cooled sample as the starting point, the largest Bose-Einstein condensate (BEC) ever created contains 5×10^7 atoms [1–3]. The hydrogen BEC contains 10^9 atoms but starts from a cryogenically cooled sample [4]. The techniques to form a degenerate BEC or Fermi gas have evolved, but it is still challenging to reach quantum degeneracy in less than 1 s with large atom numbers. Some cooling methods such as superposed laser cooling [5–7], Doppler cooling on forbidden transitions [8], or degenerate Raman sideband cooling using, for instance, a three-dimensional far-off-resonant lattice have reached higher phase-space density than MOTs but with complex setups [9–12].

Up to now, the only way to reach the quantum degeneracy regime is to load atoms into conservative traps and perform evaporative cooling. This requires complex setups, both in terms of vacuum and in terms of optical access. The most common traps are magnetic traps, in which BEC can be achieved after tens of seconds of forced evaporation. The use of atom chips provides a much tighter trap confinement than usual magnetic traps. Consequently evaporative cooling is much more efficient, leading to BEC in less than a second but with atom numbers on the order of 10^5 [13]. Another common trap is the optical trap. The use of CO_2 dipole traps (also called QUEST traps) has led to large samples of degenerate gases of 5×10^5 atoms in a few seconds starting from a MOT [14–17]. Finally, combinations of traps have been partially studied to some extent. For instance, the powerful so-called “dimple” trick, has been demonstrated [18]: a small but tight trap is superimposed on a large atomic trap acting as a temperature reservoir. For a loading efficiency of nearly

20% of the initial number of atoms, the temperature remains almost unchanged and a large gain in the atomic density and in phase space density can be obtained, allowing fast evaporative cooling.

Several theoretical studies of evaporative cooling exist (see [19,20] and references therein) but none of them simultaneously takes into account gravity, the hydrodynamical regime effects, the ability to tune the scattering length a through a Feshbach resonance, the temperature dependence of the scattering cross section σ , three body recombination processes, and the trap shape evolution. In this paper, we present a study of combined traps as well as a theoretical model which takes into account all these effects. This provides tools that help to devise the best strategy to reach quantum degeneracy, with many atoms, in a short time, and with a simple experimental setup. We shall see, for example, that a simple magnetic plus crossed dipole trap setup can lead in much less than 1 s to a large ($>10^7$ atoms) BEC from a standard vapor cell MOT setup.

In the first part of this paper we study loading strategies for a dipole trap from different types of reservoir traps. We mainly study the case of a dimple dipole trap focused on a large magnetic trap. Alternatively, a dark-spontaneous-force optical trap (dark-SPOT) [21] or degraded laser beams could also be used as a reservoir to load atoms into a dimple optical trap. We also derive thermodynamical equations for the loading process. We discuss the dynamics of the loading process of the dimple, as well as the effect of Majorana losses and of two and three body inelastic losses. We emphasize that loading diabatically the dimple trap is three times less time consuming than trying to load it adiabatically, and that it leads more rapidly to the high phase-space densities needed for efficient evaporative cooling.

The last part of this paper is devoted to the derivation of simple differential equations for evaporative cooling. We include gravity, hydrodynamical regime, the possibility of modifying a with a Feshbach resonance, the temperature dependence of the scattering cross section, three body recom-

*Email address: daniel.comparat@lac.u-psud.fr

COMPARAT *et al.*PHYSICAL REVIEW A **73**, 043410 (2006)

bination, and possible trap shape evolution in our model. Strategies for reaching quantum degeneracy are discussed.

II. EFFICIENT LOADING OF AN OPTICAL TRAP

Our goal is to provide a setup as simple as possible to rapidly reach quantum degeneracy by evaporative cooling. The speed of evaporation is directly linked to the trap frequency. If we want to avoid working with atom chips the way to have a tight trap is to use an optical trap, which also allows a better optical access for further experiments on the BEC or on the degenerate Fermi gases. In this paper, we mainly focus on loading and evaporative processes in a crossed optical trap. As mentioned in the Introduction one of the most powerful techniques for loading an optical trap is to superimpose it on a large reservoir of cold atoms and wait for the collisions to fill the “dimple” formed by the optical trap. Once the dimple is loaded the reservoir trap is removed and evaporation is achieved by lowering the laser intensity to reach the quantum degeneracy regime.

Before we describe in detail the case where the atomic reservoir is a magnetic trap, we would like to briefly discuss other possible reservoirs, such as a dark-SPOT, and an aberrated optical trap. To use a dark-SPOT as the reservoir of atoms is an attractive idea for two reasons: first the atomic density is higher than in magneto-optical traps [21,22]. Second, at least for alkali atoms, atoms are in the lowest hyperfine state, in which inelastic collisions are less likely, and they barely see the MOT light. Pioneering works have been done in a nondegenerate case [23,24], but very recently the group of Lett [25] at NIST reached quantum degeneracy with sodium atoms after loading a crossed dipole trap from a dark-SPOT. We believe that these results are due to efficient dimple loading directly from the dark-SPOT. In the experiment no depumping light is used because the dark-SPOT alone is especially efficient for sodium [26,27], but we believe this might be needed for other atoms.

A crossed optical trap alone (i.e., after that the MOT has been turned off) can also play the role of reservoir. Indeed, the efficiency of the loading process in a CO₂ laser cross trap has been clarified by the work on ytterbium atoms [28,29] indicating that the atoms, trapped by the strong restoring longitudinal force existing in a CO₂ trap, become concentrated into the cross “dimple” region by atom-atom collisions. The CO₂ laser is very efficient because it diverges more rapidly (for similar waist) than smaller wavelength laser beams (Nd:YAG, for instance), forming a longitudinal trap in addition to the radial one. The crossed region acts as a dimple in the reservoir formed by the noncrossed region. The main drawback of using a CO₂ laser is that it requires special windows (such as ZnSe) in the setup. From the waist propagation formula $w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{\lambda M^2 z}{\pi w_0^2}\right)^2}$, where the minimum waist is $w_0 = \frac{\lambda M^2 f}{\pi W}$ (created by a f focal length lens and a collimated laser beam of waist W), we see that a far off resonance trap (FORT) laser ($\lambda \approx 1.06 \mu\text{m}$) such as a Nd:YAG or a Yb fiber laser with a beam parameter $M^2 = 10$ creates approximately the same trapping potential shape as a TEM₀₀ CO₂ laser ($\lambda = 10.6 \mu\text{m}$) with a beam parameter

$M^2 = 1$. The near and far field beam shape of a CO₂ $M^2 = 1$ laser cannot be both perfectly matched by a near infrared $M^2 = 10$ laser but this is probably a small effect and is beyond the scope of our paper. We then suggest that a CO₂ laser could be replaced by a $M^2 \approx 10$ infrared laser, such as a nearly Gaussian shaped multimode (fiber) laser or a diode laser. The trapping potential depth can be matched by using appropriate laser power. With similar trapping potentials, assuming negligible photon scattering, the efficiency of the loading and of the evaporative cooling should then be the same in both laser setups, but with the simplicity of using a laser light nonabsorbed by the glass cell if near infrared light is used.

Another possible way is to use a time averaged optical trap in a similar way to the one described in Ref. [30]. For instance, by rapidly modulating the frequency driving an acousto-optic modulator and thus by sweeping the direction of the first order diffracted beam before it passes through a focusing lens it should be possible to increase the trapping volume of the reservoir without changing significantly the waist size at the lens focus or its location (which defines the dimple). This time-averaged trap can also be used to optimize the spatial intensity shape during the evaporative cooling process. Finally, it should be possible to use aberrated laser beams (e.g., by computer-addressed holograms) [31,32].

We now turn to the use of a magnetic trap as a reservoir to load an optical trap, which is the focus of our study. Magnetic traps are the largest available traps with more than 10^9 atoms at $T \approx 100 \mu\text{K}$ directly transferred from a MOT [3,33]. Superconducting magnets can collect 10^{12} atoms at 600 mK but from a cooled buffer gas [34]. Recently, in Ref. [35], a Cr BEC has been obtained by using such a transfer technique from a magnetic to a crossed optical trap. Unfortunately, in this experiment the depth of the optical trap was very small and, even after a rf magnetic trap evaporative cooling step, it was (in temperature units) only twice the atomic temperature. This led to very fast decay due to plain evaporation after removing the magnetic trap.

The goal of this paper is to provide an optical trap with good loading and good starting condition for evaporative cooling. For simplicity, we shall treat the case where two orthogonal laser beams cross in a central region, which is assumed to form a radial isotropic Gaussian trap potential $U(r) = U_{\text{laser}} = -U_0 e^{-2r^2/w_0^2}$. The potential depth U_0 is then proportional to the one beam laser intensity $I = \frac{2P}{\pi w_0^2}$ where P is the laser power. With these simplifications the trapping angular frequency is $\omega = \sqrt{\frac{4U_0}{mw_0^2}}$ where m is the atom mass ($\omega = \sqrt{\frac{4U_0 2^{1/3}}{mw_0^2}}$ in the real physical crossed dipole trap situation of identical but orthogonal laser beams). The experimental parameters P and w_0 are related by $U_0 = \eta k_B T \propto P/w_0^2 \propto \omega^2 w_0^2$ where $\eta = U_0/k_B T$ is a dimensionless parameter, k_B is the Boltzmann constant, and T the temperature of the trapped sample. We illustrate the full potential (quadrupolar trap plus optical trap) in Fig. 1 for an optical trap with $U_0 = k_B \times 1720 \mu\text{K}$ and $\omega = 2\pi \times 1050 \text{ Hz}$. We shall illustrate most of our results using the cesium atom ($f=3$, $m_f=-3$ which has a magnetic moment $\mu \approx -3\mu_B/4 > 0$, where $\mu_B < 0$ is the

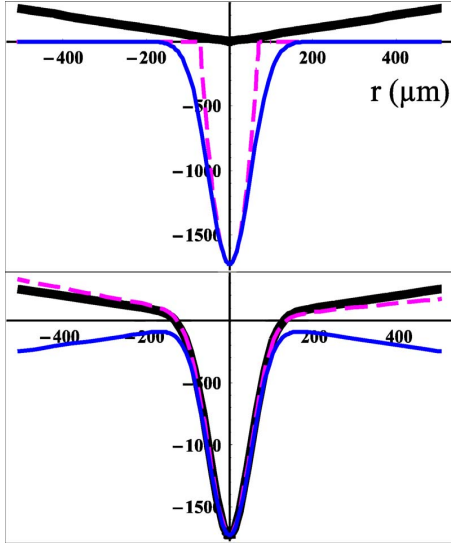


FIG. 1. (Color online) Trapping potentials (in μK) for the cesium $f=3$, $m_f=-3$ atom. Top: Magnetic (thick black solid line) and crossed optical (thin blue solid line) potentials and its quadratic approximation (thin magenta dashed line). The magnetic gradient is 10 mT/cm. The one beam laser is a 100 W Nd:YAG laser focus on a $w_0=100 \mu\text{m}$ waist. Bottom: Full potential (thick black solid line), with gravity included (thin magenta dashed line). The full potential for the magnetically untrapped state $f=3$, $m_f=+3$ without gravity is plotted in a thin blue solid line.

Bohr magneton) because it is known to have several problems (mainly due the high value of its scattering length $a=-3000 a_0$) [36] such as hydrodynamical regime [37], large two body relaxation rate [38], and large three body relaxation rate [39]. In the cesium case the optical potential in Fig. 1 can be created by crossing two Nd:YAG laser beams of 100 W each focused to a $w_0=100 \mu\text{m}$ waist.

A. Thermodynamics in an optical trap

In order to study the loading of the dimple trap we first deduce thermodynamic quantities (such as the atom number N and the temperature T) from standard thermodynamic equations [40]. Here, we can safely neglect gravity (see Fig. 1). Knowing T, N and a given potential U , we deduce the phase space density $D = \frac{N}{Z_1} = n_0 \Lambda^3$ where n_0 is the peak atomic density and $\Lambda = \sqrt{\frac{2\pi\hbar^2}{mk_B T}}$ is the thermal de Broglie wavelength. The $D(N, T, U)$ function is calculated from the one atom partition function $Z_1 = \Lambda^{-3} \int_0^\infty 4\pi r^2 e^{-\frac{U(r)-U(0)}{k_B T}} dr$ (for an infinite potential depth). We then deduce the Helmholtz free energy $F = Nk_B T (\ln D - 1)$, the entropy $S = -\frac{\partial F}{\partial T}$, and the energy $E(N, T, U) = F + TS$ of the sample. For a power law potential, $U(r) = U' r^{3/\delta}$ and $Z_1 = \Lambda^{-3} \left(\frac{k_B T}{U'} \right)^{\frac{\delta+4}{3}} \frac{\Gamma(\frac{\delta}{3})}{3}$ (Γ is the Gamma function) leading, in the harmonic case where $U(r) = \frac{1}{2} m \omega^2 r^2$, to $D = N \left(\frac{\hbar \omega}{k_B T} \right)^3$ and $n_0 = \frac{N}{(2\pi\sigma_r^2)^{3/2}}$ where $U(\sigma_r) = \frac{1}{2} k_B T$.

The atoms are assumed to be initially in a magnetic trap with an isotropic trapping potential $U = U_{\text{magn}}$, with initial

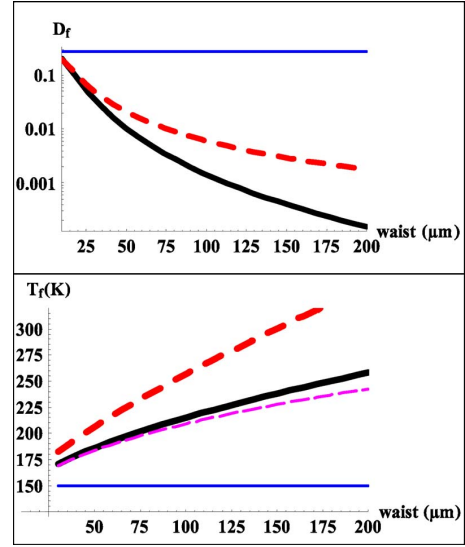


FIG. 2. (Color online) Final phase space density (top) and temperature (bottom) at thermal equilibrium after a diabatic loading of the optical crossed dimple Gaussian trap loaded from a reservoir containing 10^9 atoms at temperature 150 μK . We consider different dimple waists w_0 but the power is adjusted to keep the dimple depth ($\eta_{ve} \approx 11.5$) constant. The red thick dashed lines represent formula (1), the thin blue solid lines are their approximations for small $\eta_{ve}^{\eta_d}$, and the thick black solid lines are the results of our thermodynamical model, where losses are not included. The final temperature after an adiabatic loading of the dimple is also indicated with a thin magenta dashed line.

number of atoms N_i , temperature T_i , phase space density D_i , entropy S_i , and energy $E_i = E(N_i, T_i, U_{\text{magn}})$. The Gaussian laser trap can be superimposed to form the final potential $U_f = U_{\text{magn}} + U_{\text{laser}}$, either in an adiabatic way, i.e., with a slow change in laser power and the system evolves with constant entropy $S_f = S_i$, or in a sudden way with constant energy. Up to now, most of the experimental and theoretical works were focused on the adiabatic process [18,40,41]. However, it is faster to suddenly apply a small dimple trap and the difference in the final temperature (see Fig. 2) or atom number is marginal compared to the adiabatic loading process. In this paper, we choose to discuss the diabatic loading process.

The initial atomic spatial density distribution in the magnetic trap is $n_i(r) = (n_0)_i e^{-\frac{U_{\text{magn}}(r)}{k_B T}}$, and the initial energy E_i becomes $E'_i = E_i - \int_0^\infty 4\pi r^2 n_i(r) U_{\text{laser}}(r) dr$ when the laser trap is suddenly added to the magnetic trap. After thermalization the final energy E_f of the atoms in the potential U_f should be the same as the initial one E'_i . The magnetic and laser potentials do not have the same potential energy at the center [$U_{\text{magn}}(0) = U_{\text{laser}}(\infty) = 0$] then we have $E_f = E(N, T_f, U_f) + N U_f(0)$. This leads to equation $E(N, T_f, U_f) + N U_f(0) = E'_i(N, T_i, U_i)$ which is used to determine the final parameters of the sample after a sudden transformation [the equation in the adiabatic case is $S(N, T_f, U_f) = S(N, T_i, U_i)$] such as the final temperature T_f from which we deduce the final peak density $(n_0)_f$. The number of transferred atoms N_f left in the dimple trap after removing the magnetic trap is N_f

COMPARAT *et al.*

$= \int_0^{r_d} 4\pi r^2 (n_0) e^{-\frac{[U_f(r)-U_f(0)]}{k_B T_f}} dr$ where the dimple radius r_d is defined by $U_f(r_d)=0$.

Our numerical results are given in Fig. 2 (see also the top part of Fig. 6) where they are compared with the one-dimensional quadratic + two-dimensional box model developed in Ref. [40] and that, after small calculations, lead in our case to the following formulas:

$$T_f = T_i \left[1 + \frac{\eta_d \eta_V}{2} \left(1 + \frac{N_f}{N_i} \right) \right] \approx T_i,$$

$$\frac{N_f}{N_i} = \frac{\eta_V e^{-\Delta/T_f}}{1 - \eta_V + \eta_V e^{-\Delta/T_f}} \approx \eta_V e^{\eta_d},$$

$$\frac{D_f}{D_i} = \frac{1}{\eta_V} \frac{N_f}{N_i} \left(\frac{T_f}{T_i} \right)^2 \approx e^{\eta_d}, \quad (1)$$

with $\Delta = \frac{U_f(0)}{k_B} = -\eta_d T_i < 0$ and $\eta_V = \frac{V_d}{V_e}$ where $V_e = N_i / (n_0)_i = Z_{1i} \Lambda_i^3$ is the effective volume of the magnetic trap ($l = V_e^{1/3}$ is the magnetic trap size) and $V_d = N_f / (n_0)_f$ is the effective dimple volume. We found that V_d is typically two times $(\frac{\pi \omega^2}{2\eta_d})^{3/2}$, where $(\frac{\pi \omega^2}{2\eta_d})^{3/2}$ is the value calculated using the quadratic approximation of the Gaussian trap. The right side approximations in Eqs. (1) hold when the key parameter $\eta_V e^{-\Delta/T_f} \approx \eta_V e^{\eta_d}$ is small compared to 1. As indicated by Figs. 2 and 6, the analytical equations (1) inspired by the model described in Ref. [40] are found to be qualitatively correct and might be used as a first guide toward the optimized strategy.

Equations (1) seem to indicate that a very small ($\eta_V \leq e^{-\eta_d}$) but deep ($\eta_d \gg 1$) dimple trap would lead to a large atom number loaded in the dimple, and to a very high phase space density. On the contrary, we shall show that it is almost impossible to reach degeneracy using only such a very deep and small dimple trap because it is in the hydrodynamical regime, and there are two or three body inelastic losses or Majorana losses.

B. Dynamics of the optical trap loading

In this section, we give a physical picture of the mechanisms for the diabatic loading of the dimple trap. The diabatic loading relies on thermalization, and our description clarifies how collisions rapidly fill the trap. Our estimate for the diabatic loading time t_{load} is on the order of a few times the collision time in the magnetic trap, comparable to the estimated one given in [42]. This time is smaller than the time scale for an adiabatic loading, for which the trap should be applied slowly, so that thermal equilibrium is maintained throughout the loading. In this paper we choose to study the diabatic loading which is faster than the adiabatic one, while allowing similar final temperatures (see Fig. 2) and still large gains in phase space densities.

The detailed physics of the loading process is complex and depends on three parameters that we will study one after the other: the probability to be transferred into the dimple (or to be ejected) during a collision, the atomic flux entering the

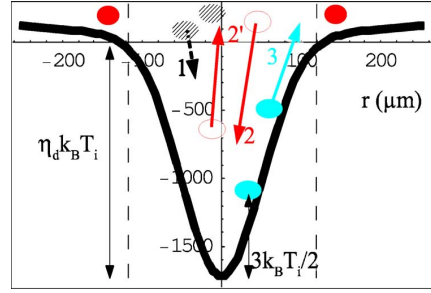
PHYSICAL REVIEW A **73**, 043410 (2006)

FIG. 3. (Color online) Three types of collision occurring between atoms to load a dimple from a reservoir. The vertical dashed lines delimit the N_d atoms in the dimple region (optically trapped or not) from the others. First: collision between two magnetically but not optically trapped atoms (black hatched ones) with kinetic energy $\approx (\eta_d + \frac{3}{2})k_B T_i$ near the center. There is a probability $p_t \approx 0.5$ to transfer one atom in the optical trap (process 1). Second: between one unoptically trapped atom and one optically trapped atom (empty red ones). There is a probability $p_{ev} \approx 0.15$ to eject (evaporate) the trapped atom (process 2'). Third: between two trapped atoms (filled blue ones) having kinetic energy on the order of $E_K^d = \frac{3}{2}k_B T_i$, this thermalization process could rarely lead to evaporation (process 3).

dimple region (depending on the collisions and oscillations times in the reservoir trap), and the collisional rate in the dimple region. To simplify, we consider here that $\eta_d > 4$, which is favorable for the subsequent evaporative cooling step, and we suppose in this section that the dimple trap is small enough such that the reservoir is unaffected during the loading: $N_f \ll N_i$ and $k_B T_f \approx k_B T_i$ for instance (see Fig. 2).

The first parameter (probability to be transferred or ejected) depends on the energy change occurring during a collision. For a Boltzmann distribution, the probability that during a collision a given atom (with a typical kinetic energy $E_K \approx \frac{3}{2}k_B T$) acquires an energy greater than $\eta k_B T$ can be estimated to be $p(\frac{\eta k_B T}{E_K}) = f(\eta)/f(0) = 1 + 2e^{-\eta} \sqrt{\pi} - \text{erf}(\sqrt{\eta})$

where $f(\eta) = \int_{\eta k_B T}^{+\infty} \sqrt{E_K} e^{-\frac{E_K}{k_B T}} dE_K$ and erf is the error function [19,43]. Following notations of Fig. 3 let us first study collisions between two magnetically but not optically trapped atoms. These atoms of the reservoir have a total energy larger than the depth of the dimple trap because they have a typical energy $(\eta_d + \frac{3}{2})k_B T_i$ while in the vicinity of $r=0$. During one of these collisions one atom is transferred into the dimple (process 1 in Fig. 3) if its energy becomes less than the trapping energy $\eta_d k_B T_i$, implying the other atom acquires an energy higher than $(\eta_d + 3)k_B T_i$ which occurs with the probability

$$p_t = p\left(\frac{(\eta_d + 3)k_B T_i}{(\eta_d + \frac{3}{2})k_B T_i}\right) \approx p(1) \approx 0.5.$$

If one atom from the reservoir collides with an optically trapped atom, the chance that one atom ends up trapped in the dimple is even higher (process 2 in Fig. 3). In order to be

conservative we will assume $p_i \approx 0.5$ during the full loading process.

The reverse processes (2' and 3 in Fig. 3), namely the ejection of an optically trapped atom after a collision, must also be taken into account. This probability p_{ev} can be evaluated in the worst case (2') when the collision occurs with an atom from the reservoir, whose kinetic energy is $\sim \eta_d k_B T_i$. The dimple atom kinetic energy is $\sim k_B T_i$, except during the negligible time at the very beginning of the loading when the dimple atoms are not thermalized. By isotropy of the collision (in the center of mass point of view) it is reasonable to think that this collision is similar to a collision of two atoms with $\eta_d k_B T_i / 2$ average kinetic energy inside a trap of $\eta_d k_B T_i$ depth. The collision has therefore a probability estimated to be $p(\frac{\eta_d k_B T_i}{\eta_d k_B T_i / 2}) = p(2) \approx 0.3$ to leave one atom (the originally trapped or not) out of the dimple. Thus the ejection probability is $p_{ev} \approx 0.15$. As mentioned this value is evaluated in the worst case, we then assume in the following $p_{ev} \ll 1$ and neglect the marginal ejection process during the whole loading time.

Once the collisional processes are known we should consider the atomic flux entering the dimple region. We use a single notation N_d for all the atoms in the dimple region (optically trapped in the dimple or not, see Fig. 3). At the very beginning of the loading process the $N_d \approx N_{i\beta}^d \approx n_i r_d^3$ value comes from atoms of the reservoir and, when the sample is thermalized, the $N_d \approx N_f \gg N_{i\beta}^d$ value mainly comes from optically trapped atoms.

Two typical times have to be taken into account to understand the dynamics of the loading. First, the "oscillatory" time t_{osc} , defined by $mv_i^2 \sim k_B T_i$ where $v_i \sim l / t_{osc}$, after which an atom is almost back at the same position. This corresponds to the period in a harmonic trap. The second time is the average time interval between two collisions in the reservoir, $t_{coll} \approx \frac{1}{n_i \sigma v_i}$ where σ is the scattering cross section and where the exact numerical factor depends on the potential trap geometry and will be discussed in the section devoted to the evaporative cooling study. In the absence of collisions, a fraction $\sim r_d^2 / l^2$ of the magnetically trapped atoms trajectories crosses the small dimple radius as shown by Fig. 4 (remember that $\rho = \sqrt{x^2 + y^2}$ is in fact a two-dimensional coordinate). To calculate the rate of atoms going through the dimple volume, one needs to take into account both this fraction and the "ergodicity time" required to modify the trajectories. Indeed, once all the atoms whose trajectories go through the dimple are loaded into it, collisions in the reservoir are needed to modify the trajectories so that some more atoms have a trajectory going through the dimple. This time is of the order (exactly for a perfect isotropic harmonic trap) of the collisional time t_{coll} in the magnetic trap [44]. For simplicity we assume that the magnetic trap is not in a hydrodynamical regime: $t_{coll} > t_{osc}$, which is slightly wrong in the potential we consider here (see Fig. 1) where $t_{osc} = 9$ ms and $t_{coll} = 7$ ms. With such an assumption, the number of atoms passing through the dimple region during a time $\Delta t > t_{coll}$ is $\Delta N_d^{pass} \sim N_{i\beta}^d \frac{r_d^2}{l^2} \frac{\Delta t}{t_{coll}}$.

Each atom passing through the dimple volume has a probability $\sim r_d(n_d \sigma)$ to collide during a single travel inside the

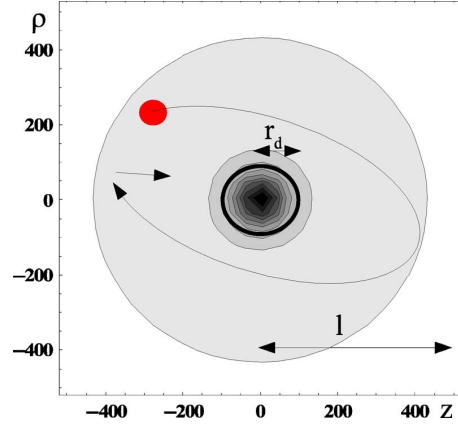


FIG. 4. (Color online) Equipotential lines for the magnetic and optical potential described in Fig. 1. The coordinates z and $\rho = \sqrt{x^2 + y^2}$ are expressed in μm (a part with the unphysical $\rho < 0$ region is also drawn by symmetry for clarity). The dimple radius r_d and the magnetic trap size l are indicated. A typical atomic trajectory is shown with a collision occurring slightly before the oscillatory time t_{osc} .

dimple region and $n_d \sim \frac{N_d}{r_d^3}$ is the density. Before colliding with another atom from the reservoir, this atom passes through the dimple a maximum of $\frac{t_{coll}}{t_{osc}}$ times. Therefore the probability p_d to transfer such an atom is then $p_d \sim p_i r_d (n_d \sigma) \frac{t_{coll}}{t_{osc}}$. Thus the number of atoms transferred inside the dimple during Δt might be estimated to be $\Delta N_d \sim \Delta N_d^{pass} p_d$ leading to the differential equation $\dot{N}_d \sim N_d \frac{\sigma N_i}{2 t_{osc} l^2}$ where the dot designates the time derivative. The loading process changes when the number of atoms inside the dimple region reaches $N_d^0 = n_d^0 r_d^3$ defined by $r_d \frac{N_d^0}{r_d^3} \sigma \frac{t_{coll}}{t_{osc}} \sim 1 / p_i = 2$. Using $t_{coll} \approx \frac{1}{n_i \sigma v_i} \approx \frac{t_{osc}}{n_i \sigma l}$ we found the relation $n_d^0 = 2 \frac{l}{r_d} n_i$. When $N_d > N_d^0$, the hydrodynamical regime occurs and any atom going through the dimple will collide with at least one atom of the dimple, the probability p_d of transferring an atom is then about one each time an atom enters the dimple region. The hydrodynamical regime is not favorable for evaporative cooling so it is advantageous to choose a dimple such that $N_f \lesssim N_d^0$. In this case the loading time of the dimple is

$$t_{load} \sim 2 t_{osc} \frac{l^2}{\sigma N_i} \ln \left(\frac{N_f}{N_i r_d^3 / l^3} \right) \sim 2 t_{coll} \ln \left(\frac{n_f}{n_i} \right). \quad (2)$$

The temporal dependence of the loading time is exponential. It might be eventually followed by a linear loading time (with $p_d = 1$) if $N_f > N_d^0$. The results for our dynamical loading model are illustrated in Fig. 5 [78]. We could test the accuracy of our naive theory in two ways. First using the case of a dimple as large as the reservoir $r_d \approx l$, which is not covered by the assumptions made to derive all the previous formulas, but which is nevertheless useful to test if all the initial atoms are in fact found to be transferred into the dimple (remember that $\eta_d > 4$). In this case the $n_f \approx 2 \frac{l}{r_d} n_i$ formula reads $N_f \approx n_f r_d^3 \approx 2 n_i l^3 \approx 2 N_i$ which is only wrong by

COMPARAT *et al.*

PHYSICAL REVIEW A 73, 043410 (2006)

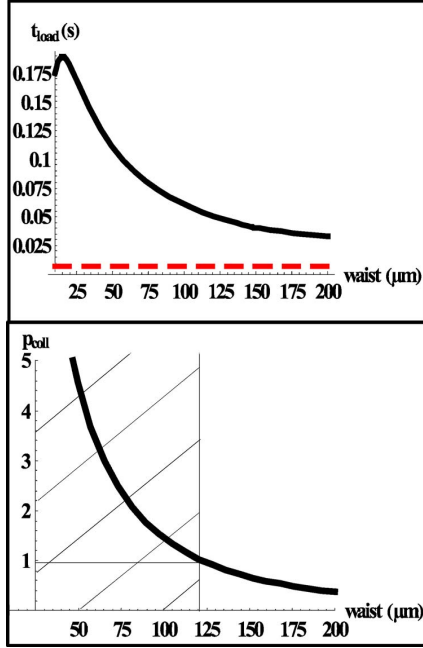


FIG. 5. (Color online) Dimple loading time t_{load} (solid line), compared to the initial collisional time (dashed line) t_{coll} (here 7 ms), (top) and number of collisions before the evaporation point p_{coll} (bottom) which indicates when the hydrodynamical regime is higher than unity (hatched area). The conditions in the loaded dimple trap are the same as in Fig. 2: Nd:YAG optical crossed Gaussian trap (with constant depth) loaded from a 10 mT/cm gradient magnetic quadrupole trap containing 10^9 atoms at temperature 150 μK .

a factor of 2. The second test is the fact that the hydrodynamical regime is found to be reached for the same waist $w_0 \approx 120\text{--}150\ \mu\text{m}$ using our theory (see Fig. 6 where $N_d^0 \approx N_f$) or the exact parameter p_{coll} (see Fig. 5). It might also be useful to test here if the diabatic loading time t_{load} is smaller than the adiabatic one $t_{\text{load,ad}}$. If we suppose that the adiabaticity criterion (for a harmonic trap) $\frac{\dot{\omega}}{\omega} \ll \Gamma_{\text{el}}, \frac{\omega}{2\pi}$ is correct for a ratio value of $1/10 \approx 1/12$ (to simplify the final formula); this leads, in a nonhydrodynamical regime where $\Gamma_{\text{el}} = \frac{1}{t_{\text{coll}}} < \omega$, to $\dot{\omega} = \frac{\omega}{12t_{\text{coll}}}$. Thus $t_{\text{load,ad}} \approx 12t_{\text{coll}} \ln\left(\frac{\omega_f}{\omega_i}\right)$. But $n \propto N\omega^3/T^{3/2}$ leads to

$$t_{\text{load,ad}} \approx 4t_{\text{coll}} \ln\left(\frac{n_f N_i}{n_i N_f}\right) \approx 2t_{\text{load}} \left[1 + \frac{\ln(N_f/N_i)}{\ln(n_f/n_i)} \right].$$

A reasonable estimate of the adiabatic loading time is then

$$t_{\text{load,ad}} \sim 3t_{\text{load}}.$$

In conclusion, we found from Fig. 5 that a few reservoir collision times are enough to load the dimple, in reasonable agreement with the estimate of [42], but we found a strong dependence on the dimple radius r_d . It is advantageous to choose a dimple radius r_d such as the transfer atom number found by the thermodynamics equations N_f verifies $N_f \approx N_d^0 \approx 2\frac{r_d^2}{\sigma}$ which is the maximum value (for an almost hydro-

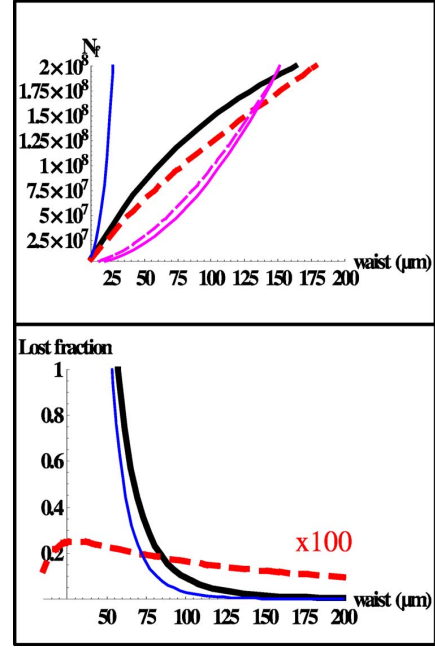


FIG. 6. (Color online) Number of transferred atoms and losses during the loading of the optical trap from the reservoir containing $N_i = 10^9$ atoms at temperature $T_i = 150\ \mu\text{K}$. Top: final number of transferred atoms N_f resulting from our thermodynamical model (thick black solid lines) where no losses are included. The red thick dashed lines represent formula (1), the thin blue solid lines are their approximations for small $\eta_v e^{\eta_d} N_d^0$, which is a naive atomic threshold for the hydrodynamical regime (see text), is also indicated with a thin magenta dashed line as well as its approximation $4\frac{w_0^2}{\sigma}$. Bottom: Lost fraction $\frac{N_{\text{loss}}}{N_f}$ of the loaded atoms due to three body relaxation (thin blue solid line), two body inelastic collision (red dashed line), or Majorana transition (thick black solid line). To be visible we have multiplied the negligible two body inelastic losses by a factor of 100.

namical regime in the reservoir) before reaching the hydrodynamical regime in the dimple. The final density in the dimple is then $n_f \approx 2\frac{L}{r_d} n_i$, reached after a loading time $2t_{\text{coll}} \ln(2\frac{L}{r_d})$. For an optical dimple trap, the link between r_d and the laser waist w_0 depends on r_d and on the reservoir size, but $r_d^2 \approx 2w_0^2$ seems to be a reasonable approximation leading to $N_d^0 \approx 4\frac{w_0^2}{\sigma}$ which is found (see Fig. 6) to be a very precise approximation.

C. Losses during the optical trap loading

We now describe how the previous results are modified in the presence of losses (inelastic losses and Majorana losses). We suggest the use of a quadrupole magnetic trap as the reservoir because the trap volume is large and the oscillation frequency is high. Then $U_{\text{magn}} \approx \mu B' r$ where μ is the atomic magnetic moment and B' is the magnetic field gradient. Furthermore, with near zero magnetic field B at the center, where the optical trap takes place, a quadrupole trap is a good choice to limit the two body inelastic processes. In-

deed, assuming that no resonance processes, such as shape or Feshbach resonance take place, the magnetic field dependence of the two body inelastic rate is, for the worst case, proportional to $\sqrt{B}$ [38,45–48]. For instance, in the cesium case this rate is $K_2 = \frac{\dot{N}}{N\bar{n}} \approx 4 \times 10^{-11} B^2(\text{mT})T(\mu\text{K})^{-0.78} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ where $\bar{n}$ is the average atomic density [38]. During the loading, the number N_2 of atoms lost due to two body collisions follows the equation $\dot{N}_2 \sim K_2 N_d n_d \sim K_2 n_d^2 r_d^3$. Solving this equation leads to the final number $N_{2,f}$ of lost atoms due to two body collisions $N_{2,f} \sim t_{\text{coll}} K_2 n_i^2 e^{t_{\text{load}}/t_{\text{coll}}} r_d^3 \sim t_{\text{coll}} K_2 n_f^2 r_d^3$. The lost fraction $\frac{N_{2,f}}{N_f}$ is then simply $\sim t_{\text{coll}} K_2 n_f$, i.e., the final two body loss during one collisional time (which is the only relevant time during the dimple exponential loading). Similarly the three body atom losses (rate $\Gamma_3 \sim L_3 n_d^2$) lead to a lost fraction $\sim \frac{2}{3} t_{\text{coll}} L_3 n_f^2$, i.e., roughly the final three body loss during one collisional time.

One issue with a quadrupole trap is Majorana losses, due to spin flips occurring when an atom crosses the Majorana sphere of radius $r_{\text{Maj}} \sim \sqrt{\frac{\hbar v_d}{\mu B}}$ (typically on the order of $1 \mu\text{m}$) where v_d is the velocity inside the dimple trap [49]. Since the spin flip occurs near zero magnetic field the change in potential energy is marginal and can be neglected, as shown by comparing the thin solid blue line and the thick black solid line in the bottom inset of Fig. 1. The density in the dimple trap is much higher than the one in the magnetic trap so spin flips will mainly occur from atoms already inside the dimple trap where $v_d \sim \sqrt{k_B T_f / m}$. The spin flipped atoms are trapped in the optical trap. However, for these atoms, the combined magnetic plus dimple trap depth is finite (see Fig. 1), which leads to evaporation at a rate Γ_{ev} . This process is not necessarily a bad one because it might be seen as the beginning of an evaporative cooling inside the dimple. Collisions could also occur with nonoptically trapped atoms with a maximum rate of $p_{\text{ev}}/t_{\text{osc}}$. Of course, another possible strategy, to combine small two body losses with negligible Majorana losses, is to focus the crossed optical trap slightly off center in a region where the magnetic field is small but not zero.

To give an estimate of the number of spin flipped atoms, we consider that no spin flips occur through inelastic collisions. This assumption holds here because for our quadrupolar trap case K_2 has a negligible effect (see Fig. 6). Following the previous reasoning concerning ΔN_d^{pass} we find that the number of spin flipped atoms during Δt is roughly $N_d^{\text{Maj}} \sim N_d \frac{r_{\text{Maj}}^2}{r_d^2} \frac{\Delta t}{t_{\text{coll,d}}}$ where $t_{\text{coll,d}} \sim t_{\text{coll}} n_i / n_d$ is the collision time inside the dimple trap. This result modifies the Majorana rate calculation given in Ref. [49] by a factor $\frac{t_{\text{osc}}}{t_{\text{coll}}}$. As a consequence, $\dot{N}_d^{\text{Maj}} \sim N_d \frac{r_{\text{Maj}}^2}{n_i r_d^2 t_{\text{coll}}}$, which is exactly the equation corresponding to two body losses, with K_2 replaced by $\frac{r_{\text{Maj}}^2}{n_i r_d^2 t_{\text{coll}}}$. Thus the final spin flipped fraction is $\sim \frac{r_{\text{Maj}}^2 n_f}{r_d^2 n_i} \approx \frac{r_{\text{Maj}}^2}{r_d^2} \frac{N_f}{N_i}$. This strongly depends on the dimple radius, a large radius being better in term of losses.

Taking into account two body inelastic losses, as well as Majorana and three body atom losses we estimate the number of lost atoms to be

$$N_{\text{loss}} \sim N_f \left[t_{\text{coll}} K_2 n_f + \frac{2}{3} t_{\text{coll}} L_3 n_f^2 + \frac{r_{\text{Maj}}^2 n_f}{r_d^2 n_i} \right],$$

where we choose $B \approx B'(\sigma_r)_d$ when evaluating the K_2 formula. Formulas for the three body loss rate Γ_3 , t_{coll} , or Γ_{ev} are given in the next section. The number of loaded atoms N_f (calculated from the thermodynamical equation) might never be achieved if the number of atoms lost N_{loss} is large, in this case we are not able to calculate the number of loaded atoms but we can estimate it to be $N_f - N_{\text{loss}}$.

D. Numerical results

In this section, we discuss the strategy to efficiently load a dimple trap, and give numerical results in the case of cesium. For our numerical simulations, we assume as before a $P = 100 \text{ W}$ Nd:YAG laser focused on a $w_0 = 100 \mu\text{m}$ waist. We also assume a 10 mT/cm gradient magnetic quadrupole trap containing 10^9 atoms at a temperature of $150 \mu\text{K}$. This corresponds to a final $\eta = -\frac{U_0}{k_B T_f} \approx 8$ (different from $\eta_d = -\frac{U_0}{k_B T_i} = 11.5$) which is a convenient starting condition for evaporative cooling.

Based on thermodynamical considerations, as illustrated in Fig. 2, one may believe that a small volume dimple trap would ensure a high initial phase space density and a small heating and can even be compatible with large atom numbers. When three body losses, Majorana losses, and the hydrodynamical regime are taken into account the conclusion is quite different. This is especially true for cesium whose scattering length $a \approx -3000 a_0$ is large at zero magnetic field. It is essential to take into account Majorana losses, as well as two body and three body losses, which only depend on the scattering length a . For further evaporative cooling, one also needs to avoid the hydrodynamical regime, when the collisional probability $p_{\text{coll}} \sim \frac{t_{\text{coll,d}}}{t_{\text{osc,d}}}$ is greater than one, i.e., when energetic atoms collide before being evaporated. The strategy is then to choose a dimple radius r_d in order to load $N_f \lesssim 2N_i \frac{r_d^2}{r_i^2}$ atoms in a dimple to avoid the hydrodynamical regime, while avoiding Majorana and inelastic losses, and then to start evaporative cooling.

Numerical results for loading cesium atoms in a dimple are shown in Figs. 5 and 6. If from the pure thermodynamical point of view a small dimple trap looks to be the best choice, Fig. 6 indicates that its loading is strongly affected by Majorana transitions and three body losses and Fig. 5 clearly indicates that the high density reached leads to the hydrodynamical regime and to such high three body recombination rate that it is problematic for subsequent evaporation. Finally the (adiabatic) loading of the dimple is fast. We also conclude that in order to avoid three body losses and the hydrodynamical regime, and to have a large number of atoms $N_f \sim 4w_0^2/\sigma$ loaded, it is necessary to use a rather large waist. This has a cost in the final phase-space density, but, as we shall see in the next section, evaporative cooling starting with such conditions is so fast that this remains the best strategy. In our case we conclude that a $w_0 = 100 \mu\text{m}$ waist, $2 \times 100 \text{ W}$ laser (crossed laser of 100 W each), is a good compromise. More than 10^8 atoms can be transferred in hun-

COMPARAT *et al.*PHYSICAL REVIEW A **73**, 043410 (2006)

dreds of milliseconds, leading to a phase-space density of $1/700$ before starting evaporation.

Our calculations show that the dimple loading due to collisions between atoms is a very efficient process which leads to very high phase-space densities compared to the ones in a MOT. In general, when $\eta_d \approx 4-12$, it is possible to find a waist value for which 20% of the atoms are loaded without significant heating, while avoiding the hydrodynamical regime as well as the Majorana and the two or three body losses. Such large atom numbers loaded in the dimple are an ideal starting point for evaporative cooling. After polarization of the atoms in their lowest state in energy, to avoid two body inelastic losses, evaporative cooling is performed by lowering the optical trap depth. This will be discussed in the following section.

III. EVAPORATIVE COOLING

In this section, we give a complete set of simple equations for evaporative cooling, and we discuss the optimal evaporative cooling strategies. Our theory generalizes the one developed in [50,51] (see also [52,53]), by including the effects of gravity, three body recombination events, the possible dynamical modification of the scattering length by a Feshbach resonance, as well as a time-dependent shape of the dipole trap. We derive simple differential equations for the atom number N , the temperature T , and the energy E of the sample trapped in a time dependent trap, that can be easily solved numerically.

We assume an isotropic power law potential: $U(r) = U' r^{3/\delta}$ for $r < r_U$ [$U(r_U) = \eta k_B T$ is the initial trap depth]. The optical trap case ($r_U = w/\sqrt{2}$) is idealized by the quadratic potential [$U(r) = \frac{1}{2} m \omega^2 r^2$ with $\delta = 3/2$]. For a nonisotropic potential, similar equations can be written, for instance, in the harmonic case by taking the trapping angular frequency ω as the geometric average of the three different axis angular frequencies [50].

We focus on the high η regime ($\eta > 4$) where evaporative cooling is more efficient (for evaporative cooling at low trap depth see [43]). In this high η regime, we assume that all the corrective factors (see [50]) such as $P_l(\eta) = 1 - \Gamma(l, \eta)/\Gamma(l)$ are equal to one, where Γ is Euler's gamma function. This leads one, for instance, to neglect the spilling terms in the evaporation equations. We assume a Boltzmann gas behavior which is a good approximation except very close to the quantum degeneracy regime. For Bose gases, see [54,55] and for degenerate Fermi gases, see [56–58]. We will assume that quantum degeneracy is reached (for the real gas) when the phase space density D reaches 1 for the classical gas.

We assume s -wave elastic scattering with an elastic collision rate $\Gamma_{el} = n_0 \sigma v_r$, where $v_r = 4 \sqrt{\frac{k_B T}{\pi m}}$ is the average atomic relative velocity, and $\sigma = \frac{8\pi a^2}{1 + (ka)^2}$ is the energy dependent scattering cross section with $k = \frac{mv_r}{\hbar}$. To take into account an average of the energy dependent scattering in the potential, the authors of Ref. [20] modify the cross-section formula. Equations (53) and (54) of Ref. [20] are complex. Here, we modify them by replacing k^2 by $k_{ev}^2 = k^2 \frac{\eta}{3} \frac{\pi}{4}$ in the scattering cross section formula. We found that such an approximation

is valid to an accuracy of 20% and is more physically intuitive as it explicitly introduces an average momentum k_{ev} in the new $\sigma = \frac{8\pi a^2}{1 + (k_{ev}a)^2}$ formula [79]. For three-dimensional evaporation, the evaporation rate is given by $\Gamma_{ev}^\eta = \Gamma_{el} e^{-\eta} [\eta - (\frac{3}{2} + \delta)] / \sqrt{2}$, and the average energy taken by the evaporated atoms is $E_{ev}^\eta \approx (\eta + 1) N k_B T$. These formulas are accurate to 15% compared to the ones containing the $P_l(\eta)$ corrective factors [50].

A. Gravity effect

Taking into account gravity, the full potential is $U_g(r, z) = U(r) - mgz$. The evaporation efficiency is substantially reduced by the gravitational field when $\alpha_g = \frac{mgr_U}{k_B T} > 1$ [19,59,60]. For $\delta < 3$ the minimum of the potential U_g is no longer at $r=0$ and we have to redefine the trapping depth by $\eta k_B T = U_g(r=r_U, z=r_U) - U_g$. To be used in the evaporative cooling equation α_g has to be written as an η function. For instance, in the harmonic trap case:

$$\alpha_g = \frac{mgr_U}{k_B T} = \frac{mg}{k_B T} \left(\frac{g}{\omega^2} + \sqrt{\frac{2\eta k_B T}{m\omega^2}} \right),$$

$$\omega = \sqrt{\frac{4\eta k_B T}{mw_0^2}} \left(\frac{1}{2} + \frac{1}{2} \sqrt{1 + \frac{\sqrt{2}mw_0g}{\eta k_B T}} \right). \quad (3)$$

For the crossed dipole trap case, $w_0 = \sqrt{2}r_U$, $\omega = \sqrt{\frac{4U_0}{mw_0^2}}$, and $U_0 \propto P/w_0^2 \propto \omega^2 w_0^2$ expressions are still valid [but $U_0 = U(r_U)$ is no longer the trap depth $\eta k_B T$ except in the zero gravity case].

During a typical optical evaporation process the laser power is reduced, and the effect of gravity increases. Gravity tilts the potential, and modifies the evaporation rate, as is illustrated in Fig. 7. For the sake of simplicity, we here consider the case of isotropic traps, and we only describe “central” ($r=0$) collisions. After such a collision, a given atomic trajectory oscillates between $z < 0$ and $z > 0$ so atoms will escape toward the $z > 0$ region where the potential is the lowest. We label the trajectory with the azimuthal angle θ (such as $z = r \cos \theta$), between 0 and $\pi/2$. Due to isotropy the density probability of the azimuthal angle between θ and $\theta + d\theta$ is $\sin \theta d\theta$. The evaporate atom energy is mainly between the threshold energy $\eta'(\theta) k_B T = U_g(r=r_U, z=r_U \cos \theta) - U_g$ and $[\eta'(\theta) + 1] k_B T$ [19]. Therefore, and for simplicity, we assume that the θ angle is determined exactly by the evaporation energy. Then we choose to average the escape rate to $\Gamma_{ev} = \int_0^{\pi/2} \Gamma_{ev}^{\eta'(\theta)} \sin \theta d\theta$ and the average energy to $E_{ev} = \int_0^{\pi/2} \frac{\Gamma_{ev}^{\eta'(\theta)}}{\Gamma_{ev}} E_{ev}^{\eta'(\theta)} \sin \theta d\theta$, which with $\eta'(\theta) = \eta + \alpha_g(1 - \cos \theta)$ are

$$\Gamma_{ev} = \frac{\Gamma_{el} e^{-\eta - \alpha_g}}{\sqrt{2}} \left\{ \left[\eta - \left(\frac{3}{2} + \delta \right) \right] \frac{e^{\alpha_g} - 1}{\alpha_g} - 1 \right\},$$

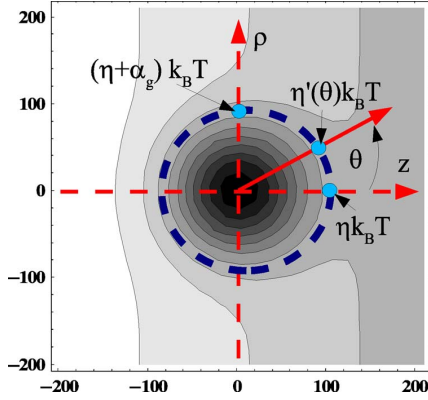


FIG. 7. (Color online) Equipotential lines for an isotropic Gaussian optical trap including gravity (corresponding to two crossed 5 W Nd:YAG lasers focused on $w \approx 100 \mu\text{m}$). Azimuthal z and polar coordinates $\rho = \sqrt{x^2 + y^2}$ in μm have been used (a part with the unphysical $\rho < 0$ region is also drawn by symmetry for clarity). A “trajectory” with azimuthal angle θ is indicated crossing the evaporation (dashed) circle with $\eta'(\theta)k_B T$ minimal evaporation energy. The evaporation energies $\eta k_B T$, $\eta'(\theta)k_B T$, $(\eta + \alpha_g)k_B T$ are indicated, respectively, for 0 , θ , and $\pi/2$ angles.

$$\frac{E_{\text{ev}} - E_{\text{ev}}^{\eta}}{Nk_B T} = \frac{e^{-\eta - \alpha_g}}{\Gamma_{\text{ev}}} \left[\left(\eta - \frac{1}{2} - \delta \right) \left(\frac{e^{\alpha_g} - 1}{\alpha_g} - 1 \right) - \alpha_g \right],$$

We could easily check that the limit of no gravity $\alpha_g \rightarrow 0$ is correct. These formulas are probably not accurate for strong gravity effects, but they will be used to test if gravity is negligible in a given evaporative cooling scheme.

B. Hydrodynamical effects

Evaporation is efficient only in a nonhydrodynamical regime where the atoms do not collide before reaching the evaporation point [61]. The probability p_{coll} for colliding before the evaporation point can be estimated by dividing the typical size of the cloud ℓ by the mean free path $(\bar{n}\sigma)^{-1}$ where $\bar{n} = n_0 2^{-\delta}$ is the average atomic density. In the harmonic trap case $\ell \approx \sqrt{\pi}\sigma_r$ [62,63], leading to the approximate formula $p_{\text{coll}} \approx \frac{\Gamma_{\text{el}}}{4\omega}$. This is similar to the crossover criterium between the hydrodynamical and the Knudsen regime given by [64]. We then approximately take into account the collisional chain by multiplying the atom and the energy losses by an empirical smoothing function $f(p_{\text{coll}}) = (1 + p_{\text{coll}}^3)^{-1}$ which smoothly tends to zero in the high hydrodynamical regime. We believe that our results are quite insensitive to the exact function which is chosen to describe hydrodynamical effects because we tried to remain in the regime in which these effects are negligible.

C. Three body recombination

Three body recombination (TBR) leads to losses at a rate $\Gamma_3 = L_3 \bar{n}^2 = L_3 n_0^2 3^{-\delta}$. The detailed expression is complex and depends on the molecular potential. Here, we use the upper bound expression: $L_3 \approx 225 \frac{\hbar}{m} \frac{a^4}{1 + 0.1(ka)^4}$, which is an approxi-

mate formula based on the experimental results of Ref. [39] and on theoretical works [65–68]. This expression is valid if no resonant processes are present (such as Efimov states occurring for $a < 0$ at very low temperature [69]). It leads (we use k_{ev} instead of k in L_3 formula) to a simple result: $L_3 \lesssim 3.9 \frac{\hbar}{m} \sigma^2$ and therefore

$$\Gamma_3 \leq 0.15 \times 3^{3/2 - \delta} \frac{\hbar \Gamma_{\text{el}}}{k_B T} \Gamma_{\text{el}}. \quad (4)$$

Moreover, TBR leads to “anti-evaporation” (the loss of the coldest atoms). A spatial averaging of the potential energy $U(r)$ with the TBR rate Γ_3 leads to an energy heating of $\frac{2}{3} \delta k_B T$ per event. TBR forms molecules in their highest vibrational state, with binding energy $k_B T_h = \frac{2\hbar^2}{3ma^2}$ (formula valid for large scattering length value). We will not take into account complex possible rovibrational relaxation. But, we have to take into account the fact that the atomic (or molecular) products of TBR are trapped in the sample, which is therefore heated by T_h per event, if $k_B T_h < \eta k_B T$ [39]. This heating does not occur if $k_B T_h > \eta k_B T$ because these particles are ejected from the trap, except if the hydrodynamical regime is reached. To take into account this possibility, we consider that TBR leads to a heating term of $k_B T_h$ multiplied by a smoothing function $f_{\text{TBR}} = 1 - f(p_{\text{coll}}) \left[1 - f\left(\frac{k_B T_h}{\eta k_B T}\right) \right]$ which is 1 in all cases except when $k_B T_h > \eta k_B T$ and in a nonhydrodynamical regime.

D. Evaporative cooling equations

We consider a generic loss term $\Gamma_{\text{loss}} = \Gamma_{\text{in}} + \Gamma_{\text{bg}}$ where Γ_{bg} is the background collisional rate and $\Gamma_{\text{in}} = K_2 \bar{n}$ is the inelastic loss rate. Γ_{in} can be zero in an optical trap where the atoms can be trapped in their true ground state. The energy E of the atoms is modified by the change of the trap shape through the change of potential energy $E_{\text{pot}} = \delta N k_B T = E \frac{\delta}{3/2 + \delta}$ occurring at a rate $\Gamma_{\text{pot}} = \frac{\dot{U}}{U}$ [51–53]. In an optical trap E can change by Nk_B times the recoil temperature T_{recoil} due to photon absorption at a rate $\Gamma_{\text{laser}} \propto \eta k_B T$. Finally, the evaporative cooling equations to be solved are

$$\begin{aligned} \dot{N} &= -[\Gamma_{\text{ev}} f(p_{\text{coll}}) + \Gamma_{\text{loss}} + \Gamma_3] N, \\ \dot{E} &= -[\Gamma_{\text{loss}} + \Gamma_3] E - E_{\text{ev}} \Gamma_{\text{ev}} f(p_{\text{coll}}) + E_{\text{pot}} \Gamma_{\text{pot}} \\ &\quad + N \left[\Gamma_{\text{laser}} k_B T_{\text{recoil}} + \Gamma_3 \left(\frac{2}{3} \delta k_B T + k_B T_h f_{\text{TBR}} \right) \right]. \end{aligned} \quad (5)$$

We stress that these equations take into account all relevant physical phenomena for evaporative cooling: temperature dependent cross section, one body (such as background collisions) and two body losses, TBR, hydrodynamical regime, gravity, arbitrary modification of the trap depth and shape, and time-dependent scattering length. All terms in this set of equations can be written as a function of N , T , a , and U (i.e., η and ω in the harmonic case). Considering that $\frac{\dot{E}}{E} = \frac{\dot{N}}{N} + \frac{\dot{T}}{T}$ these equations lead to differential equations for N and T which only depend on a and U . Simple analytical solutions exist in simple cases; when there is no three body process, no

COMPARAT *et al.*PHYSICAL REVIEW A **73**, 043410 (2006)

gravity, σ is not temperature dependent.... In our case, these equations need to be solved numerically, and we use a simple MATHEMATICA program. These programs, as the one describing the dimple loading, are available upon request to the corresponding author.

E. Evaporative cooling strategy

The optimization of evaporative cooling is usually achieved by maximizing at each time $\gamma = \frac{\dot{D}/D}{\dot{N}/N}$ ($\gamma > 3$ for good experimental conditions [35,41]). But, if there is no inelastic, TBR or background gas processes, γ is maximized for an infinite η value which leads to infinite evaporation time [70,71]. A better parameter, at least for the speed of the evaporation process, is $\frac{\dot{D}}{D} = \frac{\dot{N}}{N} - \left(\frac{3}{2} + \delta\right) \frac{\dot{T}}{T} + \delta \Gamma_{\text{pot}}$. More fancy parameters such as $\frac{(\dot{D}/D)^2}{\dot{N}/N}$ can also be used to optimize at each time the evaporative cooling process. $\frac{\dot{D}}{D}$ becomes, in the zero gravity case,

$$\frac{\dot{D}}{D} = \frac{\Gamma_{\text{el}}}{\sqrt{2}} e^{-\eta} \left(\eta - \frac{5}{2} - \delta \right) \left(\eta - \frac{3}{2} - \delta \right) f(p_{\text{coll}}) - \Gamma_{\text{loss}} - \Gamma_{\text{laser}} \frac{T_{\text{recoil}}}{T} - \Gamma_3 \frac{\frac{5}{3} \delta T + T_{\text{lfTBR}}}{T}. \quad (6)$$

Γ_{pot} does not appear in this equation because changes in the potential shape do not affect the phase space density. This formula is valid [as well as Eqs. (5)] when the adiabatic conditions $\frac{\dot{U}_0}{U_0} \ll \Gamma_{\text{el}}$ and $\frac{\dot{U}'}{U'} \ll \frac{\omega}{2\pi}$ (in the harmonic case) [52,72] are verified. We have numerically verified that all the results presented in this article follow these adiabatic conditions within 90%. Equation (6) indicates that $\dot{D}/D$ is maximized for $\eta \approx 4.1 + \delta$, high Γ_{el} just before the hydrodynamical regime (optimal value $\Gamma_{\text{el}} \approx 3\omega$ in the harmonic case) and negligible loss rate. We have as a typical value $\frac{5/3 \delta T + T_{\text{lfTBR}}}{T} \approx \frac{5}{3} + \eta \approx 10$. Therefore the TBR heating rate is $\sim 10\Gamma_3$. We then see, from Eq. (6), that in order to have an efficient evaporation the TBR heating rate $\sim 10\Gamma_3$, the loss rate Γ_{loss} , and the laser absorption rate $\Gamma_{\text{laser}} T_{\text{recoil}}/T$ must not be higher than Γ_{ev} . Using Eq. (4) and (in the harmonic case) $\Gamma_{\text{ev}}^{\eta=6} = 0.0035\Gamma_{\text{el}}$ we found that the TBR term is negligible if $\Gamma_{\text{el}}(s^{-1}) \ll 300T(\mu\text{K})$. An efficient evaporation should then verify for $\eta \approx 6$,

$$\Gamma_{\text{el}}(s^{-1}) \approx \omega \ll 300T(\mu\text{K}). \quad (7)$$

For $\eta=10$ this becomes $\Gamma_{\text{el}}(s^{-1}) \ll 15T(\mu\text{K})$ which is much harder to achieve. This equation already indicates that, in contrary to the common intuition, the choice of a high initial temperature is not a bad choice because it allows having a tight trap with fast evaporation due to high collisional rate without reaching the three body collisional regime.

A very crude estimate of the minimum time t_{BEC} needed to reach the degeneracy starting from an initial phase space density D_i can be made using Eq. (8) with no losses and $\Gamma_{\text{el}} \approx \omega$ kept constant during the evaporation process leading

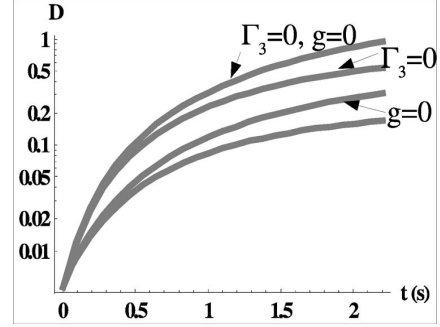


FIG. 8. Evolution of the phase space density during the evaporation at $\eta=10$ and constant laser waist (see text). The four curves represent, respectively, from the bottom one to the top one, full numerical solution of Eq. (5), solution with no gravity ($g=0.01 \text{ m}^2/\text{s}$), without taking into account the Γ_3 term, and with no gravity and no three body loss terms.

to $t_{\text{BEC}} \approx -\frac{\ln(D_i)}{0.01\omega}$ for $\eta \approx 6$ or $t_{\text{BEC}} \approx -\frac{\ln(D_i)}{0.001\omega}$ for $\eta \approx 10$. $\eta \sim 10$ can be used to improve the final number and $\eta=6$ is a faster strategy to reach BEC.

F. Numerical results

Before we detail the conclusions of our study, in this paragraph, we compare our numerical simulation to the experiment described in Ref. [14] and modeled in Ref. [51]. We choose the parameters of Table 1 of Ref. [51]: m is here the rubidium mass, $a=100 a_0$, $N_0=6.7 \times 10^5$ is the initial atom number, $T_0=38 \mu\text{K}$ initial temperature, $\omega_0=2\pi \times 1500 \text{ Hz}$ initial angular frequency, $\Gamma_{\text{loss}}^{-1}=6 \text{ s}$, and $\eta=10$. Formula (3) leads to an effective waist of $w_0=40 \mu\text{m}$, slightly different than the experimental waist of $\leq 50 \mu\text{m}$.

Our results are shown in Fig. 8. The hydrodynamical regime is never reached. When both gravity and TBR are neglected, we recover the theoretical results of [51]. However, when we take those effects into account, we predict that the choice of parameters of Ref. [51] would not lead to BEC. We found that it is nevertheless possible to reach BEC, in agreement with the experimental observation [14], starting the evaporation with the experimentally measured parameters $N_0=2 \times 10^6$ and $T_0=75 \mu\text{K}$. Our numerical treatment is therefore able to reproduce the experimental observations, which theories without gravity or TBR cannot do as accurately.

G. Evaporation of the dimple optical trap

We now turn to our numerical results and discuss the best strategy to reach BEC in the case of cesium. We start evaporation in conditions close to the one deduced from our dimple loading theory with a 100 W Nd:YAG laser focused on $100 \mu\text{m}$: $N_0=10^8$, $T_0=200 \mu\text{K}$, $\eta=9$. Such a dimple trap has a heating rate of $\Gamma_{\text{laser}} T_{\text{recoil}} \approx 11 \text{ s}^{-1} \times 0.2 \mu\text{K}$ at full power. This heating rate will be found to be negligible. All parameters η , ω , a , and g can be experimentally adjusted, and our theory takes this into account. In particular, gravity g can be effectively suppressed by adding a vertical levitating

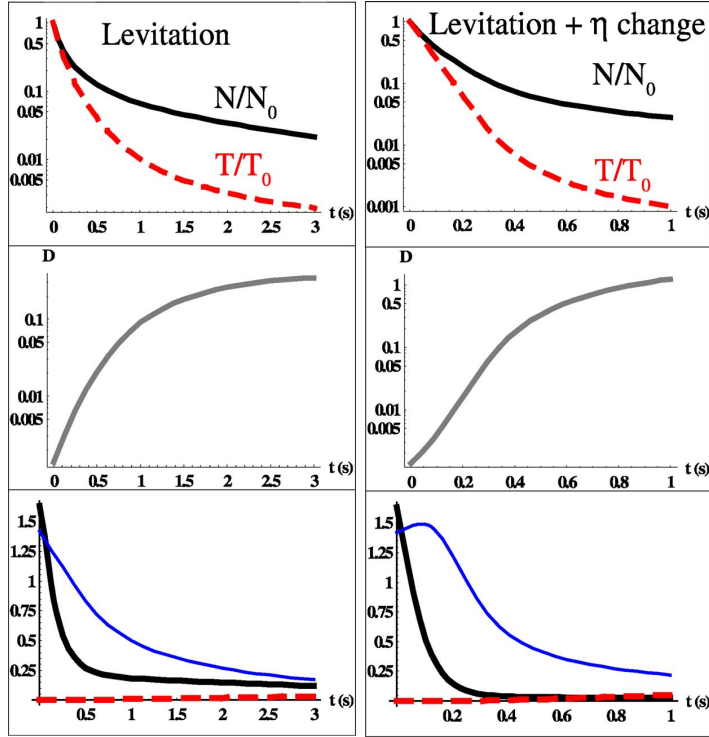


FIG. 9. (Color online) Efficiency of the evaporative cooling from numerical resolution of Eq. (5) for constant waist, without gravity ($g = 0.01 \text{ m}^2/\text{s}$), $a = 100 a_0$, $N_0 = 10^8$, $T_0 = 200 \text{ } \mu\text{K}$. Left: $\eta = 9$ and right: η decreases in a 0.2 s exponential decay from $\eta = 9$ towards an asymptotic value of $\eta = 6$. Top: evolution of the atom number N (solid line) and the temperature T (dashed line). Middle: evolution of the phase space density D . Bottom: hydrodynamical p_{coll} (thin blue solid line), three body $\Gamma_3/\Gamma_{\text{ev}}$ (thick black solid line), and gravity α_g (dashed red thick line) dimensionless parameters.

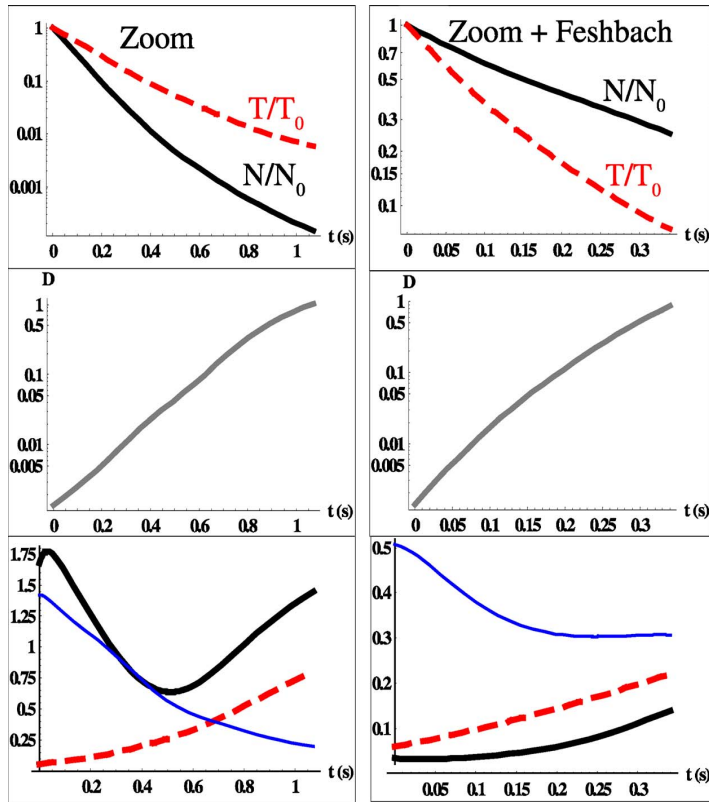


FIG. 10. (Color online) Efficiency of the evaporative cooling from numerical resolution of Eq. (5) for a waist zoom, chosen here to keep the trapping frequency ω constant, $N_0 = 10^8$, $T_0 = 200 \text{ } \mu\text{K}$, $\eta = 9$. Left: $a = 100 a_0$ and right: $a = 30 a_0$ decreases in a 0.2 s exponential decay towards an asymptotic value of $10 a_0$. Top: evolution of the atom number N (solid line) and the temperature T (dashed line). Middle: evolution of the phase space density D . Bottom: hydrodynamical p_{coll} (thin blue solid line), three body $\Gamma_3/\Gamma_{\text{ev}}$ (thick black solid line), and gravity α_g (dashed red thick line) dimensionless parameters.

COMPARAT *et al.*PHYSICAL REVIEW A **73**, 043410 (2006)

magnetic field gradient on the order of tens of mT/cm [73]. This levitating magnetic field gradient also produces a parabolic antitrapping potential, with frequencies on the order of a few Hz, which is usually such a small effect that we neglect it [41].

As illustrated in Fig. 8, a strategy with constant waist ends up with gravity issues, due to quasi-one-dimensional evaporation. We illustrate different evaporative cooling strategies in Fig. 9 using a levitating magnetic field but a constant waist to avoid the gravity problem and in Fig. 10 using a time changing waist. We assumed losses due to collisions with hot atoms from the background gas, leading to a maximum lifetime of $3s = 1/\Gamma_{\text{loss}}$. We choose a scattering length of $100 a_0$ because it is found to be close to the optimal value and, despite the mass difference, it can mimic the rubidium case. Even in the levitating magnetic field case, BEC is not reached if $\eta=9$ is kept constant. By rapidly reducing η to a value $\eta=6$, three body recombination and the hydrodynamical regime are avoided, and BEC is reached in 1 s. This picture points out the effects of TBR and the hydrodynamical regime, which our theory can predict and help to avoid.

In the left part of Fig. 10, we show how to reach degeneracy in less than 1 s by dynamically changing the waist of the dimple. The strategy chosen here is to keep the trapping frequency ω constant [see Eq. (3)]. In this case, the condensed atom number is very small because of hydrodynamical regime or three body losses. However, if a is dynamically modified, as illustrated by the right curves in Fig. 10, BEC can be reached in much less than 1 s, with large atom numbers. A Feshbach resonance is used to have a high collisional rate Γ_{el} . However, this rate is kept lower than 3ω to avoid the hydrodynamical regime and lower than $40T(\mu\text{K})$ to avoid TBR (the factor 40 depends on the η value chosen, here $\eta \approx 9$). We reach degeneracy in a 0.35 s evaporation ramp with $N=2 \times 10^7$ final atom number at a temperature of $14 \mu\text{K}$. During this time the waist is divided by a factor of 3.

To find “the” optimized strategy to reach BEC by dynamically changing all P , w , a , or gravity parameters is beyond the scope of this paper. However, our studies show that keeping $\Gamma_{\text{el}} \approx \omega \approx 100T(\mu\text{K})$ for $\eta \approx 8$ produces even bigger degenerate samples in less than 100 ms, by maximizing the collision rate, while avoiding the hydrodynamical regime.

IV. CONCLUSION

In this paper, we have studied the sudden superimposition of a dimple trap on a large volume trap. We propose three schemes to experimentally realize this goal: a dark-SPOT, a (aberrated) dipole trap, or a magnetic trap as the atom reservoir. The dynamics of the loading leads to an exponential growth of the atom number in time and the diabatic loading is three times faster than the adiabatic one. The optimal dimple trap is the tightest possible trap before reaching the hydrodynamical or the three body recombination regime allowing an almost temperature invariant diabatic loading, i.e., with a maximum of 20% of the atoms loaded. We have

shown that the analytical equations (1) can be used to find the right range for the dimple volume and radius. The focus of our study is a magnetic reservoir and a laser crossed dipole trap for the dimple. The magnetic setup is very simple because only two independent coils can provide magnetic field for the MOT, the quadrupole reservoir, the levitation, and even provide the field for a Feshbach resonance. A linear quadrupole trap can be chosen to avoid two body decay but the size of the dimple trap has to be large enough to avoid the effect of Majorana losses which have been studied. The spin flip process can also be avoided if the crossed optical trap is slightly off axes, where the magnetic field is not zero, or by using a quadratic magnetic trap. In this case of a dimple created by crossed lasers the laser power and waist w_0 have to be chosen to load $\sim 4w_0^2/\sigma$ (where σ is the scattering cross section) atoms from a magnetic trap in a quasi-hydrodynamical regime.

We then studied in detail the evaporation inside the dimple trap. We have derived simple evaporation equations including two body, three body inelastic collisions, hydrodynamical regime, effect of gravity, possible dynamical modification of both the temperature-dependent scattering cross section and of the trap parameters. These equations (5) can be extended to anisotropic potentials, low dimensional gases, or to gases with anisotropic electrostatic interaction [74]. We have discussed the best evaporative cooling strategy for rapidly reaching quantum degeneracy with large atom numbers. We suggest the use of a tight trap, and an elastic collisional rate Γ_{el} as high as possible but not higher than $300T(\mu\text{K})$ (here $\eta \approx 6$, but the factor 300 depends on the η value chosen) to avoid the three body collisional losses, and not higher than ω (in the harmonic trap case), to avoid the hydrodynamical regime. The η parameter could be chosen between 6, for fast evaporation, and more than 10 for a large final number of atoms. We have described how a levitating magnetic field gradient could be used as well as dynamical modifications of the scattering length and the trap shape (laser waist, for instance) to lead to a very fast evaporation and large final atom numbers. Our main conclusion, which also holds for Fermi or Bose mixtures [75–77], is that, using a tight trap with high frequency ω and high collisional rate Γ_{el} but low scattering length and high temperature, large ($>10^7$ atoms) degenerate samples could then be achieved in much less than 1 s starting from a standard MOT. In our group an experimental activity is under way to test these schemes.

ACKNOWLEDGMENTS

This work is in the frame of the Institut Francilien de Recherche sur les Atomes Froids (IFRAF) and of the European Research and Training Networks COLMOL (Contract No. HPRN-CT-2002-00290) and QUACS (HPRN-CT-2002-00309). A.F. acknowledges R. Grimm, H.-C. Nägerl, and P. Lett for helpful discussions. B.L.T. acknowledges financial support from Conseil Régional d’Île-de-France, Ministère de l’Éducation, de l’Enseignement Supérieur et de la Recherche, and European Union (FEDER—Objectif 2).

- [1] J. R. Abo-Shaeer, C. Raman, J. M. Vogels, and W. Ketterle, *Science* **292**, 476 (2001).
- [2] D. S. Naik and C. Raman, *Phys. Rev. A* **71**, 033617 (2005).
- [3] E. W. Streed, A. P. Chikkatur, T. L. Gustavson, M. Boyd, Y. Torii, D. Schneble, G. K. Campbell, D. E. Pritchard, and W. Ketterle, *Rev. Sci. Instrum.* **77**, 023106 (2006).
- [4] D. G. Fried, T. C. Killian, L. Willmann, D. Landhuis, S. C. Moss, D. Kleppner, and T. J. Greytak, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 3811 (1998).
- [5] S. J. M. Kuppens, K. L. Corwin, K. W. Miller, T. E. Chupp, and C. E. Wieman, *Phys. Rev. A* **62**, 013406 (2000).
- [6] T. Ido, Y. Isoya, and H. Katori, *Phys. Rev. A* **61**, 061403(R) (2000).
- [7] S. Dürr, K. W. Miller, and C. E. Wieman, *Phys. Rev. A* **63**, 011401(R) (2000).
- [8] T. Binnewies, G. Wilpers, U. Sterr, F. Riehle, J. Helmcke, T. E. Mehlstäubler, E. M. Rasel, and W. Ertmer, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 123002 (2001).
- [9] A. J. Kerman, V. Vuletić, C. Chin, and S. Chu, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 439 (2000).
- [10] D. Han, S. Wolf, S. Oliver, C. McCormick, M. T. Depue, and D. S. Weiss, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 724 (2000).
- [11] P. Treutlein, K. Y. Chung, and S. Chu, *Phys. Rev. A* **63**, 051401(R) (2001).
- [12] D. J. Han, M. T. DePue, and D. S. Weiss, *Phys. Rev. A* **63**, 023405 (2001).
- [13] W. Hänsel, P. Hommelhoff, T. W. Hänsch, and J. Reichel, *Nature (London)* **413**, 498 (2001).
- [14] M. Barrett, J. Sauer, and M. S. Chapman, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 010404 (2001).
- [15] S. R. Granade, M. E. Gehm, K. M. O'Hara, and J. E. Thomas, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 120405 (2002).
- [16] G. Cennini, G. Ritt, C. Geckeler, and M. Weitz, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 240408 (2003).
- [17] G. Cennini, G. Ritt, C. Geckeler, and M. Weitz, *Appl. Phys. B: Lasers Opt.* **77**, 773 (2003).
- [18] D. M. Stamper-Kurn, H.-J. Miesner, A. P. Chikkatur, S. Inouye, J. Stenger, and W. Ketterle, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 2194 (1998).
- [19] Wolfgang Ketterle and N. J. van Druten, *Adv. At., Mol., Opt. Phys.* **37**, 181 (1996).
- [20] P. J. Tol, W. Hogervorst, and W. Vassen, *Phys. Rev. A* **70**, 013404 (2004).
- [21] W. Ketterle, K. B. Davis, M. A. Joffe, A. Martin, and D. E. Pritchard, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 2253 (1993).
- [22] S. R. Muniz, K. M. F. Magalhaes, E. A. L. Henn, L. G. Marcassa, and V. S. Bagnato, *Opt. Commun.* **235**, 333 (2004).
- [23] R. Newell, J. Sebby, and T. G. Walker, *Opt. Lett.* **28**, 1266 (2003).
- [24] S. K. Lee, H. S. Lee, J. Myun Kim, and D. Cho, *J. Phys. B* **38**, 1381 (2005).
- [25] R. Dumke, M. Johanning, E. Gomez, J. D. Weinstein, K. M. Jones, and P. D. Lett, e-print physics/0602108.
- [26] M. H. Anderson, W. Petrich, J. R. Ensher, and E. A. Cornell, *Phys. Rev. A* **50**, R3597 (1994).
- [27] C. G. Townsend, N. H. Edwards, K. P. Zetie, C. J. Cooper, J. Rink, and C. J. Foot, *Phys. Rev. A* **53**, 1702 (1996).
- [28] Y. Takasu, K. Honda, K. Komori, T. Kuwamoto, M. Kumakura, Y. Takahashi, and T. Yabuzaki, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 023003 (2003).
- [29] Y. Takasu, K. Maki, K. Komori, T. Takano, K. Honda, M. Kumakura, T. Yabuzaki, and Y. Takahashi, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 040404 (2003).
- [30] P. Ahmadi, B. P. Timmons, and G. S. Summy, *Phys. Rev. A* **72**, 023411 (2005).
- [31] P. Ahmadi, V. Ramareddy, and G. S. Summy, *New J. Phys.* **7**, 4 (2005).
- [32] O. Steuernagel, *J. Bridge Eng.* **7**, 392 (2005).
- [33] H. J. Lewandowski, D. M. Harber, D. L. Whitaker, and E. A. Cornell, *J. Low Temp. Phys.* **132**, 309 (2003).
- [34] S. V. Nguyen, J. S. Helton, K. Maussang, W. Ketterle, and J. M. Doyle, *Phys. Rev. A* **71**, 025602 (2005).
- [35] A. Griesmaier, J. Stuhler, and T. Pfau, *Appl. Phys. B: Lasers Opt.* **82**, 211 (2006).
- [36] T. Weber, J. Herbig, M. Mark, H. Nägerl, and R. Grimm, *Science* **299**, 232 (2003).
- [37] Z. Ma, C. J. Foot, and S. L. Cornish, *J. Phys. B* **37**, 3187 (2004).
- [38] D. Guéry-Odelin, J. Söding, P. Desbiolles, and J. Dalibard, *Europhys. Lett.* **44**, 25 (1998).
- [39] T. Weber, J. Herbig, M. Mark, H. Nägerl, and R. Grimm, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 123201 (2003).
- [40] A. Shevchenko, M. Kaivola, and J. Javanainen, *Phys. Rev. A* **70**, 011403 (2004).
- [41] T. Kraemer, J. Herbig, M. Mark, T. Weber, C. Chin, H.-C. Nägerl, and R. Grimm, *Appl. Phys. B: Lasers Opt.* **79**, 1013 (2004).
- [42] L. Viverit, S. Giorgini, L. P. Pitaevskii, and S. Stringari, *Phys. Rev. A* **63**, 033603 (2001).
- [43] R. deCarvalho and J. Doyle, *Phys. Rev. A* **70**, 053409 (2004).
- [44] E. L. Surkov, J. T. M. Walraven, and G. V. Shlyapnikov, *Phys. Rev. A* **53**, 3403 (1996).
- [45] A. J. Moerdijk and B. J. Verhaar, *Phys. Rev. A* **53**, R19 (1996).
- [46] P. O. Fedichev, M. W. Reynolds, U. M. Rahmanov, and G. V. Shlyapnikov, *Phys. Rev. A* **53**, 1447 (1996).
- [47] A. Volpi and J. L. Bohn, *Phys. Rev. A* **65**, 052712 (2002).
- [48] S. Hensler, J. Werner, A. Griesmaier, P. O. Schmidt, A. Görlitz, T. Pfau, S. Giovanazzi, and K. Rzażewski, *Appl. Phys. B: Lasers Opt.* **77**, 765 (2003).
- [49] W. Petrich, M. H. Anderson, J. R. Ensher, and E. A. Cornell, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 3352 (1995).
- [50] O. J. Luiten, M. W. Reynolds, and J. T. M. Walraven, *Phys. Rev. A* **53**, 381 (1996).
- [51] K. M. O'Hara, M. E. Gehm, S. R. Granade, and J. E. Thomas, *Phys. Rev. A* **64**, 051403(R) (2001).
- [52] K. Berg-Sørensen, *Phys. Rev. A* **55**, 1281 (1997).
- [53] K. Berg-Sørensen, *Phys. Rev. A* **55**, 1281(E) (1997); *Phys. Rev. A* **56**, 3308 (1997).
- [54] H. Wu, E. Arimondo, and C. J. Foot, *Phys. Rev. A* **56**, 560 (1997).
- [55] M. Yamashita, M. Koashi, and N. Imoto, *Phys. Rev. A* **59**, 2243 (1999).
- [56] W. Geist, A. Idrizbegovic, M. Marinescu, T. A. Kennedy, and L. You, *Phys. Rev. A* **61**, 013406 (2000).
- [57] M. J. Holland, B. DeMarco, and D. S. Jin, *Phys. Rev. A* **61**, 053610 (2000).
- [58] W. Geist and T. A. Kennedy, *Phys. Rev. A* **65**, 063617 (2002).
- [59] P. W. H. Pinkse, A. Mosk, M. Weidemüller, M. W. Reynolds, T. W. Hijmans, and J. T. M. Walraven, *Phys. Rev. A* **57**, 4747

COMPARAT *et al.*PHYSICAL REVIEW A **73**, 043410 (2006)

- (1998).
- [60] K. B. Davis, M.-O. Mewes, and W. Ketterle, *Appl. Phys. B: Lasers Opt.* **60**, 155 (1995).
 - [61] Z. Y. Ma, M. Thomas, C. J. Foot, and S. L. Cornish, *J. Phys. B* **33**, 3533 (2003).
 - [62] H. C. W. Beijerinck, *Phys. Rev. A* **62**, 063614 (2000).
 - [63] J. Schuster, A. Marte, S. Amtage, B. Sang, G. Rempe, and H. C. W. Beijerinck, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 170404 (2001).
 - [64] A. Griffin, W. C. Wu, and S. Stringari, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 1838 (1997).
 - [65] C. H. Greene, B. D. Esry, and H. Suno, *Nucl. Phys. A* **737**, 119 (2004).
 - [66] J. P. D'Incao, H. Suno, and B. D. Esry, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 123201 (2004).
 - [67] J. P. D'Incao and B. D. Esry, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 213201 (2005).
 - [68] Y. Zhang and L. Yin, *Phys. Rev. A* **72**, 043607 (2005).
 - [69] T. Kraemer, M. Mark, P. Waldburger, J. G. Danzl, C. Chin, B. Engeser, A. D. Lange, K. Pilch, A. Jaakkola, H. Naegerl, and R. Grimm, *Nature (London)* **440**, 315 (2006).
 - [70] Wolfgang Ketterle and N. J. van Druten, *Phys. Rev. A* **54**, 656 (1996).
 - [71] C. A. Sackett, C. C. Bradley, and R. G. Hulet, *Phys. Rev. A* **55**, 3797 (1997).
 - [72] T. Mukai and M. Yamashita, *Phys. Rev. A* **70**, 013615 (2004).
 - [73] T. Kinoshita, T. Wenger, and D. S. Weiss, *Phys. Rev. A* **71**, 011602(R) (2005).
 - [74] V. P. Mogendorff, E. J. D. Vredenbregt, B. J. Verhaar, and H. C. W. Beijerinck, *Phys. Rev. A* **69**, 012706 (2004).
 - [75] M. A. Brown-Hayes and R. Onofrio, *Phys. Rev. A* **70**, 063614 (2004).
 - [76] C. Silber, S. Günther, C. Marzok, B. Deh, P. W. Courteille, and C. Zimmermann, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 170408 (2005).
 - [77] M. Anderlini, D. Ciampini, D. Cossart, E. Courtade, M. Cristiani, C. Sias, O. Morsch, and E. Arimondo, *Phys. Rev. A* **72**, 033408 (2005).
 - [78] The calculation is done as follows: we exactly calculate N_f , n_f , n_i , r_d , and l from the exact thermodynamical model [not the analytical expressions (1)]. We then calculate t_{load} (exponential plus linear) loading time: $t_{\text{load}} = 2t_{\text{coll}} \ln\left(\frac{N_f r_d^3}{N_f l^3}\right)$ for $N_f < N_d^0$ and $t_{\text{load}} = 2t_{\text{coll}} \ln\left(\frac{N_d^0 r_d^3}{N_f l^3}\right) + t_{\text{coll}} \frac{l^2}{r_d^2} \frac{N_f - N_d^0}{N_i}$ for $N_f > N_d^0$, where $N_d^0 = 2 \frac{t_{\text{osc}}}{t_{\text{coll}}} \frac{r_d^2}{\sigma}$ with $t_{\text{osc}} = \sqrt{\frac{m l^2}{k_B T_i}}$, $t_{\text{coll}} = 1/\Gamma_{\text{el}}$ and σ calculated using the initial magnetic trap parameters. Finally $p_{\text{coll}} = \frac{\Gamma_{\text{el}}}{4\omega}$ is calculated using the final magnetic trap parameters.
 - [79] Only when calculating collision in the (infinitely deep) quadrupole magnetic trap we still use k_{ev} to replace k but we choose in our calculation $\eta=4$, and not $\eta=+\infty$, to have $k_{\text{ev}}^2 \approx k^2$ which restores the usual formula for the scattering cross section.

General conditions for quantum adiabatic evolution

Daniel Comparat*

Laboratoire Aimé Cotton, CNRS, Univ Paris-Sud, Bât. 505, 91405 Orsay, France

(Dated:)

Adiabaticity occurs when, during its evolution, a physical system remains in the instantaneous eigenstate of the hamiltonian. We extend the quantum adiabatic theorem and the quantum adiabatic criterion, believed to ensure a adiabatic evolution, by deriving new simple general criteria valid for any type of hamiltonian. Furthermore, we demonstrate that the usual adiabatic criterion of a slow (but finite) hamiltonian variation rate, compared to the spectral gap, is sufficient to ensure adiabaticity when the hamiltonian is real and non oscillating.

PACS numbers: 03.65.Ca, 03.65.Ta, 03.65.Vf, 03.65.Xp

A quantum adiabatic evolution occurs when a quantum state $|\Psi(t)\rangle$ prepared in an eigenstate $|n(0)\rangle$ of a Hamiltonian $H(t)$ remains close to the instantaneous eigenstate $|n(t)\rangle$, with a proper phase choice, of this Hamiltonian as time t goes on. Two major results exist in the literature [1]: firstly, the *adiabatic theorem* demonstrates that adiabaticity is provided if the evolution is driven infinitely slowly (i.e. by $H_\epsilon(t) = H(\epsilon t)$ with $\epsilon \rightarrow 0$); secondly, the *approximate adiabatic criterion*: [39]

$$\sum_{m \neq n} \frac{\hbar}{|E_n - E_m|} \frac{|\langle m | \dot{H} | n \rangle|}{|E_n - E_m|} = \sum_{m \neq n} \left| \frac{\hbar \langle m | \dot{n} \rangle}{E_n - E_m} \right| \ll 1, \quad (1)$$

suggests that a small (compared to the spectral gap) but finite variation rate of $H(t)$ is sufficient to ensure an adiabatic evolution. Here E_m are the instantaneous eigenvalues for the $|m\rangle$ eigenstates of H .

The Born and Fock's quantum adiabatic theorem has been rigorously demonstrated, several times and by several different methods (see for instance [1–4] and references therein), extended to the infinite dimensional setting by Kato [5], studied as a geometrical holonomy evolution by Berry [6], extended to degenerate cases (without gap condition) [7] and to open quantum system [8]. The theorem is strongly related to the (semi-)classical limit $\hbar \rightarrow 0$ of quantum mechanics [9], or, as we shall see, to perturbation theory. Although undoubtedly of great theoretical interest, as in the quantum adiabatic computation [10], the theorem is of no utility concerning the evolution driven by $H(t)$ itself, as in this case $\epsilon = 1$ and cannot be reduced to zero.

On the contrary, the approximate adiabatic condition (1) can be applied to $H(t)$. Its applications range from nuclear magnetic resonance, atomic laser transitions, Born-Oppenheimer molecular adiabatic coupling, collisional processes, ... [11]. Indeed, the criterion (1) ensures an adiabatic evolution in almost all the known examples: Landau-Zener(-Stückelberg), Rosen-Zener-Demkov, Nikitin, Zhu-Nakamura models, in the Rapid Adiabatic Passage or Stimulated Raman Adiabatic Passage (STIRAP) processes, ... [3, 11, 12]. Therefore, the "usual" simple idea of adiabaticity given by Eq.

(1) is broadly and successfully used. However, straightforward counterexamples (e.g. small intensity resonant Rabi pulse detailed hereafter), demonstrates that condition (1) is not sufficient to generally ensure adiabaticity. Even though presented in textbooks [13, 14] this breakdown seems not sufficiently well known, as attested by the recent, often confused, discussion [15–25] following its (over-subtle) "rediscovery" by Marzlin and Sanders [26]. It is therefore interesting to derive general conditions, for a system and its phase evolution, which ensure adiabaticity. This is the goal of this article. As a corollary we will answer the still pending (even in the simple two-level case) question: why and when the condition (1) is a sufficient adiabatic condition.

Let's first study the adiabatic theorem. In the non degenerate ($E_m \neq E_n$) case, the adiabatic theorem stipulates that, with $\int_0^t f = \int_0^t f(t')dt'$ notation:

$$|\Psi_\epsilon(t)\rangle - e^{-i \int_0^t (E_n/\hbar - i \langle n_\epsilon | \dot{n}_\epsilon \rangle)} |n_\epsilon(t)\rangle = O(\epsilon) \xrightarrow{\epsilon \rightarrow 0} 0. \quad (2)$$

Here ϵ controls the overall speed of the evolution [40], the ϵ subscript stands for states linked to the $H_\epsilon(t) = H(\epsilon t)$ evolution and the dot designates the time derivative. In order to illustrate the limited practical utility of the theorem, let's suppose, for instance, that we want to adiabatically drive a two-level system using an external laser field (constant angular frequency $R_1(t) = \omega$), by experimentally modifying two parameters: the coupling Rabi frequency (i.e. the square-root of the laser intensity) $R_2(t) = \Omega(t)$, and the detuning of the laser from resonance $R_3(t) = \delta(t)$. The hamiltonian is, in the rotating wave approximation, $\frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} \delta(t) + \omega & \Omega(t)e^{-i\omega t} \\ \Omega(t)e^{i\omega t} & -\delta(t) - \omega \end{pmatrix} = H(R_1(t), R_2(t), R_3(t), R_4(t))$. Due to the $R_4(t) = \omega t$ term, slowing down the time would lead to $\omega(\epsilon t) = (\omega\epsilon)t$ which, when $\epsilon \rightarrow 0$, would require reducing ω to zero which is experimentally impossible. Moreover, even in the static field ($\omega = 0$) regime, the theorem applies but only if δ and Ω are slowed down simultaneously. The theorem says nothing about the adiabaticity if $\delta(t)$ and $\Omega(t)$ are varied independently with time. The theorem is then better formulated within the parameter domain than within the time domain [27, 28]: an evolution driven

by $H(\mathbf{R}(t))$ is adiabatic if the parameter path, between an initial $\mathbf{R}_{\text{in}}$ parameter value and a final one $\mathbf{R}_{\text{fin}}$, is followed infinitely slowly.

The origin of condition (1) arises [1] from the fact that the error term in Eq. (2) can be written [4] as $O(\epsilon) = \sum_{m \neq n} \frac{\hbar \langle m_\epsilon | \dot{n}_\epsilon \rangle}{E_n - E_m} + O(\epsilon^2)$. The linear ϵ dependence is, deliberately but confusingly, hidden and only implicit through $|\dot{n}_\epsilon\rangle$. This has been the source of confusion when used with $\epsilon = 1$ where $|m_\epsilon\rangle = |m\rangle$. To avoid confusion, $O(\epsilon^2)$ has to be evaluated, as done for instance by giving an exact bound [4] on the adiabatic fidelity $|\langle \Psi | n \rangle|$ such as [41]

$$\frac{1 - |\langle \Psi(t) | n(t) \rangle|}{\hbar} \leq \left\| \frac{\dot{H}}{\Delta E_n^2} \right\|_0^{t_+} + \int_0^t \left(\frac{7 \|\dot{H}\|^2}{\Delta E_n^3} + \frac{\|\ddot{H}\|}{\Delta E_n^2} \right)$$

where $\Delta E_n(t) = \min_{m \neq n} |E_m(t) - E_n(t)|$ and $\|x\|_0^{t_+} = \|x(t)\| + \|x(0)\|$. Such bounds [3, 20, 29] can be used to restore the usual theorem, because $\frac{dH_\epsilon}{dt} = \epsilon \frac{dH_\epsilon}{d(\epsilon t)} = \epsilon \frac{dH}{ds}$ vanishes when $\epsilon \rightarrow 0$ [40], but they have severe limitations. Indeed, in order to provide an adiabatic evolution, they require a maximal evolution time T , as easily seen from the Landau-Zener case $H = \frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} \alpha \varpi t & \Omega \\ \Omega & -\alpha \varpi t \end{pmatrix}$ where in fact only $\alpha \varpi / \Omega^2 \ll 1$ (condition (1)) is necessary to provide adiabaticity and no time limitation is needed.

In order to derive a more useful bound, let's study the evolution of $|\Psi(t)\rangle$ driven by a N -level hamiltonian $H(t)$. The eigenvectors $e^{i\theta_m(t)}|m(t)\rangle$, $m = 1, \dots, N$ form a so called adiabatic basis for the corresponding eigenvalues $E_m(t)$ of $H(t)$, where $\theta_m(t)$ are arbitrary phases. To study the adiabatic evolution we assume that $|\Psi(t=0)\rangle = |n(0)\rangle$. The Schrödinger equation for $|\Psi(t)\rangle = \sum_{m=1}^N U_{mn}(t) e^{i\theta_m(t)} |m(t)\rangle$ leads to $i\hbar \dot{U} = H'U$, which governs the evolution for the time-evolution operator $U(t)$. Here $U(0) = I$, $H' = P^{-1}HP - i\hbar P^{-1}\dot{P}$. In this letter, we identify the operators and their matrices in the standard basis $|m^{\text{st}}\rangle$, $m = 1, \dots, N$. Thus, the columns of P are the eigenvectors $e^{i\theta_m(t)}|m\rangle$: $P_{mk} = \langle m^{\text{st}} | P | k^{\text{st}} \rangle = e^{i\theta_k(t)} \langle m^{\text{st}} | k \rangle$ and

$$H'_{mk} = (E_m + \hbar \dot{\theta}_m) \delta_{mk} - i\hbar \langle m | \dot{k} \rangle e^{i(\theta_k - \theta_m)}. \quad (3)$$

The evolution is adiabatic if and only if the fidelity $|U_{nn}(t)|$ is close to unity. We shall then compare U to another time evolution matrix U' which can be evaluated. Let's define U' by $U'(0) = 1$ and

$$i\hbar \dot{U}' = P'^{-1} H' P' U', \quad (4)$$

where P' is an auxiliary matrix to be chosen conveniently. Then, the important equality

$$U(t) - U'(t) = (P'(t) - 1)U'(t) - U(t)(P'(0) - 1) - U(t) \int_0^t U^{-1}(t') \dot{P}'(t') U'(t') dt' \quad (5)$$

can be established by multiplying it by U^{-1} and then taking the time derivative.

For simplicity, but other choices might be interesting, we choose P' to have $P'^{-1}H'P'$ as an eigenvalue value decomposition of H' [42]. In this case U' is diagonal: $U'_{nn} = e^{-i \int_0^t E'_n(t')/\hbar dt'}$ where E'_n is the eigenvalue of the n^{th} eigenvector $|n'\rangle = P'|n^{\text{st}}\rangle$ of H' . P' is unitary, so $\|P'\| = \|U\| = \|U'\| = 1$. We then apply Eq. (5) on $|n^{\text{st}}\rangle$ and take the norm on both sides to have

$$\left\| |\Psi(t)\rangle - e^{-i \int_0^t \frac{E'_n}{\hbar} dt'} |n(t)\rangle \right\| \leq \left\| |n'\rangle - |n^{\text{st}}\rangle \right\|_0^{t_+} + \int_0^t \left\| |\dot{n}'\rangle \right\| dt' \quad (6)$$

To tight this bound we choose the phase of $|n'\rangle$ to be such that $\langle n^{\text{st}} | n' \rangle \geq 0$. Eq. (6) gives a bound as well as the correct phase evolution for adiabatic evolution. Indeed, the adiabatic fidelity is bound by $2(1 - |\langle \Psi(t) | n(t) \rangle|) \leq \left\| |\Psi(t)\rangle - e^{-i \int_0^t \frac{E'_n}{\hbar} dt'} |n(t)\rangle \right\|^2$, which should now be tighten as much as possible by using the $\theta_m(t)$ phases.

From Eq. (6), sufficient adiabatic conditions are:

$$\|(P'(t) - 1)|n^{\text{st}}\rangle\| = \||n'(t)\rangle - |n^{\text{st}}\rangle\| \ll 1 \quad (7)$$

$$\int_0^t \|\dot{P}'(t')|n^{\text{st}}\rangle\| dt' = \int_0^t \|\dot{n}'(t')\| dt' \ll 1 \quad (8)$$

When all the $P'_{mn} = \langle m^{\text{st}} | n' \rangle$ are real (or with a time independent phase argument) and monotonic, an important simplification occurs because $\int_0^t |\dot{P}'_{mn}(t')| dt' = |P'_{mn}(t) - P'_{mn}(0)| \leq |P'_{mn}(t) - 1| + |P'_{mn}(0) - 1|$. Then, we see, by using the 1-norm [41], that the derivative condition (8) essentially reduces to the sole (7) condition. Similarly P'_{mn} piecewise functions with finite number $(M-1)$ of monotonicity changes would lead to a $\sum_m |P'_{mn} - 1| \ll 1/M$ type of condition [43].

Links and differences of Eq. (6) with the usual theorem, given by Eq. (2), can be inferred by applying standard perturbation theory to Eq. (3):

$$E'_n \approx E_n - i\hbar \langle n | \dot{n} \rangle + \hbar \dot{\theta}_n + \sum_{m \neq n} \frac{|H'_{mn}|^2}{H'_{nn} - H'_{mm}} \quad (9)$$

$$|n'\rangle \approx |n^{\text{st}}\rangle + \sum_{m \neq n} \frac{H'_{mn}}{H'_{nn} - H'_{mm}} |m^{\text{st}}\rangle. \quad (10)$$

With $\theta_m = \theta_n + \arg(-i\langle m | \dot{n} \rangle)$ for all $m \neq n$, to this (second) order approximation the P'_{mn} are real and condition (7) becomes:

$$\sum_{m \neq n} \left| \frac{\langle m | \dot{n} \rangle}{(E_n - E_m)/\hbar - i\langle n | \dot{n} \rangle + i\langle m | \dot{n} \rangle - \frac{d}{dt} \arg\langle m | \dot{n} \rangle} \right| \ll 1.$$

For real hamiltonian H , $|m\rangle$ is real and $\frac{d}{dt} \langle m | m \rangle = 2\langle m | \dot{m} \rangle = 0$. Thus, this condition, also derived in [21], generalizes condition (1) when H is not real. However, as (1), it is an insufficient adiabatic criterion for two reasons: it arises from a perturbative approach, and it neglects the condition (8), which is important for oscillating H .

Let's now illustrate Eqs. (6), (7) and (8) within the two-level ($N = 2$) framework. The spin 1/2 in Pauli Matrix ($\vec{\sigma}$) basis is convenient: $H = -\gamma \vec{B} \cdot \frac{\hbar}{2} \vec{\sigma} = \frac{\hbar \omega_0}{2} \begin{pmatrix} \cos \theta & \sin \theta e^{-i\varphi} \\ \sin \theta e^{i\varphi} & -\cos \theta \end{pmatrix}$. The eigenvectors $e^{i\theta_1}|1\rangle, e^{i\theta_2}|2\rangle$, corresponding respectively to the eigenvalues $\hbar\omega_0/2$ and $-\hbar\omega_0/2$, are given by the columns of $P = \begin{pmatrix} e^{-i\frac{\varphi}{2}} \cos \frac{\theta}{2} e^{i\theta_1} & -e^{-i\frac{\varphi}{2}} \sin \frac{\theta}{2} e^{i\theta_2} \\ e^{i\frac{\varphi}{2}} \sin \frac{\theta}{2} e^{i\theta_1} & e^{i\frac{\varphi}{2}} \cos \frac{\theta}{2} e^{i\theta_2} \end{pmatrix}$ and $H' = \frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} -\dot{\varphi} \cos \theta + \omega_0 + 2\dot{\theta}_1 & (\dot{\varphi} \sin \theta + i\dot{\theta})e^{i(\theta_2-\theta_1)} \\ (\dot{\varphi} \sin \theta - i\dot{\theta})e^{i(\theta_1-\theta_2)} & -\omega_0 + \dot{\varphi} \cos \theta + 2\dot{\theta}_2 \end{pmatrix}$.

With $\theta_2 = -\theta_1$, $H' = \frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} \delta' & \Omega' \\ \Omega' & -\delta' \end{pmatrix}$. The $N = 2$ case is a very special one because it is always possible to choose H' , and then P' real with $\theta_2 = \theta_1 + \arg(-i\langle 2|\dot{1}\rangle) = \theta_1 + \arg(\dot{\varphi} \sin \theta - i\dot{\theta})$. Then, calculation of the "angle" in H' and P' then shows that Eq. (7) and Eq. (8) are equivalent to:

$$\frac{|\dot{\varphi} \sin \theta - i\dot{\theta}|}{\left| \dot{\varphi} \cos \theta - \omega_0 - \frac{d}{dt} \arg(\dot{\varphi} \sin \theta - i\dot{\theta}) \right|} = \frac{|\Omega'|}{|\delta'|} \ll 1 \quad (11)$$

$$\int_0^t dt' \left| \frac{d}{dt'} \frac{|\Omega'(t')|}{\delta'(t')} \right| \ll 1 \quad (12)$$

To check their validity we shall first use a simple example due to Schwinger [30], where all the parameters $\omega_0, \theta, \dot{\varphi} = \omega$ are real and time independent, so the condition (12) vanished. $U(t) = e^{-i \int_0^t H'/\hbar} = \begin{pmatrix} \cos \frac{\Omega_R t}{2} - i \frac{\delta'}{\Omega_R} \sin \frac{\Omega_R t}{2} & -i \frac{\Omega'}{\Omega_R} \sin \frac{\Omega_R t}{2} \\ -i \frac{\Omega'}{\Omega_R} \sin \frac{\Omega_R t}{2} & \cos \frac{\Omega_R t}{2} + i \frac{\delta'}{\Omega_R} \sin \frac{\Omega_R t}{2} \end{pmatrix}$ where $\Omega_R = \sqrt{|\Omega'|^2 + \delta'^2}$ is the generalized Rabi frequency. The adiabatic evolution (negligible off-diagonal terms in U) is ensured by the condition $\frac{|\Omega'|}{\Omega_R} = \frac{|\omega \sin \theta|}{\sqrt{\omega^2 + \omega_0^2 - 2\omega\omega_0 \cos \theta}} \ll 1$, equivalent to our condition (7): $\frac{|\Omega'|}{|\delta'|} = \frac{|\omega \sin \theta|}{|\omega_0 - \omega \cos \theta|} \ll 1$. This example demonstrates that Eq. (1): $\frac{|\Omega'|}{|\omega_0|} = \frac{|\omega \sin \theta|}{|\omega_0|} \ll 1$, as well as the "usual" adiabatic phase evolution $\omega_0 t/2 = \int_0^t E_1/\hbar - i\langle 1|\dot{1}\rangle$ (see Eq. (2)), are not correlated with an adiabatic evolution. On the contrary our equation (6), including its phase $\int_0^t E'_1/\hbar = \Omega_R t/2$, correctly describes an adiabatic evolution.

We now add to our study the second condition (12) by using the cycling hamiltonian $H = \frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} \delta & \Omega \\ \Omega & -\delta \end{pmatrix}$ where $\delta(t) = \alpha \cos(\varpi t)$ and α, ϖ, Ω are positive constants, chosen for simplicity, in weak-coupling ($\Omega \ll \alpha$) and large amplitude ($\alpha \gg \varpi$) case. For $t \in [0, T_1 = \pi/\varpi]$, $\frac{|\Omega'|}{\delta'} = \frac{|\dot{\theta}|}{\omega_0} = \frac{\dot{\Omega}\delta - \Omega\dot{\delta}}{(\delta^2 + \Omega^2)^{3/2}}$ is real and with a single monotonicity change, so our second condition (12) reduces to condition (11). The non-adiabatic transition probability p_1 (so called single-passage or one-way transition), is given by the Landau-Zener's formula: $p_1 \approx e^{-\frac{\pi}{2} \frac{\Omega^2}{\alpha\varpi}}$ [31] and the adiabatic limit $p_1 \rightarrow 0$ is covered by the condition (11): $\max_{t \in [0, T_1]} \left| \frac{\dot{\theta}}{\omega_0} \right| = \frac{\alpha\varpi}{\Omega^2} \ll 1$. After M (even) multiple passage, for $t = MT_1$, the non-adiabatic

transition probability becomes $p_M \approx p_1 \frac{\sin^2 M\Theta}{\cos^2 \Theta}$ and depends of a relative (Stückelberg) phase $\Theta \simeq \frac{\alpha}{\varpi}$ of the wavefunction[31]. For $\Theta \sim \pi/2[\pi]$, p_M can be M^2 times higher than p_1 leading to a full non adiabaticity $p_M \sim 1$ even if $p_1 \ll 1$. This illustrates why in such an oscillating case condition (12): $\frac{\alpha\varpi}{\Omega^2} \ll 1/M$ is needed to ensure an adiabatic evolution. This example is very similar to the case of single crossing but with several levels [32], or to multilevel system [33], leading to sums or products of dephased Landau-Dykhne-Davis-Pechukas's formulas corresponding to several successive transitions between pairs of levels.

When $N > 2$ we use the exact perturbation theory [34] to calculate $P'|n^{st}\rangle$. We write $H' = H_0 + V$ where V is a perturbation. We require that H_0 commutes with the projector $Q_n = 1 - |n^{st}\rangle\langle n^{st}|$ and satisfies $H_0|n^{st}\rangle = H'_{nn}|n^{st}\rangle$. It is simple (by studying $(E'_n - H' + V)|n^{st}\rangle$) to check that the Brillouin-Wigner equations[44], $|\mathbf{n}'\rangle = (1 - (E'_n - H_0)^{-1}Q_n V)^{-1}|n^{st}\rangle$, where $E'_n - H'_{nn} = \langle n^{st}|V|\mathbf{n}'\rangle$, define the eigenvector $|\mathbf{n}'\rangle \propto |n'\rangle$ with a simple normalization $\langle n^{st}|\mathbf{n}'\rangle = 1$. In order to isolate the n^{th} subspace we renumber the states to have $n = 1$ and, using the $1 + (N - 1)$ block matrix notation, we choose

$$H' = H_0 + V, \quad H_0 = \begin{pmatrix} H'_{nn} & 0 \\ 0 & H'_{nn} - \hbar\delta' \end{pmatrix} \quad \text{and} \quad V = \frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} 0 & \Omega' \\ \Omega' & 0 \end{pmatrix}.$$

Then $|\mathbf{n}'\rangle = \left((1 + \delta'^{-1}\Delta')^{-1} \frac{\delta'^{-1}\Omega'}{2} \right)$ where $\Delta' = (E'_n - H'_{nn})/\hbar$ satisfies $\delta'^{-1}\Delta' = \frac{\delta'^{-1}\Omega'}{2} (1 + \delta'^{-1}\Delta')^{-1} \frac{\delta'^{-1}\Omega'}{2}$. Using $\|(1 + \delta'^{-1}\Delta')^{-1}\| \leq \sum_{k=0}^{\infty} \|\delta'^{-1}\Delta'\|^k = (1 - \|\delta'^{-1}\Delta'\|)^{-1}$ and $|n'\rangle = |\mathbf{n}'\rangle/\sqrt{\langle \mathbf{n}'|\mathbf{n}'\rangle}$, we see that Eq. (7) is implied by $\|\delta'^{-1}\|\|\Omega'\| \ll 2$. Using $\delta'^{-1} = -\delta'^{-1}\dot{\delta}'\delta'^{-1}$ and (again) useful estimations on the smallness of $\|\delta'^{-1}\Delta'\|$, and its time derivative, finally leads to

$$\|\delta'^{-1}\|\|\Omega'\| \ll 1 \quad (13)$$

$$\int_0^t \left(\|\Omega'\| \left\| \frac{d}{dt} (\delta'^{-1}) \right\| + \|\delta'^{-1}\| \left\| \frac{d}{dt} \Omega' \right\| \right) \ll 1 \quad (14)$$

which are together simple and sufficient adiabatic conditions because they imply Eqs. (7) and (8).

Contrary to the $N = 2$ case, it is not always possible to force H' , i.e. δ' to be real. But, the (Pantcharatnam's type of) choice $\theta_m = \theta_n + \arg(-i\langle m|\dot{n}\rangle)$ is still convenient because it forces, at least, Ω' to be real. As discussed previously, if H is real and "non-oscillating", meaning that Ω'_{mn} and $(\delta'^{-1})_{mk}$ are (piecewise)real monotonic functions, the condition (14) is essentially reduces to condition (13) which generalizes the standard condition (1).

It is even possible, but beyond the scope of this article[45], to demonstrate that the sole usual condition (1) is sufficient to ensure an adiabatic behavior for a (strongly) non-oscillating real hamiltonian H .

In conclusion, the Schwinger example demonstrates that the usual adiabatic condition (Eq. (1)) as well as the

usual adiabatic phase evolution $\int_0^t E_n/\hbar - i\langle n|\dot{n}\rangle$ is neither sufficiently nor necessarily correlated with an adiabatic evolution. In this letter we derive simple conditions, Eqs.(13) and (14) and exact bounds (Eq. (6)) for the state and its phase, ensuring an adiabatic evolution. Improvement of our bounds can probably be made by using, higher order θ_m choice, or Davis-Kahan $\sin \theta$ theorem or Weyl, Bauer-Fike's types of perturbative bounds [35–37]. The usual (or standard) condition (1) for adiabatic approximation is found to be a sufficient adiabatic condition but only for a real and "non-oscillating" hamiltonian evolution. This probably explains why, even without knowing it, all the previously cited examples (Landau-Zener, STIRAP, ...) deal with the (real) interaction representation or the dressed state basis, where $\omega = 0$, and with non oscillating hamiltonian. Indeed, the standard condition breaks down, not only when resonant terms are present [15, 18, 19], but more generally when oscillating terms are present. Our sufficient adiabatic conditions prevent such oscillation but unfortunately with no distinction between case with constructive crossings or case with destructive (Stückelberg) interferences.

Finally it would be of great interest to give a more practical definition of a "non-oscillating" hamiltonian than the one based on the small number of monotonicity change of the adiabatic hamiltonian H' . We conjecture, based on the isolated zero theorem or on the Jacobi decomposition [42], that real hamiltonian containing sum, product, multiplication or division of composition of (real) exponential or polynomial functions are of this type.

Aknowldegement: This work is in the frame of Institut francilien de recherche sur les atomes froids (IFRAF). Thanks to Sabine Jansen to have pointed out to me Born and Fock's consideration concerning monotonicity.

* Electronic address: Daniel.Comparat@lac.u-psud.fr

- [1] A. Messiah, *Mécanique quantique* (Dunod, 1959).
- [2] M. Born and V. Fock, *Z. Phys.* **51**, 165 (1928).
- [3] S. Teufel, *Adiabatic perturbation theory in quantum dynamics* (Springer-Verlag, 2003).
- [4] S. Jansen et al., *J. Math. Phys.* **48**, 2111 (2007).
- [5] T. Kato, *J. Phys. Soc. Jpn.* **5**, 435 (1950).
- [6] M. V. Berry, *Proc. R. Soc. A* **392**, 45 (1984).
- [7] J. E. Avron and A. Elgart, *Commun. Math. Phys.* **203**, 445 (1999).
- [8] M. S. Sarandy and D. A. Lidar, *Phys. Rev. A* **71**, 012331 (2005).
- [9] M. V. Berry, *J. Phys. A Math. Gen.* **17**, 1225 (1984).
- [10] E. Farhi et al., *Science* **292**, 472 (2001).
- [11] H. Nakamura, *Nonadiabatic Transition: Concepts, Basic Theories and Applications* (World Scientific, 2002).
- [12] E. E. Nikitin, *Handbooks of Atomic, Molecular, and Optical Physics* (Springer, 2006), chap. 49.
- [13] L. I. Schiff, *Quantum Mechanics* (McGraw-Hill, 1949).
- [14] B. Bransden and C. Joachain, *Introduction to Quantum Mechanics* (Longman, Addison-Wesley, 1989).
- [15] S. Duki et al., *Phys. Rev. Lett.* **97**, 128901 (2006).
- [16] J. Ma et, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 128902 (2006).
- [17] K.-P. Marzlin and B. C. Sanders, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 128903 (2006).
- [18] R. MacKenzie et al., *Phys. Rev. A* **73**, 042104 (2006).
- [19] T. Vértesi and R. Englman, *Phys. Lett. A* **353**, 11 (2006).
- [20] D. M. Tong et al., *Phys. Rev. Lett.* **98**, 150402 (2007).
- [21] M.-Y. Ye et al., *arXiv:quant-ph/0509083*, (2005).
- [22] M.-Y. Ye et al., *Phys. Lett. A* **368**, 18 (2007).
- [23] D. M. Tong et al., *Phys. Lett. A* **339**, 288 (2005).
- [24] R. MacKenzie et al., *Phys. Rev. A* **76**, 044102 (2007).
- [25] Z. Wei and M. Ying, *Phys. Rev. A* **76**, 024304 (2007).
- [26] K.-P. Marzlin and B. C. Sanders, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 160408 (2004).
- [27] Z. Wu and H. Yang, *Phys. Rev. A* **72**, 012114 (2005).
- [28] J. Liu and L.-B. Fu, *Phys. Lett. A* **370**, 17 (2007).
- [29] G. Schaller et al., *Phys. Rev. A* **73**, 062307 (2006).
- [30] J. Schwinger, *Phys. Rev.* **51**, 648 (1937).
- [31] Y. Kayanuma, *Phys. Rev. A* **50**, 843 (1994).
- [32] A. Joye et al., *Phys. Rev. A* **44**, 4280 (1991).
- [33] M. Wilkinson and M. A. Morgan, *Phys. Rev. A* **61**, 062104 (2000).
- [34] J. Paldus, *Handbooks of Atomic, Molecular, and Optical Physics* (Springer, 2006), chap. 5.
- [35] I. Ipsen, *Linear Algebra Appl.* **358**, 239 (2003).
- [36] X. Chen and W. Li, *J. Comput. Appl. Math.* **196**, 338 (2006).
- [37] W. Li and W. Sun, *SIAM J. Math. Anal. Appl.* **29**, 643 (2007).
- [38] J. Roland and N. J. Cerf, *Phys. Rev. A* **65**, 042308 (2002).
- [39] $\langle m|\dot{n}\rangle = \frac{\langle m|\dot{H}|n\rangle}{E_n - E_m}$ comes from the time derivative of $\langle m|n\rangle = \delta_{mn}$ and of $\langle m|H|n\rangle = E_n\delta_{mn}$, where δ_{mk} is Kronecker's delta.
- [40] The path parametrization is then $s(t) = t/T = \epsilon t \in [0, 1]$ and $H_\epsilon(t) = H(s(t))$ where T is the evolution time. The Schrödinger equation is then $i\hbar \frac{d\Psi_\epsilon(t)}{dt} = H_\epsilon(t)|\Psi_\epsilon(t)\rangle$ or $i\hbar \epsilon \frac{d\Psi(s)}{ds} = H(s)|\Psi(s)\rangle$. An important example is the interpolating hamiltonian $H(s) = H_{\text{in}}(1-s) + H_{\text{fin}}s$. It is possible to controls locally the speed of the $H_s(t) = H(s(t))$ hamiltonian by using a better *monotonic* function $s(t) \in [0, 1]$ [38].
- [41] Here $\|x\| = \sqrt{x^\dagger x} = \sqrt{\sum_{i=1}^N |x_i|^2}$ and $\|x\|_1 = \sum_{i=1}^N |x_i|$ verify $\|x\|_2 \leq \|x\|_1 \leq \sqrt{N}\|x\|_2$. For the matrix norm $\|M\| = \max_{x \neq 0} \frac{\|Mx\|}{\|x\|}$
- [42] This can be done by iterative methods, creating series of matrices $U'', P'', U^{(3)}, P^{(3)} \dots$ converging toward the diagonalization, as in the Jacobi algorithm which iterates the $N = 2$ case.
- [43] Interestingly enough, very similar considerations have been used by Born and Fock in their seminal paper.
- [44] We wrote E'_n simply as E'_n
- [45] A clue for the proof is based on the fact that the off diagonal part $\sim \varphi_{mk}$ (where φ_{mk} is the angle between $|m'\rangle$ and $|k^{st}\rangle$), of δ' should be bigger than the gap (Weyl's theorem) in order to bring one δ' eigenvalue to 0 (no gap situation). But, a time $T \sim 1/|\Omega'|$ is needed to have an non adiabatic evolution. This implies that $\varphi_{mk}T \gg 1$ i.e. $\varphi_{mk} \sim \dot{\varphi}_{mk}T$ varies much more than 2π which contradicts the monotonic behavior of $P'_{mk} = \frac{d}{dt} \cos \varphi_{mk}$.