



HAL
open science

Dynamique de l'interaction dans un gaz d'atomes de Rydberg froids. Blocage dipolaire, ionisation Penning. Pompage optique et refroidissement de la vibration de molécules

Amodsen Chotia

► **To cite this version:**

Amodsen Chotia. Dynamique de l'interaction dans un gaz d'atomes de Rydberg froids. Blocage dipolaire, ionisation Penning. Pompage optique et refroidissement de la vibration de molécules. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Paris Sud - Paris XI, 2009. Français. NNT : . tel-00447969

HAL Id: tel-00447969

<https://theses.hal.science/tel-00447969>

Submitted on 18 Jan 2010

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

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

UNIVERSITE PARIS 11 - ORSAY

THÈSE

Pour obtenir le grade de

Docteur de l'Université Paris XI

École doctorale : Ondes et Matière

présentée par

Amodsen CHOTIA

Sujet :

**Dynamique de l'interaction dans un gaz d'atomes de Rydberg froids
Blocage dipolaire, ionisation Penning
Pompage optique et refroidissement de la vibration de molécules**

Soutenue le 26 mars 2009 à Orsay devant la commission d'examen :

M. Ennio Arimondo	
M. Philippe Bouyer	
M. Antoine Browaeys	
M. Jean-Claude Garreau	<i>Rapporteur</i>
M. Robin Kaiser	<i>Rapporteur</i>
M. Daniel Comparat	<i>Co directeur de thèse</i>
M. Pierre Pillet	<i>Directeur de thèse</i>

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

Table des matières

Introduction	5
1 Les atomes de Rydberg	9
1.1 Introduction	9
1.2 Fonctions d'ondes, niveaux d'énergie	10
1.3 Durée de vie radiative	13
1.3.1 Influence du rayonnement du corps noir	14
1.4 Interactions entre atomes de Rydberg	15
1.5 Effet Stark	16
1.5.1 Diagonalisation du Hamiltonien Stark	16
1.5.2 Application aux états moléculaires	18
1.5.3 Blocage dipolaire de l'excitation	21
1.6 Détection	21
1.6.1 Détection par ionisation par champ électrique	21
1.7 Effet spectroscopique de l'interaction dipôle-dipôle	24
1.7.1 Transfert résonant	27
1.8 Conclusion	28
2 Expériences de blocage dipolaire avec des atomes de Rydberg froids	31
2.1 Propositions de portes logiques quantiques	32
2.2 Montage expérimental	34
2.2.1 Excitation continue	34
2.2.1.1 Le piège magnéto-optique de césium	34
2.2.1.2 Schéma d'excitation d'atomes de Rydberg	36
2.2.1.3 Détection	38
2.2.1.4 Compensation des champs électriques parasites	40
2.3 Expérience de blocage dipolaire à résonance de Förster	41
2.3.1 Résultats	42
2.3.1.1 Études en fonction du nombre quantique principal	43
2.3.1.2 Effet de la puissance d'excitation et de la densité	48
2.3.2 Conclusion	50
2.4 Expérience de contrôle du blocage dipolaire par un champ électrique	53
2.4.1 Résultats	53
2.4.1.1 Étude en champ	54

2.4.1.2	Étude en densité et en puissance	57
2.4.1.3	Effet parasite des ions	61
2.4.2	Conclusion	63
2.5	Expériences complémentaires	66
2.5.1	Excitation collective à deux atomes	73
2.6	Conclusion	78
3	Modélisation Monte Carlo cinétique du blocage dipolaire en champ électrique	81
3.1	Modélisation du blocage dipolaire de l'excitation	81
3.1.1	Développement de notre modèle	82
3.2	Matrice densité réduite, champ moyen	84
3.3	Introduction aux algorithmes Monte Carlo cinétiques	86
3.3.1	Le code	87
3.4	Simulation MCC de l'interaction dipôle-dipôle	87
3.4.1	Résultats de la modélisation	89
3.4.1.1	Blocage dipolaire induit par champ	89
3.4.2	Rôle des ions	90
3.4.3	Rôle du plus proche voisin	92
3.5	Conclusion	93
4	Effets des interactions dipolaires sur la dynamique du gaz gelé de Rydberg	97
4.1	Des atomes de Rydberg aux plasmas ultra-froids	97
4.1.1	Formation de plasmas ultra-froids	98
4.2	Expérience de contrôle des forces dipolaires menant à l'ionisation du gaz gelé	101
4.2.1	Expérience et résultats	101
4.2.2	Collisions ionisantes, forces dipolaires	102
4.2.3	Redistribution des états atomiques par le rayonnement du corps noir .	105
4.2.4	Effets des ions	108
4.3	Expériences complémentaires	109
4.4	Interactions collectives	111
4.4.1	Superradiance	111
4.4.1.1	Modélisation du transfert superradiant	114
4.4.2	Effets à longue portée, terme d'échange	118
4.5	Conclusions	119
5	Production de molécules ultra-froides	123
5.1	Introduction	123
5.1.1	Formation de molécules froides par photoassociation	124
5.1.1.1	Remarques générales	124
5.1.1.2	Niveaux moléculaires	126
5.1.1.3	Montage expérimental	127
5.2	Détection large bande d'états moléculaires	129
5.2.1	Détection de nouvelles raies de photoassociation	131
5.3	Pompage optique, refroidissement vibrationnel par un laser façonné en fréquence	132

5.3.1	Effet d'un laser spectralement large	133
5.3.2	Pompage optique vers $v_X=0$	134
5.3.3	Formations de molécules dans l'état fondamental	137
5.3.4	Retour sur le mécanisme de formation	139
5.4	Conclusion	142
Conclusion		145
A Superradiance		149
A.1	Introduction de l'équation pilote	149
A.1.1	Equation d'évolution	149
A.2	Traitement de l'émission spontanée	150
A.2.1	Hamiltonien d'interaction	150
A.2.1.1	Approximation de Born-Markov	151
A.2.1.2	Equation pilote pour plusieurs atomes	151
A.2.2	Équation de Dicke	152
A.2.3	Champ moyen	155
A.3	Interaction dipôle-dipôle	156
B Schémas électroniques de la détection		163

Remerciements

Je remercie le directeur du laboratoire Aimé Cotton, Pierre Pillet, de m'avoir accueilli dans son équipe de recherche 'molécules froides'. Pierre Pillet et Daniel Comparat m'ont permis de faire une thèse passionnante qui a trait à des sujets riches et variés. La confiance qu'ils m'ont accordé durant ces années est un élément essentiel du très bon déroulement de mon séjour au laboratoire Aimé Cotton.

Merci beaucoup Pierre, de m'avoir donné l'opportunité de faire cette thèse, très variée et formatrice, dans des conditions aussi favorables.

Merci beaucoup Daniel, pour tes conseils toujours pertinents, pour tes explications pédagogiques et pour ton dynamisme si communicatif.

Ce travail de thèse s'est déroulé dans une très bonne ambiance grâce au travail d'équipe que j'ai partagé avec Thibault Vogt qui a facilité mon début de thèse en partageant son expérience expérimentale et théorique et en répondant à mes nombreuses questions, et bien sûr avec Matthieu Viteau avec qui nous avons enregistré des gigaoctets de données, imaginé et échangé de nombreuses hypothèses concernant les spectres observés, discuté de nombreux articles, modifié et bricolé un grand nombre de montages avec beaucoup d'enthousiasme.

L'équipe molécules froides est répartie en plusieurs activités et je souhaite remercier Nadia Bouloufa et Olivier Dulieu pour leur soutien théorique, Nicolas Vanhaecke, Andrea Fioretti et Jérôme Beugnon pour leurs explications et conseils expérimentaux. Merci à Jean-Marie Lecomte pour son aide sur les programmes de calcul en fortran.

Merci également aux visiteurs qui sont passés dans l'équipe, Maria Allegrini, Jianming Zhao, T.F. Gallagher, et merci au groupe d'optique quantique du LCFIO, A. Browaeys, P. Grangier, T. Wilk et A. Gaetan avec qui nous avons collaboré.

Merci à Amanda pour son aide administrative et pour sa bonne humeur. Merci aux doctorants, post-doctorants (Dimitris, Nicolas, Manou, Jérôme, Rachidi, Leila, Anne, Matthieu L., Michael, Fabienne, Guillaume S., Thu-Hien, Guillaume G., Elodie, Vincent, Beatriz, Haikel, Walid, Pierre, Mariela, Jordi, Aline, Johannes, Andreas) et à l'ensemble des personnels du laboratoire (chercheurs, enseignant-chercheurs, services techniques et services administratifs).

Je souhaite également remercier Robin Kaiser et Jean-Claude Garreau d'avoir accepté d'être les rapporteurs de ce manuscrit, ainsi que Ennio Arimondo, Antoine Browaeys et Phillipe Bouyer pour leur présence dans mon jury.

Enfin, un très grand merci à ma famille.

Introduction générale

Le sujet de cette thèse concerne les interactions électrostatiques à très longues portées entre atomes de Rydberg, plus particulièrement aux termes dipolaires de l'interaction. Les atomes de Rydberg offrent en effet une polarisabilité extrêmement importante qui conduit dans plusieurs configurations, que nous étudierons dans cette thèse, à des interactions de type dipôle-dipôle dont la portée peut atteindre plus de $10 \mu\text{m}$. Les atomes de Rydberg ont en effet des propriétés exacerbées par rapport à des atomes peu excités et ils offrent en particulier des dipôles de transition entre deux états de même nombre quantique principal n de l'ordre de n^2 en unité atomique, ce qui signifie plusieurs milliers de Debye soit trois ordres de grandeurs plus élevés par rapport au moment dipolaire électrique d'une molécule polaire.

Cette propriété à des conséquences remarquables dans le comportement d'un gaz froid d'atomes de Rydberg qui peut de ce fait présenter une forte analogie en terme de propriétés avec un solide amorphe. À forte densité un tel gaz peut évoluer spontanément vers un plasma neutre ultra froid. Les forces dipolaires entre atomes de Rydberg sont là aussi à l'origine du démarrage de ce phénomène. Le contrôle et l'utilisation des interactions offre aussi un enjeu considérable pour manipuler deux ou un ensemble mésoscopique d'atomes. Elles ouvrent des voies pour, par exemple, l'intrication de deux atomes et la réalisation de portes logiques quantiques. L'étude des atomes de Rydberg froids, démarrée au laboratoire Aimé Cotton depuis une dizaine d'années connaît actuellement un développement rapide dans ces différentes directions de recherches à la croisée de la physique atomique avec la physique moléculaire, la physique des plasmas ou la physique de l'état solide et de l'information quantique.

Le but de cette thèse est d'analyser ces interactions en utilisant un gaz refroidi par laser d'atomes de césium. Ces atomes froids sont portés dans un état de Rydberg très excité de nombre quantique principal allant de $n=30$ à $n=150$. Nous avons considéré des configurations où l'interaction de type dipôle-dipôle est obtenue soit en ajoutant un petit champ électrique créant pour chaque atome de Rydberg un dipôle électrique permanent, soit en utilisant une configuration quasi résonante dite résonance de Förster dans laquelle deux atomes de Rydberg s'échangent de manière résonante de l'énergie interne correspondant à des transitions dipolaires électriques¹. Ces configurations donnent lieu à des potentiels d'interaction dipôle-dipôle entre atomes à grande portée avec une dépendance en $1/R^3$.

1. Une résonance de Förster correspond à une dégénérescence de l'énergie d'une paire d'atomes dans laquelle on a $a+b \rightarrow c+d$. On considère pour l'atome de césium le cas $np_{3/2} + np_{3/2} \rightarrow ns + (n+1)s$ où la résonance est obtenue par l'ajout d'un faible champ électrique.

Les potentiels peuvent être répulsifs ou attractifs et dans ce dernier cas ils conduisent les atomes à des collisions Penning où un atome est ionisé et le second retombe sur un niveau d'énergie plus bas. Ces sont ces processus d'ionisation qui initient la formation d'un gaz froid de Rydberg vers un plasma froids. Lorsque la charge d'espace des ions froids ainsi obtenue est suffisante pour piéger les électrons, ceux-ci collisionnent avec les atomes de Rydberg, les ionisant en avalanche, créant ainsi un plasma froid quasi-neutre.

Les résultats de cette thèse concernent le blocage dipolaire de l'excitation d'atomes dans un état de de Rydberg à haute résolution ainsi que le contrôle de l'ionisation Penning résultat de collisions dipôle-dipôle entre atomes de Rydberg. Dans le chapitre 1 nous rappelons brièvement quelques propriétés des atomes dans des états de Rydberg et nous introduisons les caractéristiques de base de l'interaction dipôle-dipôle.

Le chapitre 2 concerne l'étude du blocage dipolaire et les premières démonstrations qui ont été faites au laboratoire Aimé Cotton. Sa motivation est liée aux propositions faites avec l'utilisation d'atomes neutres dans des schémas de logique quantique qui tirent partie de ces interactions lorsqu'ils sont portés dans des états de Rydberg. Les résultats obtenus sont décrits : le blocage dipolaire de l'excitation en configuration de résonance de Förster [Vogt et al., 2006], et induit par champ électrique [Vogt et al., 2007]. Nous montrerons une inhibition de l'excitation par contrôle de l'interaction entre paires d'atomes de Rydberg au voisinage de résonance de Förster ou par couplage interne entre niveaux de Rydberg lors de application d'un champ électrique. Les résultats de blocage dipolaire que nous avons obtenus dans un ensemble macroscopique ont été transposés à un système de deux atomes seulement. Cette expérience à été réalisée au laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique (LCFIO) dans le groupe de Philippe Grangier et Antoine Browaeys dans le cadre d'une collaboration supportée par l'Institut Francilien de Recherche sur les Atomes Froids (IFRAF). L'excitation collective contrôlée d'une paire d'atomes a été observée dans le cas où un atome au plus est excité [Gaetan et al., 2009].

Dans le chapitre 3 nous étudions la dynamique spatiale et temporelle de l'interaction entre atomes de Rydberg qui peut être modélisée par un algorithme Monte Carlo cinétique et par un intégrateur à N-corps. Nous décrirons son application au blocage dipolaire de l'excitation induite par un champ électrique [Chotia et al., 2008]. Dans ce type de simulation chaque particule peut changer d'état dans une liste prédéfinie avec un taux donné (fixe ou calculé d'après une fonction définie). La dynamique spatiale peut également donner lieu à des changements d'états (e.g. ionisation Penning). À l'aide de ce modèle nous montrons que nous reproduisons les résultats de l'expérience de blocage dipolaire en champ électrique et que l'effet de la présence d'un nombre élevé d'ions peut également être visible. En conséquence nous concluons que la présence des ions comme montré dans [Vogt et al., 2007] doit être parfaitement contrôlée, car l'effet Stark induit par ceux-ci sur les atomes de Rydberg conduit également à une inhibition de l'excitation, cachant et empêchant celle du blocage dipolaire. Un résultat intéressant de ce calcul est que le blocage dipolaire est principalement dû à l'atome de Rydberg plus proche voisin.

Dans le chapitre 4, nous analysons les effets des potentiels attractifs et répulsifs entre

deux atomes de Rydberg plus proches voisins sur la formation d'ions [Viteau et al., 2008b]. Nous montrons aussi que l'effet du rayonnement thermique du corps noir est important dans la redistribution des états atomiques de potentiels répulsifs vers des états dont les potentiels d'interactions sont attractifs. Une redistribution rapide des états est aussi possible par un effet superradiant. Nous modélisons la superradiance dans un volume petit devant celui de la longueur d'onde au cube et rendons compte d'une expérience réalisée à l'Université de Virginie dans le groupe de Thomas Gallagher dans laquelle un effet de superradiance limitée entre états de Rydberg est mis en évidence. Nous utilisons le code Monte Carlo cinétique pour étudier l'effet de l'interaction de retard sur la dynamique spatiale d'états de Rydberg.

Les résultats sur les atomes de Rydberg ont été obtenus en collaboration avec Matthieu Viteau, également étudiant en thèse dans le groupe et une partie avec Thibault Vogt. Les résultats obtenus ont également concerné les molécules froides formées par photoassociation. Mon sujet de thèse concerne avant tout les atomes de Rydberg alors que celui de Matthieu Viteau est centré sur les molécules froides. J'ai néanmoins activement participé à ces expériences qui sont brièvement discutées dans le chapitre 5.

Dans le chapitre 5 l'étude des molécules froides s'est focalisée sur l'utilisation de laser à large bande spectrale que ce soit pour la détection de ces molécules froides ou dans des schémas de refroidissement des degrés de liberté interne de la molécule de césium Cs_2 . Il s'agit dans ce cas donné d'expériences utilisant un laser femtoseconde mode bloqué façonné en intensité et en fréquence nous permettant de peupler après quelques cycles d'absorption-émission spontanée l'état vibrationnel $v=0$ de l'état fondamental de Cs_2 , formant un état noir de notre dispositif [Viteau et al., 2008].

Chapitre 1

Les atomes de Rydberg

1.1 Introduction

Nous allons décrire dans ce chapitre les principales caractéristiques des atomes très excités, aussi appelés atomes de Rydberg. Dans une première partie, nous décrirons les propriétés de ces états atomiques. Nous décrirons ensuite les méthodes expérimentales de production et de détection de ces atomes. L'étude des atomes de Rydberg étant riche, nous donnerons uniquement quelques exemples d'expériences pouvant servir de support à cette introduction, très loin d'une description exhaustive. Les atomes portés dans des états très excités ont des propriétés exacerbées comparativement aux atomes restés dans leur état fondamental ou peu excités et interagissent fortement avec leur environnement. Nous évoquons ici le cas d'atomes alcalins qui se prêtent bien au refroidissement laser, car leur unique électron de valence porté dans un état de Rydberg donne lieu à des atomes quasi hydrogénoïde. L'ensemble de notre travail expérimental a été fait en considérant des atomes de césium. La collaboration avec le LCFIO a concerné le rubidium.

Nous pouvons rappeler que pour un atome d'hydrogène les niveaux d'énergie E_n ainsi que le rayon de l'orbite r_n sont donnés par (unités SI) $E_n = \frac{-Ryhc}{n^2}$ et $r_n = a_0 n^2$, avec Ry la constante de Rydberg ($\frac{m_e q_e^4}{8\epsilon_0^2 h^3 c} \approx 109737 \text{cm}^{-1}$), h la constante de Planck, c la vitesse de la lumière dans le vide, a_0 le rayon de Bohr, m_e la masse de l'électron, q_e la charge de l'électron, ϵ_0 la constante diélectrique. On fera attention à différencier q_e de $e^2 = q_e^2 / (4\pi\epsilon_0)$. Plusieurs ouvrages donnent des informations détaillées sur les atomes de Rydberg [Gallagher, 1994], sur la physique atomique [Friedrich, 1998] ainsi que la thèse de [Fabre, 1980] dans laquelle les calculs les propriétés des atomes de Rydberg sont détaillées. Nous allons donner au paragraphe 1.2 un aperçu de ces propriétés qui ont fait l'objet d'un cours donné par T.F. Gallagher au Laboratoire Aimé Cotton en 2008 dans le cadre d'une chaire de l'IFRAF. Le paragraphe 1.3 précise les propriétés de longue durée de vie des atomes de Rydberg. Avec le paragraphe 1.4 nous abordons les interactions entre atomes de Rydberg qui en l'absence de champ extérieur sont de type van der Waals. Nous rappelons au paragraphe 1.5 les propriétés liées à l'effet Stark des atomes de Rydberg en considérant le cas de l'état p essentiellement couplé à l'état d . Nous donnons dans ce paragraphe une rapide définition de l'effet de blocage dipolaire qui est l'objet central de cette thèse. Dans le paragraphe 1.6 nous rappelons le principe

de détection par ionisation sélective par champ électrique des atomes de Rydberg. Nous abordons finalement le transfert résonant d'énergie entre deux atomes de Rydberg dans le paragraphe 1.7, que l'on qualifie de résonance de Förster.

1.2 Fonctions d'ondes, niveaux d'énergie

Pour les atomes alcalins comme pour l'atome d'hydrogène le potentiel est principalement coulombien. A courte distance cependant, le potentiel dévie du potentiel coulombien. Nous commençons par diviser l'espace en deux régions. Une région interne, $0 \leq r \leq r_0$, avec r la distance de l'électron de valence au noyau, où les interactions entre électrons sont compliquées à résoudre et une région externe $r_0 \leq r \leq \infty$ où le potentiel est purement coulombien $V(r) \propto 1/r$ (r_0 est de l'ordre de grandeur de la taille du cœur).

La mesure de l'énergie de liaison d'un électron est donnée relativement au seuil d'ionisation en unités atomiques par $E_n = -0.5/\nu^2$. L'équation de Schrödinger pour l'électron de valence s'écrit

$$\left(\frac{\nabla^2}{2} + V\right)\psi(r, \theta, \phi) = -W\psi(r, \theta, \phi) \quad (1.1)$$

la solution est séparable en une partie angulaire et une partie radiale et prend la forme $\psi(r, \theta, \phi) = R(r)Y_{lm}(\theta, \phi)$ et $\rho(r) = R(r)$ est solution de l'équation de Coulomb [Abramowitz and Stegun, 1968]

$$\frac{\partial^2 \rho}{\partial r^2} + \left(2W - 2V - \frac{l(l+1)}{r^2}\right)\rho = 0 \quad (1.2)$$

Lorsque $r > r_0$ il y a deux solutions analytiques appelées fonctions de Coulomb, dites régulière et irrégulière, $f(\nu, r)$ et $g(\nu, r)$. Pour de petites valeurs de r , elles tendent vers

$$f(\nu, r) \rightarrow r^{l+1} \quad (1.3)$$

$$g(\nu, r) \rightarrow r^{-l} \quad (1.4)$$

La solution générale pour $r > r_0$ est une combinaison linéaire de $f(\nu, r)$ et $g(\nu, r)$ dont les coefficients sont déterminés par les conditions aux limites, en r_0 et à l'infini (voir [Starace, 1976])

$$\psi(\nu, r) \approx f(\nu, r) \cos(\pi\mu) - g(\nu, r) \sin(\pi\mu) \quad (1.5)$$

μ étant la phase relative entre la solution régulière et la solution irrégulière. Il faut que la solution $\psi(\nu, r)$ tende vers 0. En considérant le comportement asymptotique des fonctions de Coulomb ($r \rightarrow \infty$)

$$f(\nu, r) \rightarrow u(\nu, r) \sin(\pi\nu) - v(\nu, r) \exp(i\pi\nu) \quad (1.6)$$

$$g(\nu, r) \rightarrow -u(\nu, r) \cos(\pi\nu) + v(\nu, r) \exp(i\pi\nu + 1/2) \quad (1.7)$$

avec $u(\nu, r)$ une fonction exponentielle croissante et $v(\nu, r)$ une fonction exponentielle décroissante.

On a donc $\psi(\nu, r) \rightarrow u(\nu, r) \sin(\pi(\nu + \mu))$ qui tend vers 0, ce qui donne $\nu + \mu = n$ avec n entier. On obtient alors $\nu = n - \mu = n^*$ et l'énergie de l'électron s'écrit $E_n = \frac{-1}{2(n-\mu)^2} = \frac{-1}{2(n^*)^2}$ avec μ le défaut quantique.

Le défaut quantique déduit de l'expérience permet alors de calculer les énergies des niveaux de Rydberg. Le défaut quantique peut être retrouvé par la formule de Ritz [Gallagher, 1994],

$$\delta_{nlj} = \delta_0(lj) + \frac{\delta_2(lj)}{(n - \delta_0(lj))^2} + \dots \quad (1.8)$$

Les tables 1.1 et 1.2 contenant les paramètres expérimentaux sont donnés pour le césium et le rubidium.

Série Cs	δ_0	δ_2	δ_0	δ_2
<i>référence</i>	[Goy et al., 1982]		[Weber and Sansonetti, 1987]	
<i>ns</i>	4,049 325	0,246 2	4.049 356 65	0.237 703 7
<i>np_{1/2}</i>	3,591 556	0,371 4	3.591 589 50	0.360 926
<i>np_{3/2}</i>	3,559 058	0,374 0		
<i>nd_{3/2}</i>	2,475 365	0,555 4		
<i>nd_{5/2}</i>	2,466 210	0,067 0	2.466 315 24	0.013 577
<i>nf_{5/2}</i>	0,033 392	-0,191	0.033 414 24	-0.198 674
<i>nf_{7/2}</i>	0,033 537	-0,191		
<i>ng_{7/2}</i>			0.007 038	-0.049 252

TABLE 1.1 – Défauts quantiques expérimentaux du césium 133.

Série Rb	δ_0	δ_2
<i>référence</i>	[Li et al., 2003]	
<i>ns</i>	3.137 180 4	0.1784
<i>np_{1/2}</i>	2.654 884 9	0.290 0
<i>np_{3/2}</i>	2.641 673 7	0.295 0
<i>nd_{3/2}</i>	1.348 091	-0.602 86
<i>nd_{5/2}</i>	1.346 465 72	-0.596 00
<i>référence</i>	[Han et al., 2006]	
<i>nf_{5/2}</i>	0,0165192	-0,085
<i>nf_{7/2}</i>	0,0165437	-0,086

TABLE 1.2 – Défauts quantiques expérimentaux du rubidium 85.

Vision classique

Plusieurs ouvrages traitent des propriétés semi-classique des atomes de Rydberg [Fabre, 1980],[Gürtler, 2003]. Nous donnons ici un aperçu des atomes de Rydberg en terme de trajectoire. C'est le modèle le plus proche du modèle planétaire (à un corps) de l'atome de Bohr.

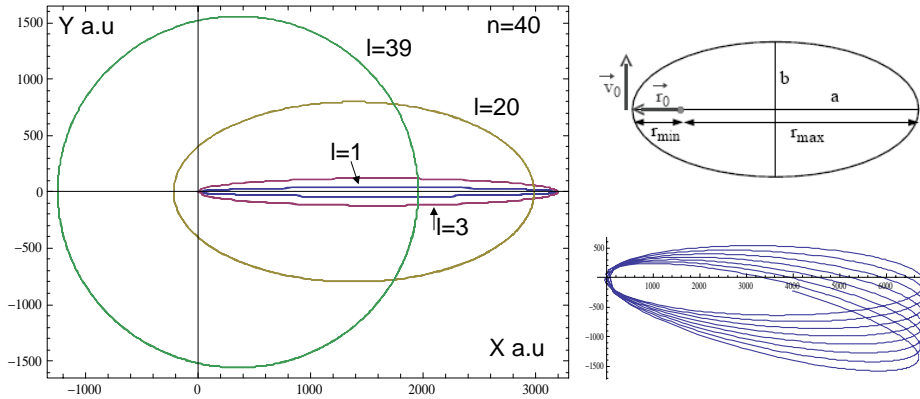


FIGURE 1.1 – Orbites de Kepler tracées pour $n=40$, $l=1,3,20,39$. L'ellipse est paramétrée par les nombres quantiques n et l avec $a = n^2$ (rayon classique), $b = al/n$ (quantification de Bohr Sommerfeld $l=n\hbar$). Les conditions initiales sont données au point tournant interne par $r_{min} = a - \sqrt{a^2 - b^2}$ (le cœur est à l'un des foyers de l'ellipse avec $c = \sqrt{a^2 - b^2}$ la distance du centre au foyer) et $v_0 = \sqrt{2(-1/2n^2 + 1/r_{min})}$ (différence d'énergie cinétique entre a et r_{min}). En bas à droite nous avons introduit un terme constant dans l'exposant de la formule 1.9 destiné à rendre compte du déphasage de l'orbite par le cœur (potentiel non coulombien). Il y a rotation de l'axe de l'orbite qui reste elliptique et precesse.

Nous pouvons décrire les orbites fermées, d'énergie négative E , de l'électron autour du cœur par des orbites de Kepler. Les solutions sont alors des ellipses. L'équation du mouvement s'écrit simplement en considérant un potentiel coulombien

$$\frac{\partial^2 \vec{r}}{\partial t^2} = -\frac{\vec{r}}{r^3} \quad (1.9)$$

Plusieurs orbites sont tracées sur la figure 1.1. On voit notamment que les orbites des états de grand moment angulaire ne passent pas près du cœur et ne sont donc pas très perturbées par celui-ci. Les orbites des états de faible moment angulaire sont très allongées. L'électron passe au travers du nuage électronique du cœur et se trouve déphasé, d'où l'introduction du défaut quantique.

La trajectoire classique de l'électron est elliptique et dépend du moment angulaire l . Lorsque celui ci est faible la trajectoire classique décrit une ellipse très allongée autour du cœur positif. En revanche pour des moments angulaires proche de leur valeur maximale ($l = (n - 1)$) la trajectoire classique est proche d'un cercle et ces états sont dit circulaires. A faible valeur de l la trajectoire de l'électron pénètre dans le cœur et va être diffusé par les charges de celui-ci. A grande valeur de l l'électron ne traverse pas le cœur, la structure et l'espacement des niveaux est hydrogénoïde. Ces différences de trajectoire sont importantes et la diffusion par le cœur donne lieu à une correction des niveaux d'énergie des atomes en fonction de n et l et noté δ_{nl} , le défaut quantique [Seaton, 1983].

La période d'une orbite de Kepler T_K fournit une loi d'échelle en fonction de n , à savoir T_K^2/a^3 est constant (loi des périodes), avec $a=n^2$ le demi grand axe de l'ellipse. On a alors $T_K \approx n^3$. Nous voyons que l'électron passe la plupart de son temps loin du cœur, il est alors quasi libre. Comme le temps passé près du cœur ne dépend pas de n ,

l'excitation d'un état donné vers un état de Rydberg est inversement proportionnel à la période de son orbite et varie en n^{-3} . Il en va de même pour la désexcitation radiative dont le taux varie en n^{-3} .

Comme on peut s'y attendre les atomes de Rydberg étant de grande extension spatiale (le rayon de l'orbite classique est proportionnelle à $n^2 a_0$), les processus collisionnels vont donc croître comme la surface de l'orbite de l'électron excité, à savoir en n^4 . Ce facteur d'échelle ne peut être atteint que lorsque les interactions se font à portées plus grandes que la taille de l'atome de Rydberg pour que la particule qui entre en collision avec l'atome de Rydberg voit celui-ci en totalité. Dans le cas contraire la particule à une probabilité moindre de voir l'électron de valence car celui-ci doit occuper un plus grand volume que dans son état fondamental. Pour donner un exemple, il est possible de mettre en évidence la localisation de paquets d'ondes se propageant sur une orbite quasi circulaire sur plusieurs périodes autour du cœur atomique [Mestayer et al., 2008].

1.3 Durée de vie radiative

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

$$A_{n'l',nl} = \frac{4e^2 \omega_{nl,n'l'}^3}{3\hbar c^3} \frac{\max(l, l')}{2l+1} (R_{nl}^{n'l'})^2 \quad (1.10)$$

où $\omega_{nl,n'l'}$ est la fréquence associée à la transition entre les états nl et $n'l'$ et $R_{nl}^{n'l'}$ est l'intégrale radiale.

$$R_{nl}^{n'l'} = \int_0^\infty r^3 \mathcal{U}_{nlj}(r) \mathcal{U}_{n'l'j'}(r) dr \quad (1.11)$$

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

La durée de vie radiative d'un état Rydberg est l'inverse de la somme des taux de désexcitation vers les niveaux inférieurs :

$$\tau_{nl} = \left(\sum_{n'l'} A_{nl \rightarrow n'l'} \right)^{-1} \quad (1.12)$$

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

$$\tau_{nl} = \tau_0 (n^*)^\beta \quad (1.13)$$

Les paramètres τ_0 et β sont donnés pour les atomes de césium et de rubidium dans le tableau suivant [Gallagher, 1994] :

L'une des caractéristiques principales des états de Rydberg est leur grande durée de vie, en n^3 pour les états de faible moment angulaire et n^5 pour les états quasi circulaire. Une conséquence pour l'expérience est que la largeur de chaque niveau est ainsi de plus en plus réduite à mesure que l'on cherche à former des atomes très excités. Cependant la puissance laser disponible dans une bande de plus en plus étroite de fréquence réduit

	<i>s</i>	<i>p</i>	<i>d</i>	<i>f</i>
Cs $\tau_0(\times 10^{-9} \text{ s})$	1,43	4,42	0,96	0,69
Cs β	2,96	2,94	2,93	2,94
Rb $\tau_0(\times 10^{-9} \text{ s})$	1,43	2,76	2,09	0,76
Rb β	2,94	3,02	2,85	2,95

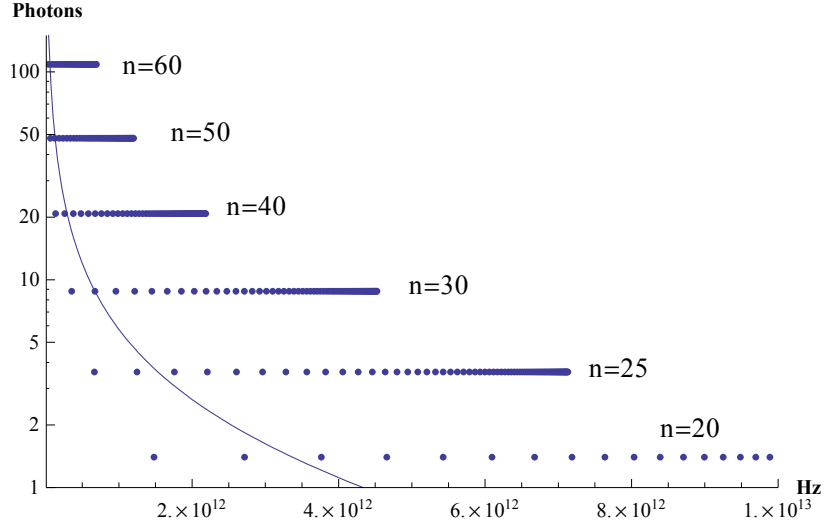


FIGURE 1.2 – Nombre d’occupation des photons du rayonnement thermique en fonction de leur fréquence. Nous indiquons également la position des transitions entre des états np donné vers les états $n's$ du césium, n' variant de n à 100 (de gauche à droite). Notons que les transitions entre états de n voisins se trouvent à des fréquences de plus en plus faible à mesure que n augmente, et qu’il y a également une augmentation du nombre de photons du rayonnement thermique.

la puissance utile. Il en découle qu’expérimentalement il est nécessaire d’augmenter la puissance du laser d’excitation lorsqu’on souhaite maintenir constante la probabilité d’excitation.

1.3.1 Influence du rayonnement du corps noir

Les expériences faites avec des atomes dans des états de Rydberg montrent que la durée de vie des atomes est en effet notablement plus courte que ne le prévoit les calculs. [Gallagher and Cooke, 1979] ont montré qu’il faut prendre en compte l’effet des photons du rayonnement thermique afin de comprendre la diminution de temps de vie des atomes de Rydberg. Nous représentons sur la figure 1.2 la correspondance entre l’énergie des photons du corps noir et la position des états de Rydberg.

Le taux de relaxation par les photons du corps noir est simplement donnée par le produit du coefficient d’émission spontanée par le nombre moyen de photons à la fréquence ν soit, $\bar{n}A_{nl}$, avec $\bar{n} = \frac{1}{e^{h\nu/kT} - 1}$. Ce taux dépend de n comme

$$\frac{1}{\tau_{nl}^{cn}} \approx \frac{4\alpha^3 k_B T}{3n^{*2}} \approx 6,79 \times 10^4 \frac{T}{n^{*2}} \quad (s^{-1}) \quad (1.14)$$

où α est la constante de structure fine et T la température en degrés kelvin. Les atomes sont alors principalement redistribués vers des états voisins. La durée de vie d'un atome de Rydberg est alors donnée par

$$\frac{1}{\tau_{nl}^{tot}} = \frac{1}{\tau_{nl}} + \frac{1}{\tau_{nl}^{cn}} \quad (1.15)$$

La conclusion est que les durées de vie sont fortement réduite par la desexcitation des états de Rydberg sous l'effet des photons du corps noir. Nous verrons dans le chapitre 4 que les photons du corps noir peuvent également photo-ioniser les atomes de Rydberg.

1.4 Interactions entre atomes de Rydberg

L'énergie d'interaction électrostatique entre deux dipôles atomiques s'écrit

$$V_{dd} = \frac{1}{4\pi\epsilon_0 R^3} (\vec{\mu}_a \vec{\mu}_b - 3(\vec{\mu}_a \vec{n})(\vec{\mu}_b \vec{n})) \quad (1.16)$$

avec $\vec{\mu}$ le dipôle électrique d'un atome et \vec{n} le vecteur unitaire selon la direction internucléaire. En prenant Oz selon l'axe internucléaire on réécrit

$$V_{dd} = \frac{e^2}{R^3} (X_A X_B + Y_A Y_B - 2Z_A Z_B) \quad (1.17)$$

avec $e^2 = q_e^2/(4\pi\epsilon_0)$. L'hamiltonien du système s'écrit $H = H_a + H_b + V_{dd}$, où H_a et H_b sont les énergies des atomes A et B pris isolément. Lorsqu'une interaction est présente il s'agit alors de déterminer le déplacement du niveau d'énergie du système. On le calcule en utilisant la théorie des perturbations stationnaires [Cohen-Tanoudji et al., 2000], tant que V_{dd} reste plus petit devant H_a, H_b .

Effets du premier ordre

Au premier ordre la correction d'énergie s'écrit

$$V_{dd}^{(1)} = \langle \varphi_a, \varphi_b | V_{dd} | \varphi_a, \varphi_b \rangle \quad (1.18)$$

avec φ l'état propre d'un atome a ou b. Cette correction est nulle dans un état stationnaire de l'atome ($\varphi_a = \varphi_b$) car les opérateurs positions sont impairs (les valeurs moyennes des composantes de l'opérateur position sont nulles).

$V_{dd}^{(1)}$ est non nul lorsque un état de l n'est plus pur, c'est à dire lorsque qu'un couplage met l'état de l'atome dans une superposition d'états purs (par exemple par application d'un champ électrique).

$V_{dd}^{(1)}$ est également non nul lorsque $|\varphi_a, \varphi_b\rangle$ est non isolé, a : φ_1 , b : φ_2 dégénéré avec a : φ_2 , b : φ_1 . Dans ce cas on a les termes croisés $|\varphi_a, \varphi_b\rangle = (|\varphi_1(a), \varphi_2(b)\rangle + |\varphi_2(a), \varphi_1(b)\rangle) / \sqrt{2}$.

Dans ce cas l'interaction garde sa forme en C^3/R^3 , ou encore en n^4/R^3 , à l'aide d'une loi d'échelle sur les moments dipolaires de transition (n est le nombre quantique principal).

On remarque que l'interaction 3.3 est alors la même que celle calculée classiquement entre deux dipôles permanents [Jackson, 1998]. Il faut bien sûr calculer les moments dipolaires de transition par la méthode décrites plus haut. Nous dirons d'une interaction au premier ordre qu'elle est de type dipôle-dipôle.

Effets du second ordre

Dans le cas où l'effet de l'interaction est nulle au premier ordre nous calculons la correction d'ordre 2 à l'énergie qui s'écrit

$$V_{dd}^{(2)} = \sum_{a', b' \neq a, b} \frac{|\langle \varphi_{a'}, \varphi_{b'} | V_{dd} | \varphi_a, \varphi_b \rangle|^2}{E_a + E_b - (E_{a'} + E_{b'})} \quad (1.19)$$

avec des termes non nuls uniquement pour $l_a = l_b \pm 1$. Nous notons la différence d'énergie $\Delta = E_a + E_b - (E_{a'} + E_{b'})$. Celle ci varie comme $1/n^3$.

L'interaction à une forme en $-C^6/R^6$, ou encore en $n^8/(\Delta R^6)$ soit n^{11}/R^6 , à l'aide d'une loi d'échelle sur les moments dipolaires de transition

Nous dirons d'une interaction au second ordre qu'elle est de type van der Waals.

1.5 Effet Stark

La principale interaction qui nous servira dans la suite de ce manuscrit est obtenue par application d'un champ électrique constant dans la zone qui contient les atomes. La présence de ce champ électrique lève la dégénérescence des niveaux atomiques en induisant des couplages entre ces états, c'est l'effet Stark.

1.5.1 Diagonalisation du Hamiltonien Stark

Nous décrivons ici la méthode générale donnée dans [Zimmerman et al., 1979] pour calculer le diagramme Stark d'alcalins.

Les éléments de matrice dipolaire sont calculés en utilisant le théorème de Wigner-Eckart qui permet d'exprimer le facteur angulaire par séparation successive des états quantiques de la base. En suivant [Steck, 2004], on peut dans un premier temps séparer les m_j , ce qui fait apparaître un couplage de 2 moments cinétiques (3-j)

$$\langle n, l, j, m_j | R_q | n', l', j', m_{j'} \rangle = (-1)^{j-m_j} \begin{pmatrix} j & 1 & j' \\ -m_j & q & m_{j'} \end{pmatrix} (n, l, j || r || n', l', j') \quad (1.20)$$

Le terme 3-j entre parenthèse doit vérifier $|j-1| \leq j' \leq j+1$ et $m_{j'} + m_j = q$ pour être non nul.

L'élément réduit est à son tour exprimé en séparant les j (et s), faisant apparaître un couplage de 3 moments cinétiques (6-j)

$$(n, l, j || r || n', l', j') = (-1)^{j'+l+s+1} \sqrt{(2j+1)(2j'+1)} \begin{Bmatrix} l & l' & 1 \\ j' & j & s \end{Bmatrix} (n, l || r || n', l') \quad (1.21)$$

On peut enfin séparer n ($3-j$) et exprimer ce dernier élément réduit en fonction de l'intégrale radiale $R_{nlj}^{n'l'j'}$

$$(n, l || r || n', l') = (-1)^l \langle 10 | l' 0 10 \rangle \sqrt{2l' + 1} \times R_{nlj}^{n'l'j'} = (-1)^{\max(l, l') + l} \sqrt{\max(l, l')} \times R_{nlj}^{n'l'j'} \quad (1.22)$$

Dans toute la suite nous assimilerons le moment dipolaire noté μ à l'élément de matrice dipolaire 1.20.

L'ensemble de ces calculs est implémenté dans un programme écrit en Fortran77 codé initialement par J.M. Lecomte puis A. Bleton et L. Pruvost que nous avons légèrement modifié. Nous l'utilisons pour calculer les moments dipolaires de transitions (jusqu'à présent avec $m_j = |1/2|$) et les diagrammes Stark. Ces derniers sont obtenus par diagonalisation d'une matrice contenant l'ensemble des énergies et des couplages entre niveaux sélectionnés au départ. Les intégrales radiales (voir 1.11) sont calculées dans l'approximation de Coulomb par la méthode de Numerov, c'est à dire par résolution numérique de l'équation de Schrödinger pour la partie radiale de la fonction d'onde, en incluant les valeurs de défaut quantique de chaque état connu expérimentalement.

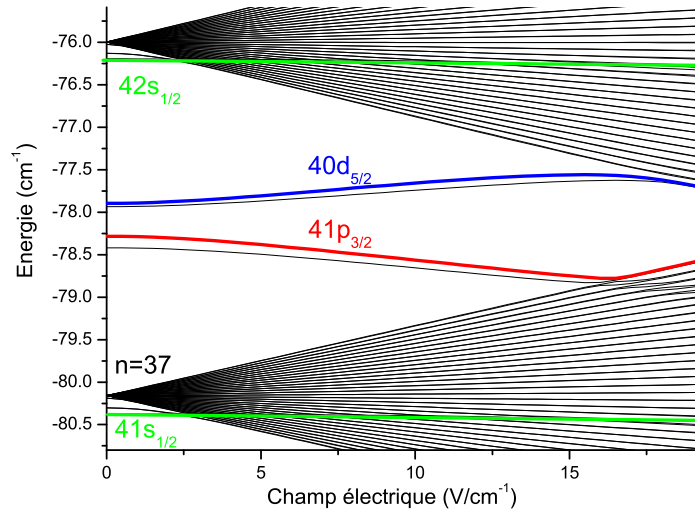


FIGURE 1.3 – Diagramme stark du césium ($|m_j| = 1/2$) faisant apparaître les multiplicités de niveaux de nombre quantique principal $n=37$ à $n=38$. Les autres états, s , p , d , f et g ayant des défauts quantiques non nuls (les états f et g de défauts quantiques quasi nuls sont placés juste sous la multiplicité). Les états p et d très proches en champ nul se repoussent par effet Stark. Les états qui gagnent de l'énergie en champ sont dits 'états bleus' (plus liés), alors que les états qui perdent de l'énergie en champ sont dits 'états rouges' (moins liés)

Nous voyons sur les diagrammes Stark 1.3 que les niveaux de Rydberg ont un comportement qui dépend de l'intensité du champ électrique appliqué. A faible valeur du champ la pente est quadratique puis elle devient linéaire pour des valeurs plus importantes. Notons que le premier croisement (entre l'état le plus rouge de la multiplicité, dont le potentiel décroît lorsque le champ électrique appliqué croît, et l'état le plus bleu de la multiplicité inférieure, dont le potentiel croît lorsque le champ électrique ap-

pliqué croît) apparaît pour un champ, en unité atomique, $F = \frac{1}{3n^5}$ (ce qui correspond à un déplacement Stark de l'ordre de grandeur de l'intervalle entre niveaux de Rydberg consécutifs)¹ est appelée limite Inglis-Teller.

Couplage à deux niveaux

Considérons à présent les états $np_{3/2}$ et $(n-1)d_{5/2}$ (comme nous excitons les atomes dans l'état np nous indiquons ici le couplage le plus important accessible). Cela nous permettra de simplifier l'approche calculatoire.

La diagonalisation de la matrice d'interaction avec Δ la différence d'énergie entre E_p et E_d et μ_{pd} le dipôle de transition correspondant, conduit à écrire (voir 1.20, on considère uniquement $|m_j| = 1/2$),

$$\begin{pmatrix} E_p & -\mu_{pd} \\ -\mu_{pd} & E_d \end{pmatrix} \quad (1.23)$$

les valeurs propres s'écrivent

$$E_{|np(F)\rangle} = \frac{E_{|np\rangle} + E_{|nd\rangle}}{2} - \frac{\Delta}{2} \sqrt{1 + (\tan \theta)^2} \quad (1.24)$$

$$E_{|nd(F)\rangle} = \frac{E_{|np\rangle} + E_{|nd\rangle}}{2} + \frac{\Delta}{2} \sqrt{1 + (\tan \theta)^2} \quad (1.25)$$

avec $\tan(\theta) = \frac{-\mu_{pd}F}{\Delta/2}$. Les états propres sont

$$|np(F)\rangle = \cos\left(\frac{\theta}{2}\right)|np\rangle - \sin\left(\frac{\theta}{2}\right)|nd\rangle \quad (1.26)$$

$$|nd(F)\rangle = \cos\left(\frac{\theta}{2}\right)|nd\rangle + \sin\left(\frac{\theta}{2}\right)|np\rangle \quad (1.27)$$

On remarque que la projection de l'état np en champ $|np(F)\rangle$ sur l'état $|nd\rangle$ est non nulle, ce qui va nous permettre d'écrire le terme d'interaction entre deux états d'un atome en présence du champ au premier ordre dipôle-dipôle,

$$V_{|np(F)\rangle, |np(F)\rangle} = (\sin \theta)^2 \frac{\mu_{pd}^2 (1 - 3 \cos^2 \Theta)}{R^3} \quad (1.28)$$

Avec Θ l'angle entre l'axe de quantification (les dipôles sont alignés sur cet axe en présence du champ électrique) et l'axe internucléaire.

1.5.2 Application aux états moléculaires

Dans les chapitres suivant nous verrons que la description expérimentale de l'interaction dipolaire entre atomes de Rydberg sera faite en utilisant ces résultats.

La nature de l'interaction entre deux atomes pour lesquels le décalage en énergie Δ est non nul à l'infini va dépendre de la distance qui les séparent. La référence [Li et al.,

1. On considère que les états Stark sont linéaires en champ électrique $E = \pm 3n^2 F/2$ et que la différence d'énergie à champ nul est $1/n^3$.

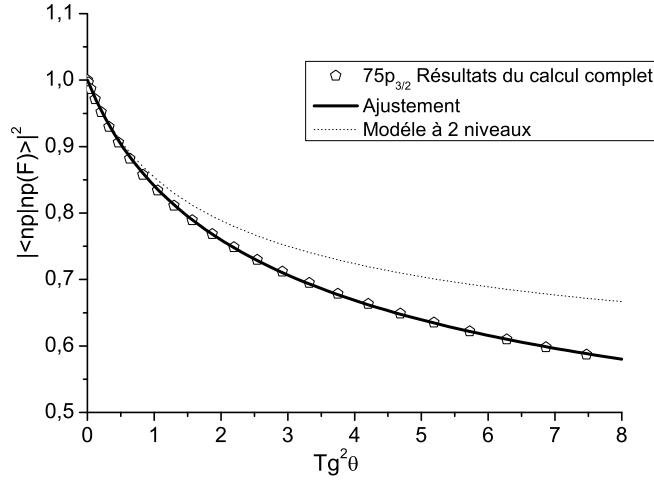


FIGURE 1.4 – Projection $|\langle 75p_{3/2}|75p_{3/2}(F)\rangle|^2$ de l'état $75p_{3/2}(F)$ sur l'état non perturbé $75p_{3/2}$. Le résultat du calcul complet, obtenu par la méthode numérique décrite précédemment, est comparé au modèle à 2 niveaux (en $\cos^2(\theta/2)$). Le paramètre $\tan^2(\theta)$ permet d'obtenir une variation valable pour tout n . L'ajustement est une série en puissance de $\sin^2(\theta)$ qui reproduit bien le couplage en champ électrique, voir [Vogt, 2006].

2004] traite entre autre de cet effet.

Il ressort notamment de cette description des interactions que le caractère dipôle-dipôle en C_3/R^3 est présent lorsque les atomes sont dans des états de parités opposées, par exemple s et p , ils forment deux états moléculaires sp et ps qui sont couplés et sont séparés de $\pm\mu^2/R^3$ pour une distance internucléaire R . En effet il suffit de diagonaliser la matrice d'interaction dans la base $|sp\rangle, |ps\rangle$, avec E_{ps} l'énergie de la paire ps et V_{dd} l'interaction dipôle-dipôle en μ^2/R^3 soit

$$\begin{pmatrix} E_{ps} & V_{dd} \\ V_{dd} & E_{ps} \end{pmatrix} \quad (1.29)$$

qui a pour valeurs propres

$$E_{ps} \pm \mu_{sp}^2/R^3 \quad (1.30)$$

et pour vecteurs propres $|sp\rangle \pm |ps\rangle$. Dans cette base on remarque que l'interaction est symétrique de part et d'autre de E_{ps} , une détection appropriée permettrait de sonder les états \pm . On remarque l'analogie directe avec l'effet Autler-Townes. Il est possible de rendre des niveaux résonnants par le contrôle expérimental d'un seul paramètre, le champ électrique.

Considérons à présent une paire d'atomes dans l'état dd couplé à une paire d'atomes dans l'état pf par l'interaction dipôle-dipôle (voir figure 1.5). Ces systèmes ne sont pas dégénérés et, à l'infini (donc sans interactions) ils sont séparés d'une énergie Δ . Nous diagonalisons la matrice d'interaction dans la base $|dd\rangle, |pf\rangle$, avec E_{dd} (E_{pf}) l'énergie de la paire dd (resp. pf) et V_{dd} l'interaction dipôle-dipôle en $\mu_{dp}\mu_{df}/R^3$. Prenons l'origine des énergies en E_{dd} .

On a

$$\begin{pmatrix} 0 & V_{dd} \\ V_{dd} & \Delta \end{pmatrix} \quad (1.31)$$

qui a pour valeurs propres

$$E_{dd} = \frac{\Delta \pm \sqrt{\Delta^2 + 4V_{dd}^2}}{2}. \quad (1.32)$$

Dans le cas où $V_{dd} \ll \Delta$ (à grande distance), l'énergie associée à chaque état moléculaire répulsif ou attractif est déplacée d'une quantité $\pm V_{dd}^2/\Delta$. Puisque Δ varie comme δ/n^3 (où δ est le défaut quantique effectif) l'interaction varie comme n^{11}/R^6 . On reconnaît dans ce cas l'interaction de type van der Waals.

Nous pouvons cependant définir une distance en deçà de laquelle $V_{dd} \ll \Delta$ n'est plus valide. Cela se produit lorsque le couplage dipolaire V_{dd} devient inférieur au décalage Δ ($V_{dd} \propto n^4/R^3 < \Delta \propto \delta/n^3$), qui conduit à la distance interatomique R_{vdW} dont la dépendance avec n varie comme $(n^7/\delta)^{1/3}$. Les valeurs propres de l'hamiltonien du système sont alors données approximativement par $E_{1,2} = \pm V_{dd}$. L'interaction prend un caractère dipôle-dipôle en C_3/R^3 , et le déplacement des niveaux varie comme n^4/R^3 . On remarque que l'interaction de paires d'atomes non dégénérés à l'infini décale l'énergie de transition de la paire dd uniquement vers le rouge (voir figure 1.6).

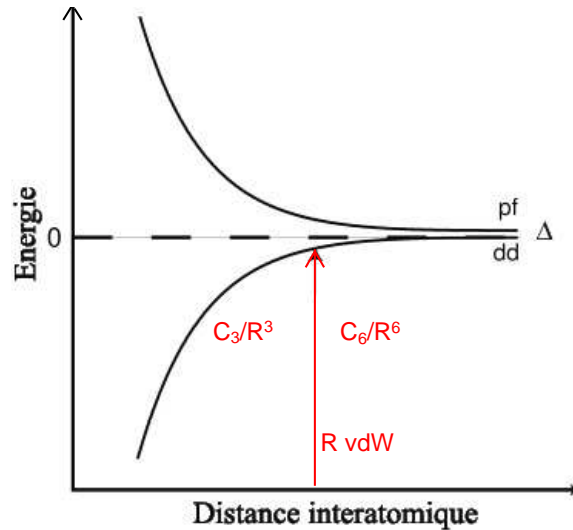


FIGURE 1.5 – Cas van der Waals. Etats moléculaires couplés entre des états dd et pf . La nature de l'interaction entre les deux atomes, qui sont décalés à l'infini de Δ , dépend de la distance interatomique. Pour des grandes distances, où le décalage est plus grand que le couplage dipolaire, l'interaction est de type Van der Waals, en $1/R^6$. Pour de faibles distances interatomiques, le couplage dipolaire est plus grand que le décalage et l'interaction est de type dipôle-dipôle en $1/R^3$. La position pour laquelle le couplage dipolaire est égal au décalage, $V = \mu_1\mu_2/R^3 = \Delta$ est indiquée sur la figure par une flèche.

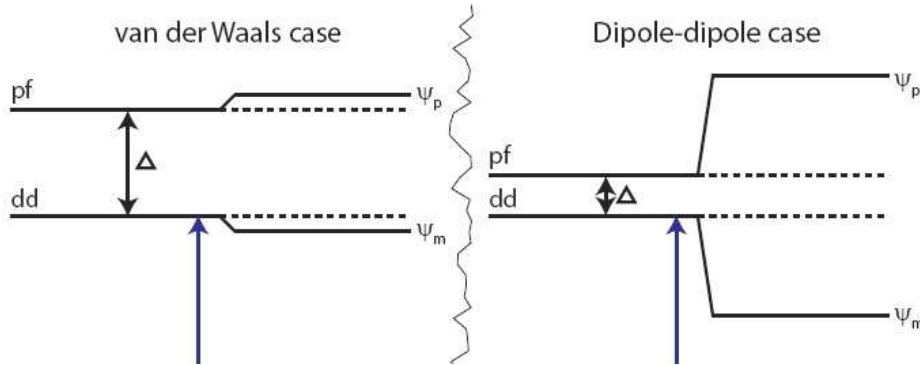


FIGURE 1.6 – Les cas van der Waals et dipôle-dipôle sont représentés sur cette figure. À gauche, cas van der Waals, le couplage entre paires est plus faible que le décalage entre niveaux d'énergie des paires. À droite, cas dipôle-dipôle, le couplage est plus important que le décalage entre niveaux d'énergie des paires.

1.5.3 Blocage dipolaire de l'excitation

Le blocage dipolaire de l'excitation qui est lié au déplacement des niveaux causé par l'interaction dipôle-dipôle peut être défini comme la diminution de la probabilité d'excitation d'atomes de l'état fondamental vers l'état Rydberg causée par l'interaction avec un ou des atomes déjà excités, dans le cas où la largeur spectrale associée à la séquence d'excitation est inférieure au déplacement des niveaux de Rydberg induit par l'interaction. L'observation du blocage dipolaire va dépendre en partie de la résolution spectroscopique de l'excitation.

Cet effet est mis à profit pour réaliser une excitation conditionnelle dans le cas de deux atomes comme nous le décrirons dans le prochain chapitre, un exemple est donné sur la figure 1.7.

1.6 Détection

Dans la plupart des expériences, les atomes de Rydberg sont détectés par ionisation, ce qui implique une destruction de l'échantillon. Cependant cette méthode à l'avantage de discriminer les états de Rydberg en fonction de leur énergie de liaison, donc de leur état interne.

1.6.1 Détection par ionisation par champ électrique

En combinant le champ coulombien vu par l'électron et un champ électrique statique, le potentiel vu par l'atome d'hydrogène en unité atomique, $V = \frac{1}{r} + Fr$, admet un maximum à $r = -1/\sqrt{F}$ qui vaut $V = -2\sqrt{F}$ (voir figure 1.8). Le champ classique nécessaire pour extraire l'électron lié par une énergie potentielle définie par $E_p = 1/2n^2$ vaut $F = E_p^2/4 = \frac{1}{16n^4}$. Dans notre expérience le champ d'ionisation est appliqué via une rampe de champ électrique, et son niveau d'énergie évolue. Si l'on considère un déplacement Stark linéaire du niveau le plus rouge on a $V = \frac{1}{2n^2} - \frac{3n^2F}{2}$ ce qui implique

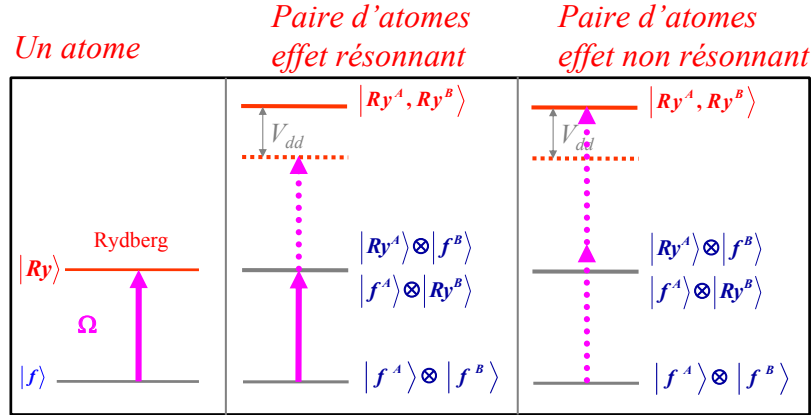


FIGURE 1.7 – Schéma du blocage dipolaire, vision à un et deux atomes. Un laser est résonant avec la transition entre l'état fondamental et l'état de Rydberg, l'atome est excité vers l'état de Rydberg. Lorsqu'on considère deux atomes et le laser à la fréquence de transition sans interaction, un premier atome est excité, la fréquence du laser est non résonante avec la transition du deuxième atome, ceci à condition que la largeur spectrale du laser soit inférieure au décalage causé par l'interaction. En considérant les fréquences hors résonance avec la transition atomique, un processus à deux photons peut exciter la paire d'atome sur le niveau doublement Rydberg et limiter le blocage dipolaire (voir plus loin l'expérience de [Raimond et al., 1981]).

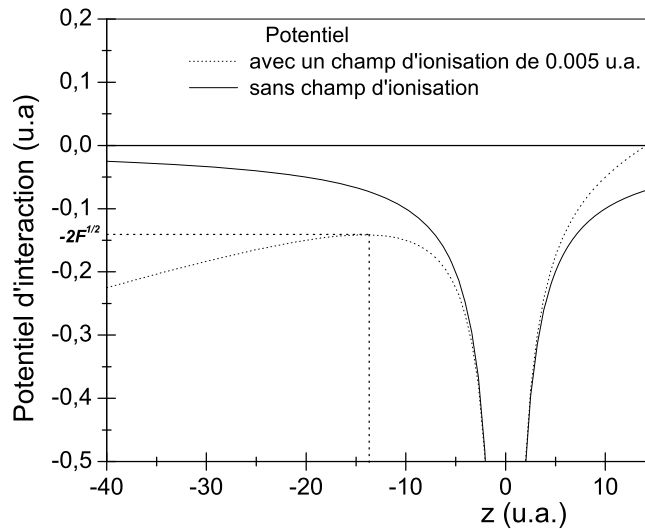


FIGURE 1.8 – Potentiel vu par l'atome avec et sans champ électrique externe.

un champ d'ionisation $F = 1/9n^4$.

Le diagramme Stark permet de se rendre compte que l'état de l'atome traverse plusieurs croisements évités qui sont dus aux couplages entre états. Chaque croisement peut être traversé adiabatiquement ou diabatiquement selon la largeur du croisement évité et la vitesse à laquelle on le traverse. Ainsi on se rend compte qu'à champ relativement faible, les premiers croisements peuvent être traversés adiabatiquement à une certaine vitesse alors qu'à champ plus important la largeur des croisements évités est plus faible et la même vitesse va plutôt induire une traversée diabatique de ces croisements. La probabilité de traverser un croisement évité diabatiquement se calcule en utilisant la formule Landau-Zener :

$$P_{diab} = \exp\left(-\frac{2\pi(\Delta E)^2}{\hbar dE_{1,2}/dt}\right) \quad (1.33)$$

où ΔE est la séparation énergétique au niveau de croisement évité, $dE_{1,2}/dt$ peut se réécrire sous la forme

$$dF/dt \times |dE_1/dF - dE_2/dF| \quad (1.34)$$

où dE/dF est la variation du déplacement Stark en fonction du champ électrique entre les deux états 1 et 2 et dF/dt la pente de la rampe de champ électrique. A partir de l'équation (1.33), on comprend que pour des rampes de champ électrique lentes ($dE/dt < \Delta E^2$) le passage du croisement évité sera adiabatique ; par contre, pour des rampes rapides, le passage sera diabatique (voir Fig. 1.9). Dans notre cas une rampe de l'ordre de la microseconde nous assure un passage plutôt adiabatique du croisement évité.

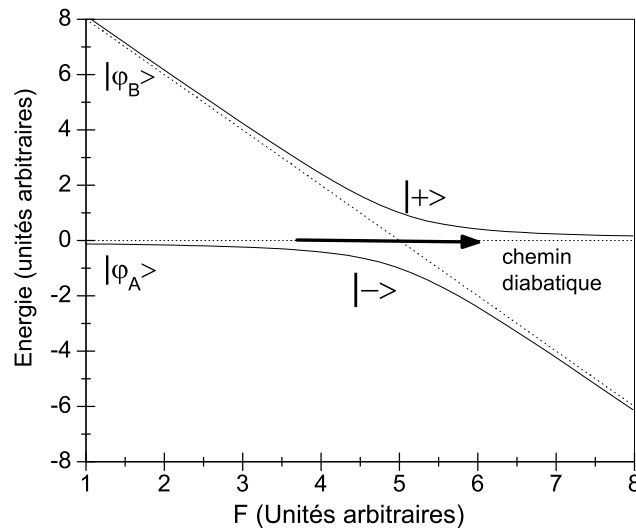


FIGURE 1.9 – Représentation d'un croisement évité entre deux états $|\phi_A\rangle$ et $|\phi_B\rangle$.

Les ions créés par l'ionisation sont envoyés par un champ électrique (par exemple le champ d'ionisation) vers un détecteur qui amplifie le signal. Si le champ électrique

est appliqué avec une pente suffisamment faible, les atomes dans les états de Rydberg les moins liés sont ionisés les premiers alors que les ions présents avant l'impulsion de champ électrique arrivent les premiers sur le détecteur. On arrive ainsi à séparer temporellement les différents états de Rydberg présent dans l'échantillon.

Une autre voie possible de détection utilise le phénomène de transparence électromagnétique induite².

1.7 Effet spectroscopique de l'interaction dipôle-dipôle

Nous donnons ici quelques exemples d'expériences qui nous permettent d'illustrer l'effet spectroscopique de l'interaction dipôle-dipôle. Il existe de nombreuses autres publications qui permettraient d'illustrer cette introduction de la même façon que les articles auxquels nous faisons référence.

Dans l'expérience de [Raimond et al., 1981] des atomes de césium en jet sont excités à deux étages $6s \rightarrow 6p_{3/2} \rightarrow nD$. Elle met en évidence un élargissement des raies de résonance d'atomes de Rydberg en fonction de la densité d'atomes excités. La puissance crête du laser de deuxième étage est importante (5kW) ainsi que sa largeur spectrale (8GHz). L'élargissement par puissance est évalué à 10GHz dont l'effet est visible sur la figure 1.10 en comparant a et c. Cette expérience met en évidence le rôle de l'interaction dipôle-dipôle dans l'élargissement. En effet, les interactions sont du type μ^2/R^3 . A grande distance la double excitation n'est pas déplacée par l'interaction. A plus courte distance, en revanche, la deuxième excitation n'est plus résonante. Si nous considérons les fréquences hors résonance alors une excitation à deux photons, non résonante avec l'excitation d'un seul atome, est résonante avec le niveau doublement excité déplacé par l'interaction (voir la figure 1.7). Les largeurs de raies sont alors la somme des processus à un photon et à deux photons.

Dans l'expérience de [Safinya et al., 1981] des atomes de sodium en jet sont excités à deux étages $3s \rightarrow 3p \rightarrow ns$. Un champ électrique est appliqué durant l'excitation permettant de modifier les niveaux d'énergies atomiques par effet Stark. A chaque fois que la position des niveaux est telle que l'on a $ns + ns \rightarrow np + (n-1)p$ un transfert collisionnel peut avoir lieu. Cela a permis l'observation de collisions résonantes entre atomes de Rydberg. Cette expérience réalisée dans un jet de sodium se traduit par des sections efficaces de collisions importantes dues à l'interaction à longue portée en C_3/R^3 comme présenté sur la figure 1.11. .

2. Bien que nous n'ayons pas du tout abordé cet aspect durant nos expériences, il est également possible de faire une détection sans ioniser les atomes de Rydberg. Dans [Mohapatra et al., 2007], les auteurs utilisent le phénomène de transparence électromagnétique induite afin de sonder les états de Rydberg. La largeur de raie obtenue indique une résolution inférieure au MHz. La transparence électromagnétique induite (EIT en anglais) se manifeste par l'absence d'absorption lorsque, par exemple, 2 transitions d'un système atomique à 3 niveaux sont à résonance, l'une des transitions (intense) excite le doublet Autler-Townes, la mesure d'absorption étant faite sur la deuxième transition (sonde). La variation rapide de l'indice de réfraction du milieu correspondant à la région autour de la fréquence de transparence a pour conséquence une brutale diminution de la vitesse de propagation de la lumière dans le milieu donnant lieu à des expériences de 'ralentissement de lumière' [Hau et al., 1999]. Cette détection permet d'observer l'effet d'interaction entre atomes de Rydberg en fonction de la densité [Weatherill et al., 2008].

1.7. EFFET SPECTROSCOPIQUE DE L'INTERACTION DIPÔLE-DIPÔLE 25

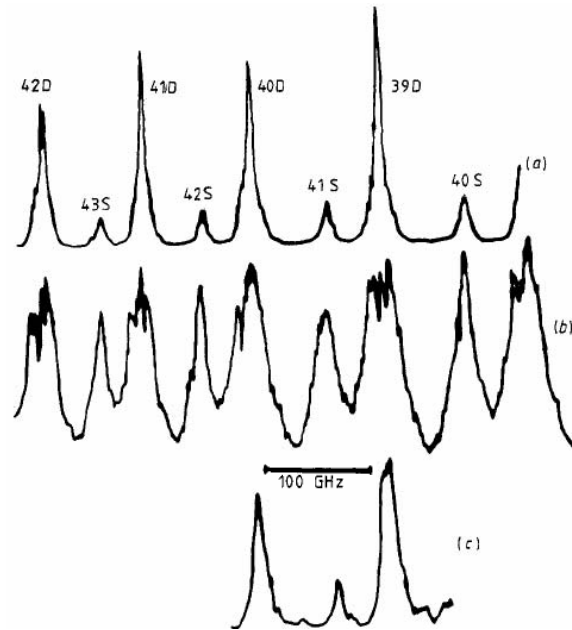


FIGURE 1.10 – Tirée de [Raimond et al., 1981]. Spectre des transitions $6p_{3/2}$ vers ns et nd dans le césium pour plusieurs densités. (a) Densité de Rydberg 10^{10}cm^{-3} , intensité du laser d'excitation $I=200\text{W}$, largeurs de raies $\sim 7\text{GHz}$. (b) Densité de Rydberg $2 \cdot 10^{11} \text{cm}^{-3}$, intensité du laser d'excitation $I=5\text{kW}$, largeurs de raies $\sim 40\text{GHz}$. (c) Même puissance laser qu'en b) avec une densité réduite d'un facteur 6.

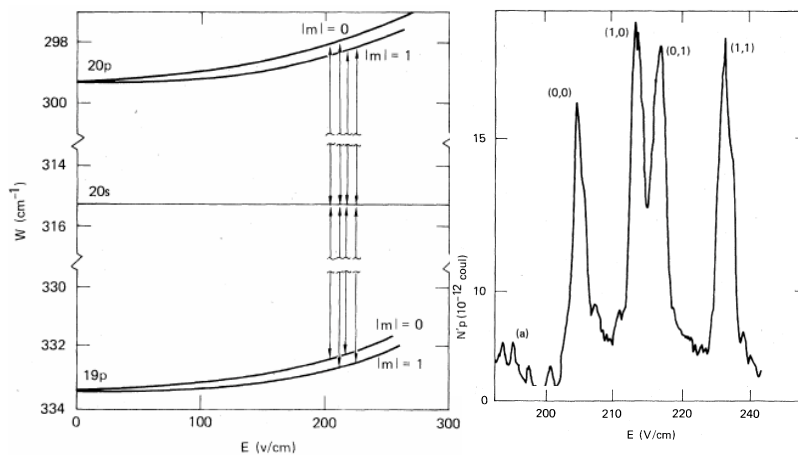


FIGURE 1.11 – Tirée de [Safinya et al., 1981]. Niveaux d'énergie pour les états $19p$ $20s$ et $20p$ du sodium en fonction du champ électrique. Les résonances sont indiquées par des flèches. Signal du $20p$ après excitation du $20s$. Les résonances apparaissent à chaque fois que l'état $20s$ est équidistant en énergie des états $19p$ et $20p$.

Dans [Safinya et al., 1981] la section efficace de collision en unité atomique vaut $\sigma = \frac{\mu_1 \mu_2}{\bar{v}}$ avec μ_1 (μ_2) le moment dipolaire de la transition $ns-np$ $ns-(n-1)p$ et \bar{v} la vitesse moyenne des atomes. Pour $\mu_1 \approx \mu_2 \approx 300$ (u.a.) et une vitesse moyenne de 500 m/s la section efficace vaut $\sigma \approx 10^{-8} \text{cm}^2$. Le temps de collision est lui donné par $t_{coll} = \sqrt{\sigma/\bar{v}}$ et vaut dans l'expérience environ 1ns .

Contrairement à ces expériences qui ont lieu dans des jet atomiques, nos expériences sont faites dans des nuages d'atomes froids de césium. Dans ces nuages d'atomes froids de césium, les atomes se déplacent à des vitesses de l'ordre de $100 \text{ nm}/\mu\text{s}$ avec un espacement moyen de l'ordre $10\mu\text{m}$. Le mouvement des atomes est alors gelé. Le calcul de la section efficace avec des moments dipolaires d'environ 600 (u.a.) pour $n=40$ et une vitesse de 0.1 m/s conduit à une section efficace $\sigma \approx 10^{-4} \text{ cm}^2$. Le paramètre d'impact est donc de l'ordre de $\sqrt{\sigma}$ soit environ $100\mu\text{m}$ et t_{coll} vaut environ 1ms . Il n'y a plus alors à proprement parler de collisions.

Dans un gaz de Rydberg gelé, le transfert résonant d'excitation est toujours possible. Un phénomène intéressant a été noté par [Mourachko et al., 1998] et [Anderson et al., 1998]. La largeur des résonances est plus importante d'au moins un ordre de grandeur sur l'estimation faites à partir de l'interaction dipôle-dipôle. Pour comprendre cette différence il faut prendre en compte la réaction résonante et également la migration de l'état initial np et des états finaux ns et $(n+1)s$ qui elles sont toujours résonantes, par exemple :

$$np(F) + np(F) \leftrightarrow ns(F) + (n+1)s(F) \quad (1.35)$$

$$ns + np \leftrightarrow np + ns \quad (1.36)$$

$$(n+1)s + np \leftrightarrow np + (n+1)s \quad (1.37)$$

Le fait de considérer les permutations d'excitations augmente la base des états en interaction. Le résultat de l'ensemble de ces couplages est un élargissement des résonances.

La différence de comportement entre l'interaction résonante dipôle-dipôle en C_3/R^3 et l'interaction van der Waals est visible dans de nombreux articles qui discutent du blocage dipolaire et de la dynamique de l'ionisation en fonction des courbes de potentiels. Nous décrivons ici un seul article [Reinhard et al., 2008] dans lequel une double spectroscopie des atomes (voir figure 1.12) permet de voir, comme nous l'avons noté plus haut, que les deux types d'interactions, résonnante et non résonante conduisent à un décalage différent des niveaux atomiques. Un premier passage du laser d'excitation définit un profil pour lequel les atomes excités sont non décalés en fréquence (ce sont les premiers atomes excités qui définissent autour d'eux une zone de blocage). Dans un deuxième temps un laser reste sur la fréquence centrale de la transition puis un second laser permet d'exciter les atomes ayant subit un décalage de leur fréquence de transition (ce sont les atomes qui se trouvent dans la zone de blocage des premiers atomes excités) ainsi que des atomes centrés en fréquence qui n'ont pas été excités par la première excitation (car il n'y a pas saturation lors de la première excitation). Lorsque l'interaction est non résonante (cas a) de type van der Waals, les niveaux atomiques des atomes non excités par le premier laser ont été décalés vers le rouge de la transition non perturbée. Lorsque l'interaction est résonante (cas b) de type dipôle-dipôle résonant, les niveaux atomiques des atomes non excités par le premier laser ont été décalés vers le bleu et vers le rouge de la transition non perturbée.

1.7. EFFET SPECTROSCOPIQUE DE L'INTERACTION DIPÔLE-DIPÔLE 27

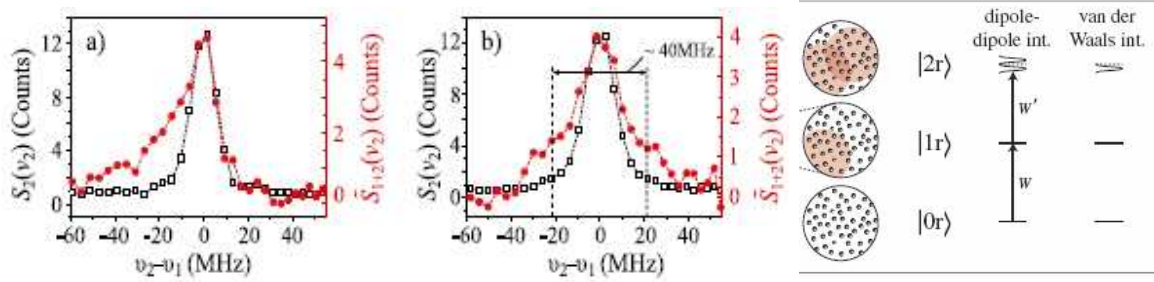


FIGURE 1.12 – Tirée de [Reinhard et al., 2008]. Double spectroscopie d’atomes de Rydberg (voir texte). Un laser balaye en fréquence la résonance atomique d’un état de Rydberg. Le profil de raie indiqué par des carrés donne le nombre d’atomes excités en fonction du décalage à résonance. Ce laser reste sur la fréquence centrale et un deuxième laser balaye la résonance. Le profil de raie est cette fois-ci indiqué par des points. a) Interaction non résonante. b) Interaction résonante par application d’un champ électrique qui rapproche l’énergie d’une paire d’atomes excités de l’énergie d’une autre paire d’atomes.

1.7.1 Transfert résonant

Le transfert résonant d’énergie entre deux atomes ou molécules dus à l’interaction dipôle-dipôle est appelé résonance de Förster d’après T. Förster [Förster, 1959] (voir la figure 1.13A). Le transfert résonant d’énergie est notamment utilisé en biologie moléculaire pour mettre en évidence les variations temporelles et spatiales de certaines molécules en utilisant la colocalisation d’un système accepteur-donneur (voir la figure 1.13B). De façon générale, une première molécule fluorescente est excitée puis se désexcite par un processus Stokes. Lorsque la bande d’émission de cette molécule (donneur) recouvre la bande d’excitation d’une autre molécule fluorescente et qu’elles sont suffisamment proche, cette seconde molécule (accepteur) est excitée puis se désexcite dans une autre plage de longueur d’onde différente du donneur. Lorsqu’on détecte une émission dans la plage de l’accepteur alors on sait que les deux molécules, donneur et accepteur, sont très proches car l’efficacité du FRET (Förster Resonance Energy Transfer) est de l’ordre de $\frac{1}{1+(R_0/R)^6}$ (R_0 est la distance de Förster, qui correspond à la distance donnant une efficacité de 50%, et varie avec le fluorophore (de l’ordre de 10-100Å)). Deux principes peuvent être utilisés en FRET. Premièrement, les fluorophores sont portés par deux molécules différentes et leur association ou leur dissociation fait varier le signal de fluorescence. Deuxièmement, les fluorophores sont portés par la même molécule et lorsqu’elle change de conformation la distance entre les deux fluorophores change et fait varier le signal de fluorescence. Enfin nous donnons un exemple qui se rapproche dans le principe général de l’étude que nous avons faite du contrôle de la résonance de Förster par un champ électrique (voir la figure 1.13B et [Becker et al., 2006]). Un nanocrystal dont le recouvrement de la plage d’émission avec la plage d’absorption d’une molécule de colorant est faible ne transfère pas efficacement son énergie. Le nanocrystal soumis à un champ électrique voit sa plage d’émission (ses niveaux excités) décalée par effet Stark tandis que la molécule de colorant garde les mêmes plages d’émission et d’absorption. Après application d’un champ électrique la plage d’émission du nanocrystal est décalée vers le rouge. Le recouvrement entre la plage d’émission du nanocrystal avec la plage d’absorption de la molécule de colorant est alors important.

Le transfert d'excitation du nanocrystal vers la molécule de colorant peut avoir lieu.

1.8 Conclusion

Nous avons vu dans cette introduction que les atomes portés dans des états de Rydberg interagissent via l'interaction dipôle-dipôle. Nous pouvons comparer la valeur du moment dipolaire électronique induit dans nos expériences, jusqu'à 2500 Debye pour $n=50$, à la valeur du moment dipolaire de la molécule d'eau H_2O de 2 Debye, en passant par le dimère d'alcalin le plus polaire LiCs ayant un moment dipolaire de 6 Debye. La physique des atomes de Rydberg permet donc d'approcher les situations décrites dans de nombreuses propositions faites sur les gaz dipolaires. La manipulation de ces états atomiques reste cependant complexe. L'interaction dipolaire peut coupler de nombreux atomes et dépend de la position de ceux-ci, plusieurs états excités peuvent également intervenir dans la compréhension du problème.

Cette rapide introduction des atomes de Rydberg a permis de rappeler les principales propriétés des atomes de Rydberg que sont leur temps de vie, l'écart entre niveaux, leur polarisabilité et la faible énergie de liaison qui permet de les détecter à l'aide de champs électriques facilement accessibles. Celles-ci sont rappelées dans le tableau qui conclut ce chapitre.

Propriété	Dépendance en n	formule
Énergie de liaison	$n^* - 2$	$-\frac{R_y}{(n - \delta_{nlj})^2} \text{ (cm}^{-1}\text{)}$
Écart d'énergie entre deux niveaux n successifs	$n^* - 3$	$\frac{2R_y}{(n - \delta_{nlj})^3} \text{ (cm}^{-1}\text{)}$ Cs 40p 4cm^{-1} , (micro-ondes)
Rayon classique	n^{*2}	$n^{*2} a_0$
Section efficace géométrique	n^{*4}	$\pi a_0^2 n^{*4}$
Polarisabilité	n^{*7}	Cs 40p $10\text{MHz}/(\text{V/cm})^2$
Temps de vie radiatif	n^{*3}	
Temps de vie incluant le corps noir	Cs 40p $47\mu\text{s}$	Rb 58d $90\mu\text{s}$
Champ d'ionisation classique	n^{*4}	$\frac{1}{16n^{*4}} 5.14 \cdot 10^9 \text{ (V/cm)}$ Cs 40p 182 V/cm

TABLE 1.3 – Quelques propriétés des atomes de Rydberg sous forme de lois d'échelle.

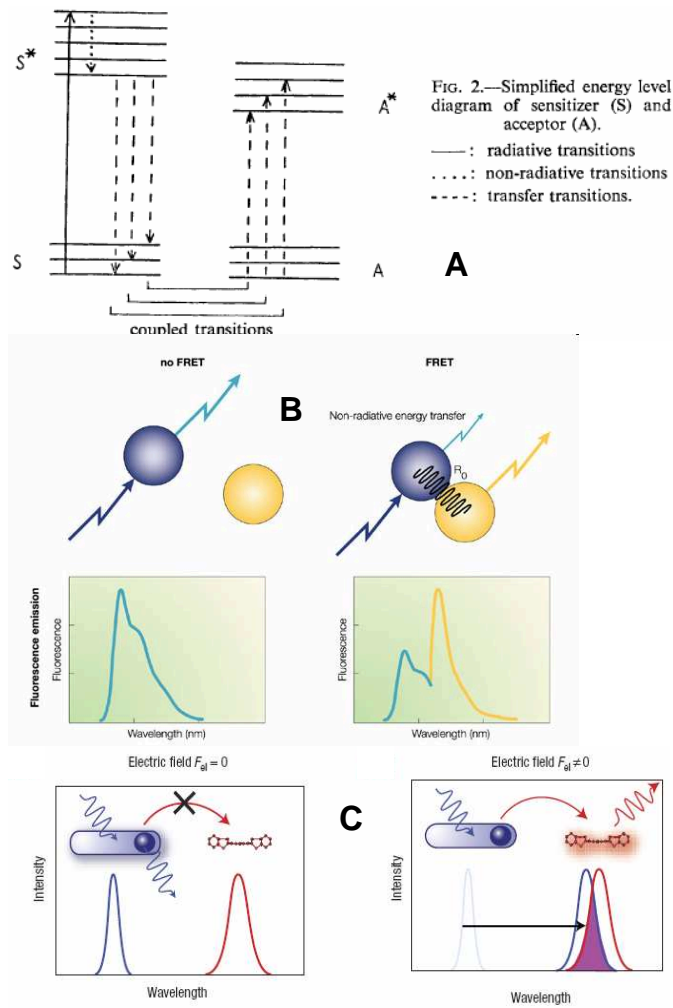


FIGURE 1.13 – **A** mécanisme schématisé par T. Förster de l'excitation d'un donneur (sensitizer S) suivi de sa désexcitation. Les transitions de désexcitation correspondent à des transitions d'excitation d'un accepteur. Le transfert est de type dipôle résonnant. **B** Le FRET (Förster Resonance Energy Transfer) est une technique qui permet de détecter la proximité de deux molécules fluorescentes (voir texte). Schéma tiré de [Rudolf et al., 2003]. **C** Manipulation de la résonance de Förster via un champ électrique appliqué sur un nanocrystal et qui permet de contrôler le transfert d'énergie vers une molécule de colorant (voir texte). Tirée de [Becker et al., 2006].

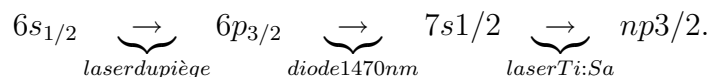
Chapitre 2

Expériences de blocage dipolaire avec des atomes de Rydberg froids

Nous allons décrire dans ce chapitre l'excitation d'atomes froids de césium vers des états de Rydberg dans le but de mesurer les effets du blocage dipolaire de l'excitation entre atomes de Rydberg.

Le refroidissement d'atomes par laser offre la possibilité de réduire fortement l'agitation thermique d'un gaz très dilué. Le mécanisme dissipatif du refroidissement par pression de radiation dans une mélasse optique équilibré par le chauffage stochastique permet d'atteindre des vitesses d'agitation thermique faibles (vitesses inférieure à 10cm/s, soit 100nm/ μ s) dans le référentiel du laboratoire, correspondants à des températures dites Doppler de l'ordre de la centaine de microKelvins pour le césium et le rubidium¹. Ces températures donnent une énergie (exprimée en MHz ($k_b T/\hbar$)) un ordre de grandeur sous l'énergie des interactions V_{dd} que nous voulons sonder entre atomes de Rydberg de m'ordre de 10 à 100MHz. Cette condition nous permet de considérer le gaz de Rydberg froid comme un gaz gelé où le mouvement des atomes peut être oublié si le temps de l'expérience t est inférieur à $\frac{1}{k_b T}$. La présence d'une force de rappel dans le piège magnéto-optique nous permet de travailler avec des densités de l'ordre de 10^{11} at/cm³, ce qui permet d'atteindre des densités maximale de 10^{10} soit une distance entre atomes de Rydberg voisins suffisante pour la mise en évidence d'interactions.

L'excitation d'atomes dans des états de Rydberg est réalisée par un processus à 3 étages par des lasers continus fin spectralement



Le contrôle des interactions dipolaires, entre des atomes de Rydberg, a constitué une base de réflexion théorique pour la réalisation de schémas de logique quantique nécessitant des interactions entre atomes à grandes distances pour intriquer les fonctions d'ondes de ceux-ci. Nous commençons par décrire un de ces schémas au paragraphe ??.

1. Il est possible d'atteindre des températures plus faibles mais la plupart de nos expériences ont été réalisées à la limite Doppler

Suit une description du montage expérimental au paragraphe 2.2 où nous décrivons les différentes expériences que nous avons effectuées avec Thibault Vogt [Vogt, 2006] et Matthieu Viteau [Viteau, 2008]. Ces expériences étudient l'interaction dipôle-dipôle à longue portée en C_3/R^3 entre atomes de Rydberg pour différentes configurations.

Ce type d'interaction est obtenu en utilisant l'effet Stark à champ électrique faible pour réduire l'écart en énergie entre l'une des paires d'atomes dans l'état excité np avec une paire d'atome, l'un dans l'état ns l'autre dans l'état $(n+1)s$. Cette configuration correspond à une résonance de Förster. Comme nous l'avons déjà décrit dans le chapitre précédent l'interaction est de plus en plus importante à mesure que l'on s'approche de la résonance, on passe pour de grands écarts à résonance d'une interaction de type van der Waals à une interaction dipôle-dipôle lorsque cet écart à résonance est inférieur à C_3/R^3 . Nous décrivons cette résonance de Förster qui est obtenue pour $n \leq 42$, et nous montrerons l'influence de cette résonance sur le blocage dipolaire de l'excitation. Nous décrivons les résultats obtenus pour le blocage dipolaire dans la configuration de résonance de Förster dans le paragraphe 2.3.

Comme ce procédé est limité à $n \leq 42$, nous avons utilisé un champ électrique pour induire un dipôle permanent sur des états de Rydberg de nombre quantique plus élevés. Cette approche nous a permis de faire des expériences de blocage dipolaire en bénéficiant de dipôles de transition plus importants que dans l'étude précédente, et nous décrivons le blocage dipolaire en champ électrique dans le paragraphe 2.4.

Dans ces deux expériences nous avons étudié l'influence de la densité sur l'efficacité du blocage dipolaire et nous avons cherché à déterminer si les ions présents durant l'excitation avaient un effet important sur le blocage.

Dans le paragraphe 2.5 nous évoquons les résultats obtenus par différents groupes précédents ou postérieurs à nos travaux. Le paragraphe 2.5 se termine par la description d'une expérience de blocage dipolaire à deux atomes réalisée dans le cadre d'une collaboration du groupe d'optique quantique du Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique avec le Laboratoire Aimé Cotton soutenue par l'IFRAF. J'ai participé à la préparation de cette expérience dont on trouvera ici la description de l'expérience.

2.1 Propositions de portes logiques quantiques

Nous commençons le chapitre par un rappel des propositions théoriques qui ont été faites ces dernières années pour réaliser des portes logiques quantiques et qui sont, pour certaines, en relation étroite avec les résultats expérimentaux que nous exposerons dans la suite de ce chapitre.

Une application possible de l'interaction dipôle-dipôle est le blocage dipolaire de l'excitation. Cet effet offre la possibilité de manipuler l'état quantique d'atomes neutres via une excitation collective dans un volume mésoscopique. Dans un ensemble contenant de nombreux atomes, les premiers à être excités vers des états de Rydberg modifient, par leurs interactions, la fréquence de résonance des atomes voisins non excités et empêchent finalement l'excitation de ces derniers si on utilise un laser fin spectralement.

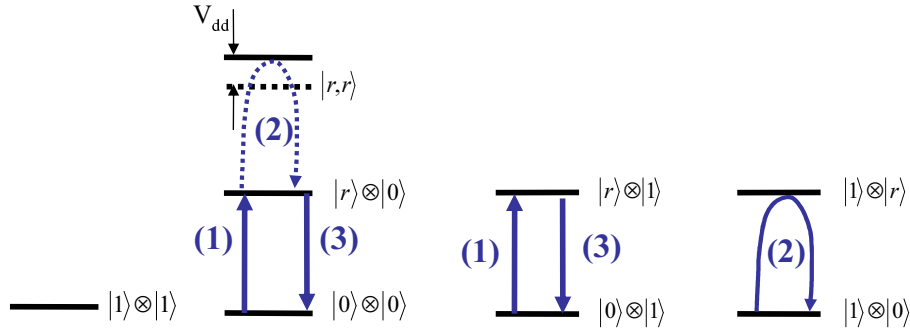


FIGURE 2.1 – Modèle proposé dans [Jaksch et al., 2000] pour réaliser une porte quantique de phase. Ce modèle nécessite l’adressage particulier des atomes. Cette porte est réalisée en trois étapes : une impulsion π appliquée au premier atome, une impulsion 2π appliquée au deuxième atome et enfin une nouvelle impulsion π au premier atome.

Nous pouvons distinguer ici le cas de plusieurs atomes en interaction et le cas de deux atomes seulement. Dans ce dernier cas il est envisageable de réaliser une excitation conditionnelle. Un exemple simple est obtenu dans une vision à deux atomes à deux niveaux, en prenant un laser résonant avec la transition de l’état fondamental (g) vers l’état excité de Rydberg (e). Le premier des deux atomes à absorber un photon du laser se trouve porté sur un état de Rydberg qui, par interaction dipôle-dipôle, décale l’énergie de transition pour le second atome. Si ce décalage est plus important que la largeur spectrale du laser d’excitation, alors le second atome a une probabilité très faible, voir quasi nulle d’être excité. C’est l’effet le plus simple d’un effet de blocage dipolaire qui fait appel à une excitation séquentielle (un atome après l’autre, ce qui ne sera pas le cas de l’exemple que nous rapporterons plus loin).

Le blocage dipolaire peut être utilisé pour la manipulation d’information quantique à condition d’obtenir un blocage de l’excitation cohérent, où l’ensemble des atomes participant au phénomène décrivent un état collectif.

Le point de départ de notre expérience a été de mettre en évidence un régime de blocage dipolaire pour un ensemble d’atomes de manière à envisager la réalisation des propositions théoriques [Lukin et al., 2001], [Jaksch et al., 2000] dont nous décrivons le principe pour l’une d’elle [Jaksch et al., 2000].

Considérons deux états $|g\rangle$ et $|e\rangle$ représentant deux états hyperfins d’un atome alcalin, et un état de Rydberg $|r\rangle$. L’interaction est telle que la fréquence Rabi de la transition ($-\mu E_{laser}/\hbar$, avec E l’amplitude du champ électrique associée à l’onde du laser d’excitation, μ le dipôle de transition entre g et e) Ω est plus faible que l’interaction $\Omega \ll V_{dd}$. Trois étapes permettent alors de réaliser une porte de phase.

1. Impulsion π appliquée au premier atome A, induisant la transformation $|g_1\rangle \rightarrow i|r_1\rangle$.
2. Impulsion 2π appliquée sur la transition $|g_2\rangle \leftrightarrow |r_2\rangle$. Si l’atome A n’est pas excité au préalable dans l’état Rydberg, $V_{dd}=0$ et la probabilité d’excitation suivi d’une désexcitation vaut 1, ceci conduit à $|e_1g_2\rangle \rightarrow -|e_1g_2\rangle$. Si l’atome se trouvait au

préalable dans l'état Rydberg, la transition $|r_1g_2\rangle \leftrightarrow |r_1r_2\rangle$ est décalée en énergie de V_{dd} par rapport à la transition $|e_1g_2\rangle \rightarrow |e_1r_2\rangle$. L'excitation du deuxième atome B est quasiment bloquée, d'amplitude maximale $(\Omega/V_{dd})^2$, puisqu'on a supposé $\Omega \ll V_{dd}$. La phase accumulée lors de cette impulsion² (soit après un temps $\Delta t = 2\pi/\Omega_2$) est $\phi = -\pi\Omega_2/2V_{dd} \ll \pi$.

3. Impulsion π appliquée au premier atome pour qu'il retourne dans l'état fondamental $|g\rangle$. De même que pour la première étape, $i|r_1e_2\rangle \rightarrow -|g_1e_2\rangle$, et $e^{-i\phi}|r_1g_2\rangle \rightarrow -i e^{-i\phi}|g_1g_2\rangle$.

L'opération effectuée est finalement :

$$\begin{aligned} |ee\rangle &\rightarrow |ee\rangle \\ |ge\rangle &\rightarrow -|ge\rangle \end{aligned} \tag{2.1}$$

$$|eg\rangle \rightarrow -|eg\rangle \tag{2.2}$$

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

La durée de l'opération est de l'ordre de $\Delta t = 2\pi/\Omega$, soit environ 100ns pour une fréquence de Rabi de 20MHz.

Plusieurs travaux théoriques sont venus compléter cette proposition et notamment, [Protsenko et al., 2002] et [Saffman and Walker, 2005] analysent la possibilité d'utiliser des atomes dans des pièges dipolaires (FORT), et dans [Walker and Saffman, 2005] les auteurs indiquent que des couplages entre états de Rydberg peuvent limiter fortement l'observation du blocage dipolaire.

2.2 Montage expérimental

2.2.1 Excitation continue

2.2.1.1 Le piège magnéto-optique de césium

Le piège magnéto-optique que nous utilisons est chargé de manière continue à partir d'une vapeur de césium provenant du dégazage d'une ampoule de césium liquide à 300K dans une enceinte dont le vide poussé en l'absence de vapeur de césium, $\sim 10^{-10}$ mbar, est maintenu par deux pompes ioniques.

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

La structure électronique des premiers niveaux du césium est présentée sur la figure 2.2. On y reconnaît les deux transitions les plus brillantes du césium reliant l'état de

2. Celle-ci se déduit directement de l'évolution du système à deux niveaux $|r_1g_2\rangle \leftrightarrow |r_1r_2\rangle$, avec un décalage $\delta=V_{dd}$ du niveau d'énergie $|r_1r_2\rangle$ par rapport à la fréquence laser donné par la formule de Rabi $\frac{\Omega^2}{\Omega^2+\delta^2} \sin^2(\sqrt{\Omega^2+\delta^2}\frac{t}{2})$ (Ω est la fréquence de Rabi de la transition et δ le décalage à résonance). La phase accumulée est donnée par le rapport $\frac{\frac{\pi}{2}}{\sqrt{\frac{\Omega^2+\delta^2}{\Omega^2}}} \approx \frac{\pi}{2} \frac{\Omega}{\delta}$.

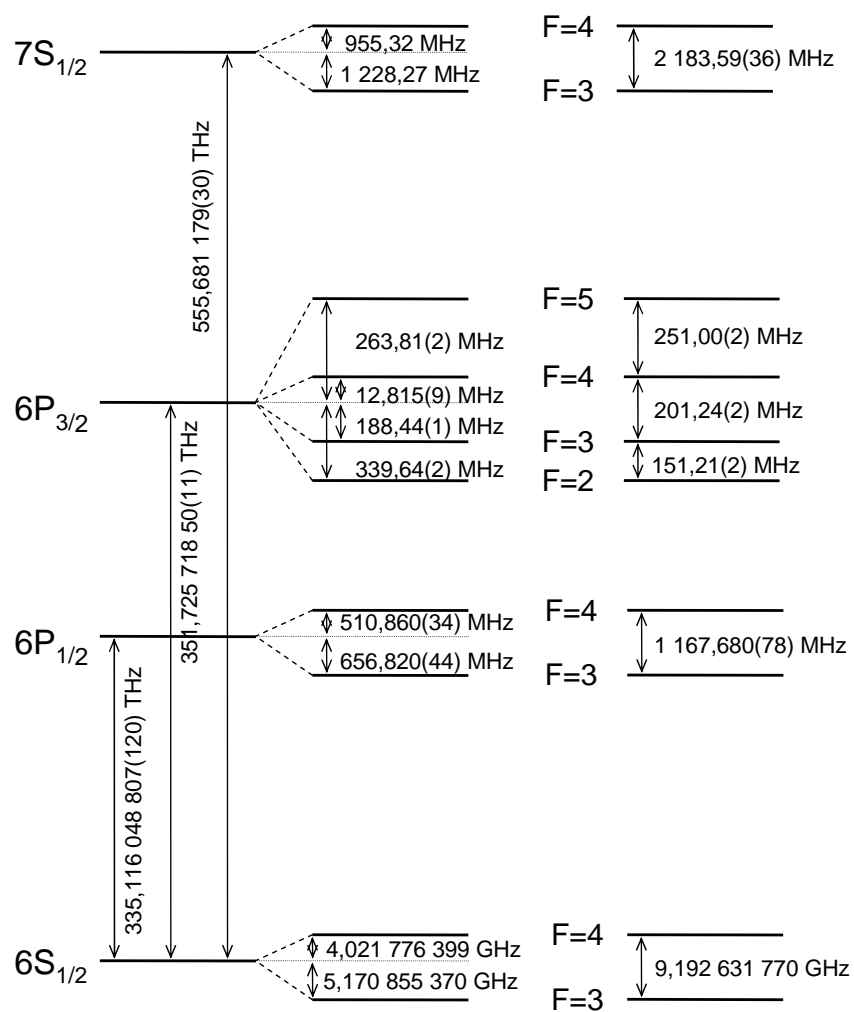


FIGURE 2.2 – Schéma des premiers niveaux d'énergie du césium. D'après [Steck, 2004], et [Weber and Sansonetti, 1987].

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

Les 6 faisceaux pièges polarisés circulairement utilisés pour le refroidissement totalisent 40mW de puissance collimatée au niveau du PMO avec un waist d'environ 5 mm. Ils sont issus d'une même diode de puissance SDL 5422 H1. Celle-ci est asservie sur la transition D2 $6s_{1/2}, F = 4 \rightarrow 6p_{3/2}, F' = 5$ par injection par une diode maître, en l'occurrence une diode DBR SDL 5712 H1 asservie en utilisant un signal d'absorption saturée sur une vapeur de césium. La fréquence des lasers de piégeage a été optimisée de façon à maximiser la densité dans le piège. Elle correspond à un décalage d'environ -2,5 Γ vers le rouge³ de la transition hyperfine $6s_{1/2} F=4 \rightarrow 6p_{3/2} F'=5$. Le laser repompeur est également une diode DBR, asservie sur la transition $6s_{1/2}, F = 3 \rightarrow 6p_{3/2}, F' = 4$ par absorption saturée.

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

Nous obtenons un piège de forme approximativement gaussien, de taille à $1/\sqrt{e}$ d'environ 300 μm , contenant environ $5 \cdot 10^7$ atomes soit une densité moyenne $\sim 4 \cdot 10^{10}$ at/cm⁻³ et une densité pic $\sim 2 \cdot 10^{11}$ at/cm⁻³. Quant à la température, elle est typiquement de l'ordre de la température Doppler $\sim 125 \mu\text{K}$.

2.2.1.2 Schéma d'excitation d'atomes de Rydberg

La méthode d'excitation continue de la figure 2.4 utilise un schéma d'excitation à 3 couleurs : une première transition $6s_{1/2}, F = 4 \rightarrow 6p_{3/2}, F' = 5$ est effectuée parfois avec les lasers du piège magnéto-optique (PMO) et d'autres fois avec une diode indépendante. Le décalage de 15MHz des lasers du piège est ramené à 8-10MHz durant l'excitation pour augmenter le transfert vers $6p_{3/2}$. La deuxième transition $6p_{3/2}, F = 5 \rightarrow 7s_{1/2}, F' = 4$ utilise une diode fonctionnant à 1470 nm (diode 1470,DL100 Toptica) et la dernière transition $7s_{1/2}, F = 4 \rightarrow np_{3/2}, F' = 5$ est réalisée par le laser Ti :Sa. Cette méthode d'excitation de haute résolution a été utilisée pour la démonstration du blocage dipolaire de l'excitation.

La longueur d'onde de la diode fonctionnant à 1470 nm est asservie par une méthode d'absorption à deux couleurs (figure 2.6). Une première diode laser (852nm) est asservie par absorption saturée sur la transition $6s_{1/2}, F = 4 \rightarrow 6p_{3/2}, F' = 3, 4$ ou 5 (voir figure 2.5). Le faisceau laser de cette diode est envoyé vers une cellule de césium. Une partie du faisceau de la diode 1470 est envoyé dans cette cellule en étant contra-propageant au faisceau pompe de la diode 852. Les différents états $6p_{3/2}$ sont sondés par une mesure

3. $\Gamma \approx 2\pi \times 5,23$ MHz correspond à la largeur naturelle de l'état excité $6p_{3/2}$.

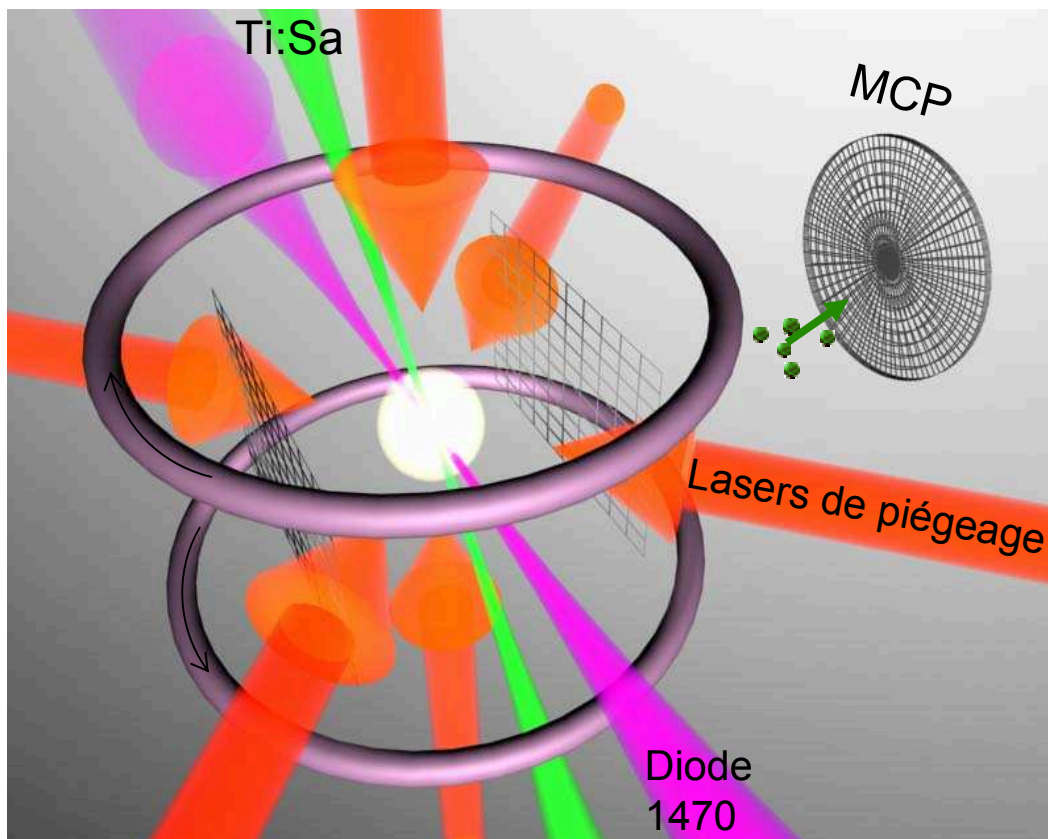


FIGURE 2.3 – Représentation globale du dispositif expérimental. Nous avons représenté les éléments du piège magnéto-optique (lasers de piégeage du PMO, bobines de champ magnétique), ainsi que les faisceaux lasers d'excitation continues vers les états de Rydberg (laser Ti:Sa et une diode fonctionnant à 1470 nm). Le PMO est entouré de deux grilles accélératrices percées de trous et laissant passer les faisceaux horizontaux du piège. Un champ électrique peut être appliqué entre les deux grilles avec une uniformité de l'ordre de 0.1%. Ce champ peut être pulsé pour ioniser les atomes de Rydberg et accélérer les ions vers des galettes microcanaux (MCP).

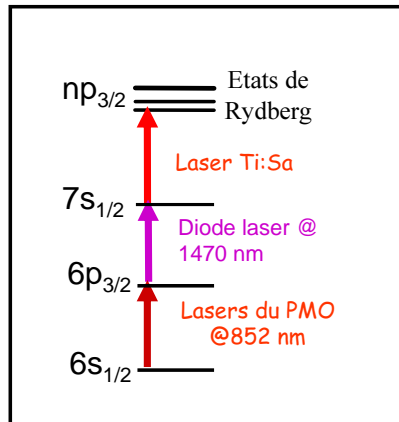


FIGURE 2.4 – Schéma d’excitation continue à trois couleurs : les lasers de piégeage réalisent la transition $6s_{1/2} \rightarrow 6p_{3/2}, F = 5$, une diode laser réalise la transition $6p_{3/2}, F = 5 \rightarrow 7s_{1/2}, F = 4$ et enfin le laser Ti:Sa permet d’exciter les atomes dans un état de Rydberg $np_{1/2}$ ou $np_{3/2}$.

d’absorption du faisceau sonde. On peut voir les spectres d’absorption sur la figure 2.7.

La configuration dans laquelle nous avons travaillé est d’avoir la diode de pompe à 852nm asservie sur $6s_{1/2}, F = 4 \rightarrow 6p_{3/2}$, crossover (CO) 4 – 5 et la diode 1470 sur le pic correspondant à $6p_{3/2}, F' = 5 \rightarrow 7s_{1/2}, F = 4$. La fréquence de la diode 1470 est ensuite optimisée pour l’excitation des atomes du piège magnéto-optique en ajustant un modulateur acousto-optique (+72.8MHz).

2.2.1.3 Détection

Après excitations d’états de Rydberg lasers, la détection est effectuée par ionisation sélective par champ électrique. Une rampe de champ (débutant dans notre montage au plus tôt 700ns après l’excitation) avec un temps de montée de l’ordre de $1\mu s$ est appliquée entre les deux grilles entourant le PMO. Ce temps de monté nous assure un passage plutôt adiabatique des croisements évités. Le champ d’ionisation reste proche de la limite classique $\frac{1}{16(n^*)^4}$.

L’amplitude de ce champ est choisie de manière à détecter sélectivement après temps de vol des états $|n, l\rangle$ différents. Suite à l’ionisation des atomes de Rydberg, les ions sont accélérés par la fin de l’impulsion de champ électrique vers une paire de galettes micro-canaux (2 galettes de micro-canaux Hamamatsu 1094) permettant de convertir et d’amplifier le signal ionique en un signal électronique (nous pouvons également choisir de détecter les électrons en changeant le potentiel vu par les charges en arrivant sur la face avant des galettes de micro-canaux). L’efficacité de détection d’un atome de Rydberg est typiquement évaluée à 30% principalement limitée par le rendement quantique des galettes. Le signal est enfin amplifié (Miteq AU1534) avant d’être envoyé à un intégrateur.

Le nombre d’ions est calibré en mesurant l’aire A0 de l’impulsion électronique corres-

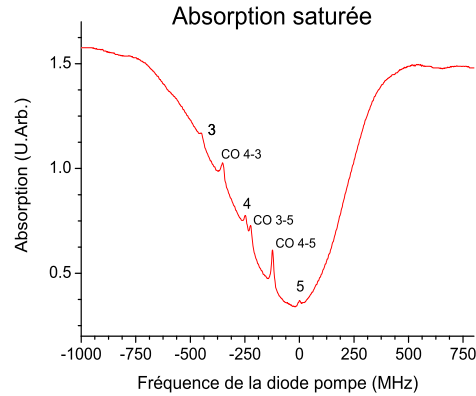


FIGURE 2.5 – Spectre d’absorption saturé du césium pour une diode à 852 nm (fréquence ω). On distingue le profil Doppler (absorption du faisceau sonde pour toutes les classes de vitesses), les pics de transmission entre $6s\ F=4$ et $6p_{3/2}\ F'=3,4$ ou 5 , (obtenus lorsque le faisceau sonde et le faisceau sonde sont résonants avec des atomes de vitesses quasi nulles), et les ‘crossovers’ CO 3-4, 3-5 et 4-5 (obtenus lorsque des atomes de vitesses non nulles sont résonant à la fréquence $\omega_{a,b}$ dans une direction avec le faisceau pompe et résonant à la fréquence $\omega_{c,b}$ dans l’autre direction avec le faisceau sonde. On a alors $\omega[(1 - \frac{\vec{u}\cdot\vec{v}}{c}) + (1 + \frac{\vec{u}\cdot\vec{v}}{c})] = \omega_{a,b} + \omega_{c,b}$, soit $\omega = \frac{\omega_{a,b} + \omega_{c,b}}{2}$).

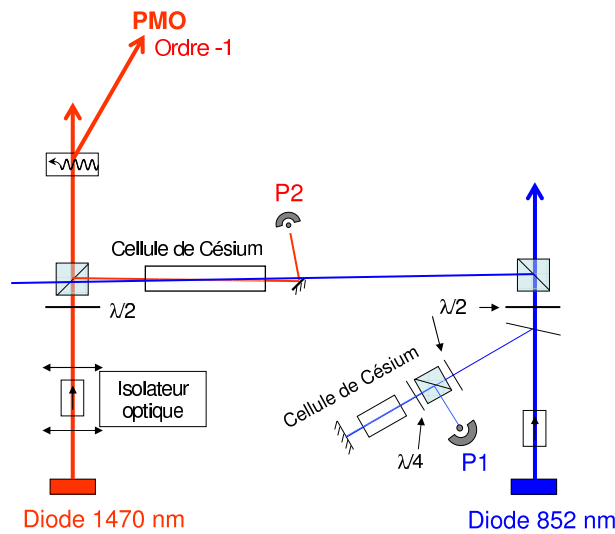


FIGURE 2.6 – Montage expérimental de l’asservissement de la diode 1470 nm sur la transition $6p_{3/2} \leftrightarrow 7s_{1/2}$ avec une technique d’absorption à deux couleurs. La photodiode P1 enregistre le signal d’absorption saturée du faisceau à 852 nm et la photodiode P2 enregistre le signal d’absorption simple du faisceau laser sonde à 1470 nm.

pondant à l’arrivée d’un ion unique (le signal électronique d’aire A est relié au nombre d’ions N par $A = N \cdot A_0$). L’aire du signal est mesurée simplement par intégration du signal électronique après amplification (avec des portes d’intégration de Stanford Research Systems ou bien par un oscilloscope numérique Lecroy). Un ion unique donne un signal distribué sur une plage importante de valeurs. Pour une tension appliquée sur les galettes il faut alors prendre un seuil en tension de sortie qui nous indique la présence d’un ion.

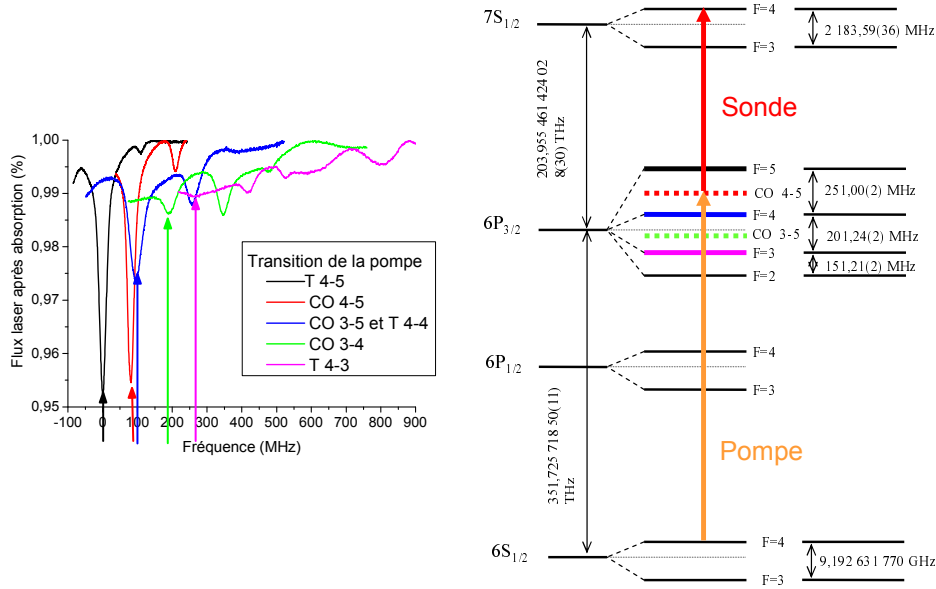


FIGURE 2.7 – Profil d’absorption du faisceau à 1470 nm pour différentes fréquences d’asservissement de la diode de pompe i.e. la diode à 852nm de la figure 2.6. La transition $6p_{3/2}, F' = 5 \leftrightarrow 7s, F = 4$ est repérée par une flèche verticale. Son déplacement dans le spectre d’absorption en fonction de la fréquence de pompe est dû à l’effet Doppler. Pour le laser pompe de pulsation ω_P (longueur d’onde λ_P) de direction de propagation \vec{u} et le laser sonde de pulsation ω_S (longueur d’onde λ_S) et direction de propagation $-\vec{u}$, un atome de vitesse \vec{v} excité vers $6p_{3/2}, F' = 5$ puis $7s, F = 4$ (fréquence de transition ω'_5) vérifie les relations $\omega_5 = \omega_P(1 - \frac{\vec{u} \cdot \vec{v}}{c})$ et $\omega'_5 = \omega_S(1 + \frac{\vec{u} \cdot \vec{v}}{c})$. Le décalage Doppler sur le faisceau pompe s’écrit $\delta_P = -2\pi v \lambda_P$. Comme les deux lasers sont contra-propageants les atomes ayant absorbé le faisceau pompe sont résonnant avec la sonde si elle est décalée de $\delta_S = 2\pi v \lambda_S = \frac{\lambda_P}{\lambda_S} \delta_P$.

2.2.1.4 Compensation des champs électriques parasites

La présence de champ électrique à l’intérieur de l’enceinte à vide peut induire des couplages Stark entre différents niveaux. La présence d’états nd ou ns (transitions dipolaires interdites à partir de l’état 7s) lors de l’excitation de l’état np se produit alors et peut être visualisée sur des spectres en balayant la longueur d’onde du laser d’excitation, comme indiqué sur la figure 2.8.

La présence de ces champs électriques peut venir fausser l’interprétation des expériences de blocage dipolaire. Une recherche de toutes les sources de bruit arrivant dans l’enceinte et pouvant perturber l’excitation des atomes nous a conduit à blinder les drivers des modulateurs acousto-optiques ainsi que les câbles électriques qui sont utilisés pour les impulsions de champ électrique arrivant sur les grilles ou pour compenser les champs statiques parasites. Nous avons isolé les branchements électriques présent sur l’enceinte à vide. La présence de dispensers dans la chambre d’excitation nous a permis d’appliquer des tensions pour compenser les champs électriques statiques résiduels. Nous pouvons ainsi contrôler ces champs à mieux que 1mV/cm et résoudre la structure fine d’états de nombre quantique principal élevé.

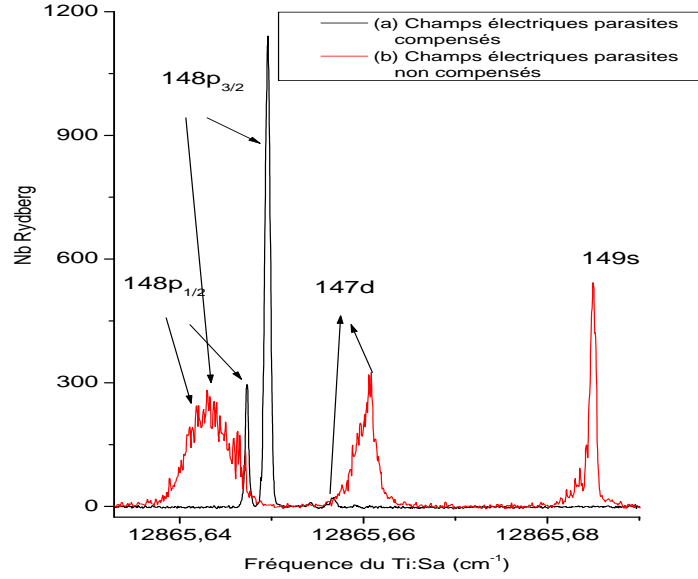


FIGURE 2.8 – Spectres de l'état $148p$, lorsque le champ électrique est compensé (a) et lorsqu'il ne l'est pas (b). En (b), la forte amplitude des états $147d$ et $149s$ caractérise la présence d'un champ parasite important ($\tan^2 \theta \sim 9$, avec $\tan(\theta) = \mu_{pd}F/(\Delta/2)$). (a) Le champ électrique est compensé, les états $148p_{1/2}$ et $148p_{3/2}$ sont résolus. Il demeure un résidu d'état $148d$ (il est à peine possible de résoudre la structure fine de l'état d , car elle n'est que de 12 MHz en champ nul).

2.3 Expérience de blocage dipolaire à résonance de Förster

La résonance de Förster est une résonance qui apparaît lorsque le niveau d'énergie d'une paire d'atome excitée est égal à l'énergie d'une autre paire comme nous l'avons déjà indiqué dans le premier chapitre. Notons que la coïncidence en énergie n'est pas le seul critère à respecter. Les transitions doivent également respecter les règles de sélection dipolaire.

Nous étudions dans ce paragraphe la résonance de Förster suivante :

$$np_{3/2}(F), |m_j| + np_{3/2}(F), |m_j| \rightarrow ns_{1/2}(F), |m_j| + (n+1)s_{1/2}(F), |m_j| \quad (2.3)$$

$$W = 2E(np) - E(ns) - E(n+1)s \quad (2.4)$$

Un écart en énergie W quasi nul est obtenu pour l'état $n=42$ $|m_j|=1/2$. Sur la figure 2.9 nous voyons que W est positif pour $n < 42$ dans le cas du césium (et $n < 38$ pour le rubidium). Le diagramme Stark nous donne une indication sur le comportement des niveaux ns et np en champ faible. Un champ électrique de faible intensité (relativement à la position du premier croisement évité avec la multiplicité) ne change presque pas le niveau d'énergie de l'état ns mais diminue le niveau d'énergie de l'état np . Il est donc possible de rendre W voisin de zéro pour $n < 42$ pour le césium (Eq.2.4), en appliquant aux atomes un champ électrique de l'ordre de quelques Volts par centimètre comme indiqué sur la figure 2.10.

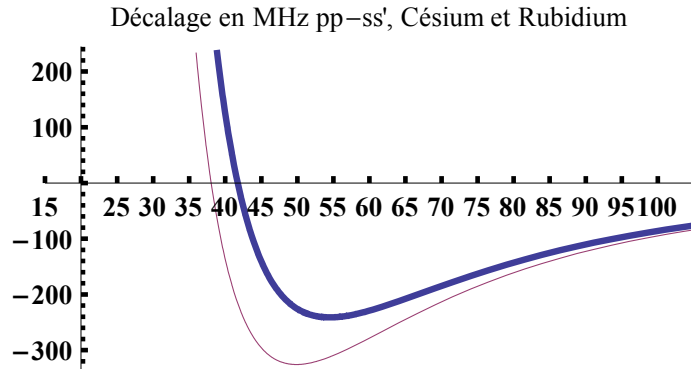


FIGURE 2.9 – Décalage à la résonance de Förster $nnp \rightarrow ns(n+1)s$ en MHz (ordonné) en fonction du nombre quantique principal n , définie comme 2.4. Trait bleu épais césium, trait orange fin rubidium.

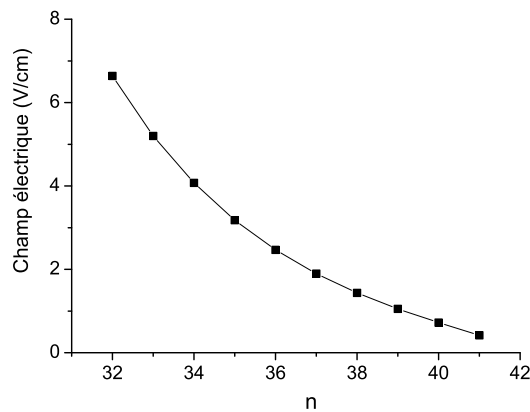


FIGURE 2.10 – Positions des résonances de Förster pour $31 < n < 42$. Le calcul est approché, le décalage Stark de l'état $np_{3/2}$ est calculé uniquement en utilisant le modèle à 2 niveaux décrit dans premier chapitre, et il est défini en cherchant le champ F tel que $\cos^2(\theta/2) = W$. Les valeurs de champ électrique de résonance sont valides à mieux que 0.05 V/cm pour $n > 35$.

L'étude expérimentale a été réalisée pour différentes valeurs du nombre quantique principal, n . Nous avons également étudié l'effet de différentes densités en fonction de la puissance du laser d'excitation et de la coupure du repompeur. Le champ électrique est créé par application d'une différence de tension aux bornes des grilles (séparées de 1.57 cm) qui nous permettent d'ioniser les atomes.

2.3.1 Résultats

L'ensemble des résultats expérimentaux a été obtenu conjointement avec Thibault Vogt [Vogt, 2006] et Matthieu Viteau [Viteau, 2008]. Parmi les résultats que nous avons obtenus, la partie concernant le blocage dipolaire avec une excitation par laser continu est présentée dans cette thèse. Nous montrerons à la fin de ce chapitre comment nous avons appliqué l'effet de blocage dipolaire à résonance de Förster à l'expérience faite à l'Institut d'Optique dans laquelle deux atomes sont manipulés.

Le décalage de la fréquence des lasers pièges par rapport à la transition $6s_{1/2}, F = 4 \rightarrow 6p_{3/2}, F = 5$ est $\delta_{PMO} \sim -15$ MHz (configuration normale de fonctionnement du piège magnéto-optique). La diode laser 1470 (waist $\omega_{1470} \sim 105 \mu\text{m}$ et puissance $\sim 2\text{mW}$) est colinéaire avec le laser Ti:Sa (waist $\omega_{TiSa} \sim 125 \mu\text{m}$ et puissance variable). Les polarisations des deux lasers sont toutes deux parallèles au champ électrique pour permettre l'excitation d'états $|m_j| = 1/2$ uniquement à partir de l'état $7s$ qui a évidemment $|m_j| = 1/2$. Le laser Ti:Sa est focalisé sur $75\mu\text{m}$ avec une puissance de 8mW . Le faisceau est envoyé sur le nuage atomique pendant 300ns en passant par un modulateur acousto-optique.

2.3.1.1 Études en fonction du nombre quantique principal

Dans cette partie de l'étude de la résonance de Förster nous avons excité des atomes avec différentes valeurs du nombre quantique principal et nous avons observé les effets de ces différents cas sur le blocage dipolaire. Une première expérience présentée sur la figure 2.11 est réalisée en faisant varier le champ électrique autour de la valeur correspondant à la résonance Förster de l'état $36p_{3/2}$. L'effet que nous observons est une limitation de l'excitation lorsque le champ électrique permet de se rapprocher de la résonance de Förster. C'est une indication qui va dans le sens d'un blocage dipolaire plus important lorsque qu'on se rapproche de la résonance.

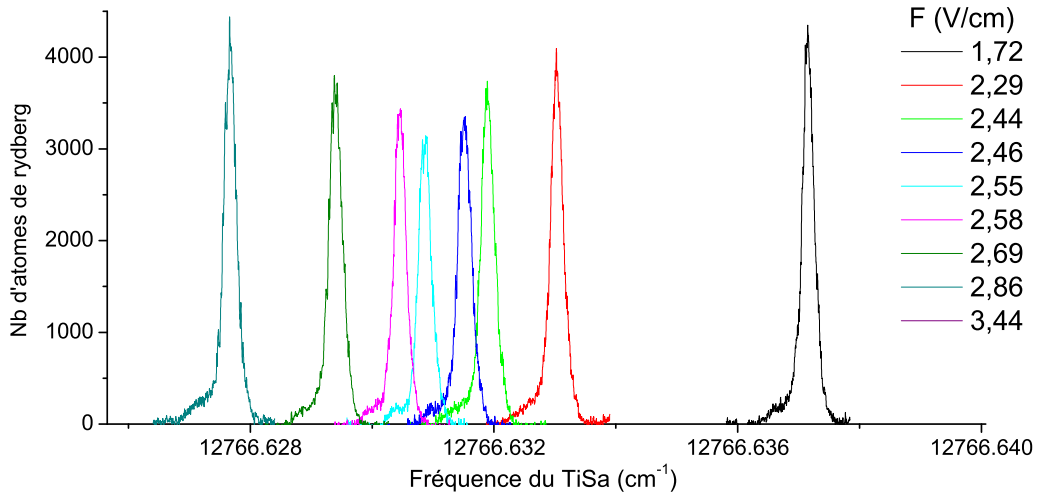


FIGURE 2.11 – Spectres d'excitation de l'état Stark $36p_{3/2}$ pour différents champs électriques autour de la résonance de Förster, mettant en évidence la limitation de l'excitation par blocage dipolaire (maximum à 2.55 V/cm sur cette figure).

Plusieurs paramètres sont mesurées au cours d'une expérience sur de blocage dipolaire. Par exemple, pour chaque valeur de champ électrique nous balayons la fréquence du laser Ti:Sa et nous enregistrons des spectres similaires à ceux de la figure 2.12 qui ont été pris pour l'état $38p_{3/2}$. Sur la figure 2.12 les spectres que nous avons réalisés pour différentes valeurs de champ électrique, à champ nul, à résonance (1.47 V/cm) et à droite de la résonance (1.75 V/cm) indiquent qu'à résonance, le nombre d'atomes

excités est plus faible que hors résonance.

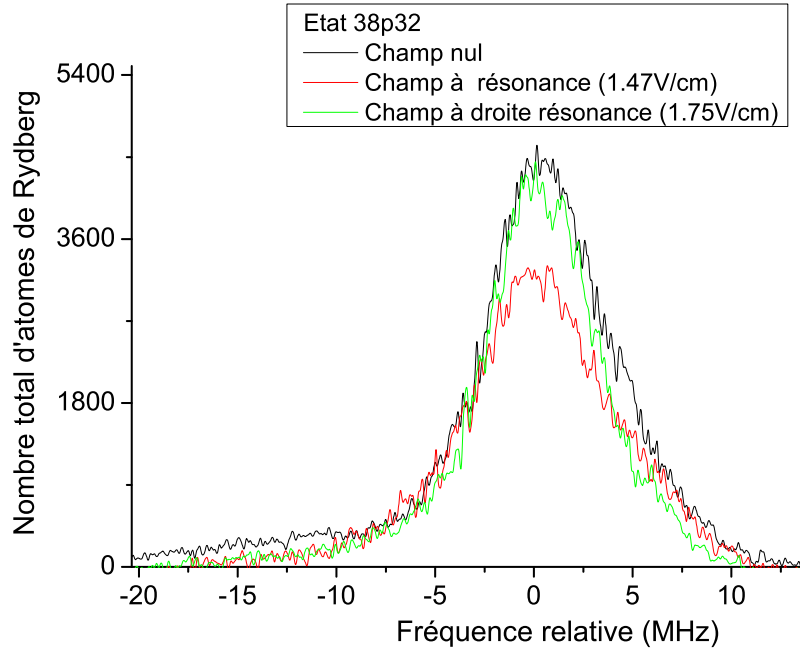


FIGURE 2.12 – Spectres de l'état $38p_{3/2}$ pour différents champs électriques, correspondant aux données de la Fig. 2.14. Le blocage de l'excitation à résonance de Förster ($F=1.47$ V/cm) est plus important au centre de la raie que sur les ailes et conduit à un élargissement apparent (mais faible) de la raie (voir figure 2.14).

Le blocage dipolaire de l'excitation peut être visible lorsque la condition $W = \sqrt{2}\mu_{sp}\mu_{s'p}d \sim \Delta\nu$ c'est à dire quand l'interaction W qui dépend de l'état considéré et de la densité d est de l'ordre de la résolution spectrale $\Delta\nu$ de l'excitation. Au centre de la résonance, pour un champ de 1.47 V/cm, la densité est de $2.5 \cdot 10^9$ at/cm³. Quand nous comparons la densité mesurée à la densité calculée en prenant une excitation de largeur 7 MHz et en remplaçant les dipôles par ceux obtenues numériquement (voir chapitre 1) nous obtenons une indication de l'importance du blocage dipolaire. Ici le calcul indique qu'avec du blocage dipolaire nous devrions obtenir une densité de $2.2 \cdot 10^9$ at/cm³. Ce chiffre est voisin de celui que nous mesurons expérimentalement, ce qui nous indique que nous sommes dans un régime de blocage de l'excitation.

Afin de quantifier le blocage dipolaire nous avons fait des spectres de l'état $36p_{3/2}$ pour différentes valeurs de champ électrique. Le rapport du nombre d'atomes excités au centre de la raie de résonance pour différentes valeurs de champ électrique au nombre d'atomes excités au centre de la raie de résonance à champ nul nous permet de faire une mesure du blocage dipolaire. Dans ce cas nous obtenons 30% de blocage à résonance comme indiqué sur la figure 2.13.

Parmi les données enregistrées simultanément au cours de cette étude, certaines sont reprises sur la figure 2.14. Nous y indiquons le nombre d'atomes excités dans l'état $38p_{3/2}$ et les atomes dans l'état $38s_{1/2}$ ainsi que le nombre d'ions et la largeur à mi-hauteur de chaque spectre $38p_{3/2}$ obtenu en changeant l'amplitude du champ électrique

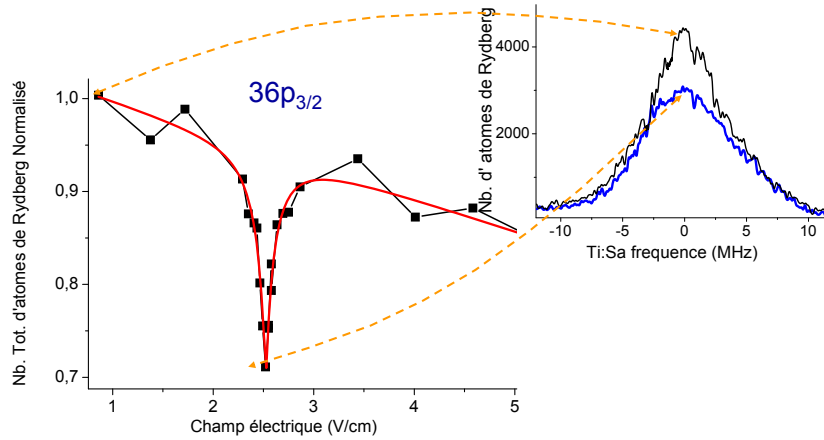


FIGURE 2.13 – Efficacité du blocage dipolaire de l'état $36p_{3/2}$ en fonction de la position de la valeur du champ électrique autour de la résonance de Förster. L'efficacité est mesurée en comparant le nombre d'atomes excités à champ nul et en champ électrique. Un blocage maximum de 30% est atteint à résonance.

autour de la résonance de Förster. Sur la figure 2.14 on peut voir que le nombre d'atomes dans l'état $38s$ varie de façon symétrique à $38p_{3/2}$. En effet lors de l'excitation $38p_{3/2}$ le transfert résonant d'excitation permet de peupler l'état $38s$. Le maximum de transfert est bien atteint au centre de la raie. La diminution du signal $38p_{3/2}$ est due au blocage en champ comme nous l'avons évoqué plus haut.

On peut également noter qu'avant la résonance le nombre d'ions présent est relativement constant et représente environ 1% du nombre d'atomes de Rydberg excités. Le nombre d'ions augmente une fois la résonance passée et atteint environ 2% du nombre d'atomes de Rydberg excités. Ceci est le fait de collisions froides rendues possibles par des forces dipolaires attractives. Comme on peut le voir sur la figure 2.15 lorsque le champ électrique permet d'exciter des atomes à droite de la résonance de Förster, les paires d'atomes npnp proches sont excités sur des courbes de potentiel attractives responsables de l'ionisation Penning. Ces collisions ionisantes ont été mises en évidence par [Li *et al.*, 2005]. Elles seront expliquées dans le chapitre 4. Le faible nombre d'ions que nous mesurons ne cause pas de blocage supplémentaire notable en champ ni ne provoque d'élargissement de raies.

Afin de visualiser l'importance du blocage dipolaire de l'excitation pour différentes valeurs du nombre quantique principal autour de chacune des résonances de Förster correspondantes nous avons compilé plusieurs spectres sur la figure 2.16. Nous avons représenté sur la figure 2.16a l'amplitude normalisée à 1 en champ nul, du nombre d'atomes détectés dans les expériences de blocage dipolaire à résonance de Förster pour différents états $n=25,33,36,38$ et $40 p_{3/2}$. Chaque résonance est obtenue en appliquant un champ électrique durant l'excitation (300ns). L'impulsion électrique arrive 700ns après le début de l'excitation (dans cette configuration, car nous utiliserons plus loin un interrupteur très rapide, dont le temps de montée est inférieur à 10ns). La chute de l'amplitude au voisinage de la résonance de Förster est visible pour tous les états étudiés et atteint près de 30%, sauf pour $n=25$ qui est plus faible. On distingue

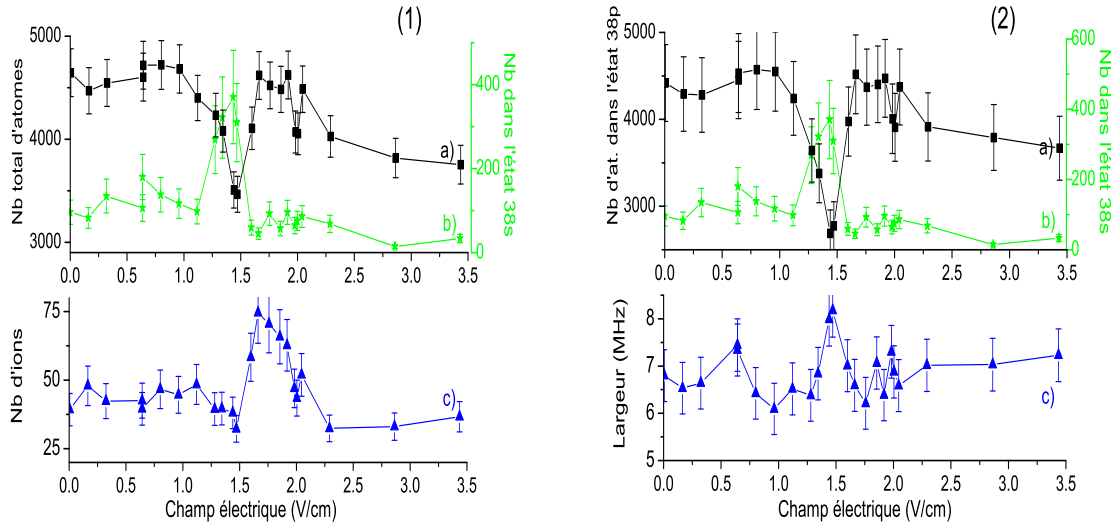


FIGURE 2.14 – Etat $38p_{3/2}$. (1) Nombre total d'atomes de Rydberg (carrés), nombre d'atomes dans l'état 38s (étoiles) et nombre d'ions (triangles) en fonction du champ électrique. La résonance de Förster est obtenue pour un champ $F = 1.46$ V/cm (qui correspond à la position calculée). (2) Nombre d'atomes dans l'état $40p_{3/2}$ (carrés) et nombre d'atomes dans l'état 38s (étoiles). De l'ordre de $1/5$ du signal p est 'transféré' vers les états 38s et 39s, ceci n'explique pas la diminution observée sur le signal p, due en grande partie au blocage de l'excitation. La largeur de raie (triangles) montre un faible élargissement (FWHM) à résonance de Förster, de 6.5 à 8.5 MHz.

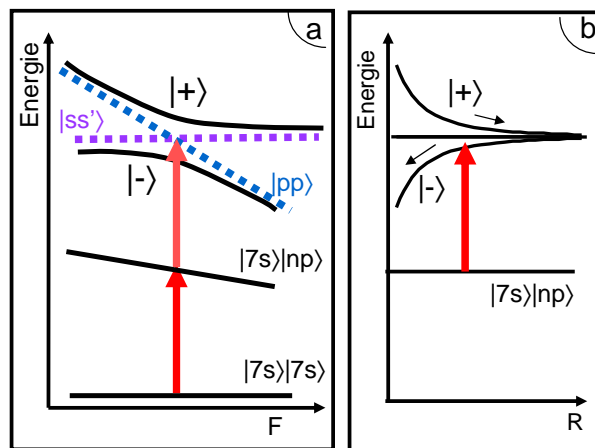


FIGURE 2.15 – Excitation d'une paire d'atome à résonance de Förster. a) L'interaction dipôle-dipôle conduit à un croisement évité entre les états $npnp$ et $ns(n+1)s$. Les états propres sont donnés par $|+\rangle = (pp + ss')/\sqrt{2}$ et $|-\rangle = (pp - ss')/\sqrt{2}$. b) L'énergie des états $|+\rangle$ et $|-\rangle$ dépend de la distance interatomique. L'état $|+\rangle$ est répulsif alors que l'état $|-\rangle$ est attractif.

également une légère diminution de l'excitation avec l'augmentation de l'amplitude du champ électrique. Ceci s'explique par des couplages entre états Stark qui réduisent la probabilité d'excitation de l'état p. Sur la figure 2.16b nous voyons le nombre d'ions correspondant aux données de la figure 2.16a.

Tant que le champ électrique est inférieur à la valeur à résonance le nombre d'ions semble légèrement diminuer. Ce nombre d'ions atteint un minimum à résonance puis il augmente de façon très nette comme on peut l'observer sur les courbes $n=36, 38$ et $40p_{3/2}$. Le nombre d'ions reste inférieur à 2% du nombre total d'atomes de Rydberg, ce qui n'est pas suffisant pour masquer le blocage dipolaire.

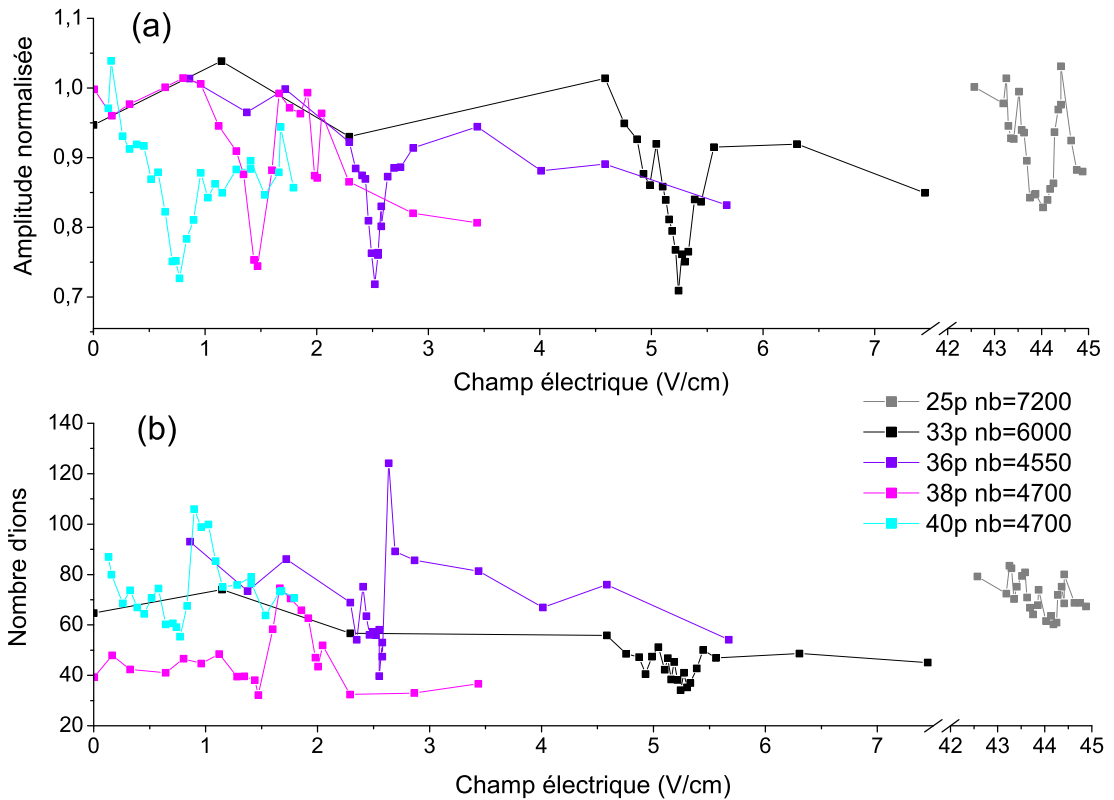


FIGURE 2.16 – (a) Nombre d'atomes de Rydberg normalisé, en fonction du champ électrique, pour différents états $np_{3/2}$: $40p_{3/2}$, $38p_{3/2}$, $36p_{3/2}$ et $33p_{3/2}$. Chaque point correspond à l'amplitude maximum de la raie d'excitation Rydberg. Le signal est normalisé à 1 lorsque le signal est approximativement maximum, en général en champ nul, excepté pour $n = 25$ pour lequel le signal est normalisé à 1 pour 43.17 V/cm. Nous indiquons les nombres d'atomes de Rydberg maximum (i.e. pour l'amplitude 1) correspondants dans la légende. La puissance du laser Ti:Sa est maintenue constante (8 mW) et la puissance de la diode 1470 est de 2mW. Un blocage de l'excitation est présent pour chacun des états au niveau des résonances de Förster (les champs de résonances expérimentaux sont $F = 44.03, 5.27, 2.53, 1.46, \text{ et } 0.75$ V/cm pour, respectivement, $n=25, 33, 36, 38$ et 40). (b) Pour chacun des états, les nombres d'ions sont relevés simultanément avec les nombres d'atomes de Rydberg. Il apparaît une résonance sur le nombre d'ions pour les états $n > 36$, sur l'aile droite des résonances de Förster.

2.3.1.2 Effet de la puissance d'excitation et de la densité

Nous nous sommes intéressé à la caractérisation du blocage dipolaire lorsque les densités d'atomes changent. Nous avons fait varier la densité initiale d'atome dans le piège magnéto-optique en coupant pendant un temps déterminé le faisceau de la diode laser repompeur ou bien en faisant varier l'intensité du laser Ti:Sa, afin de vérifier la dépendance de la distance moyenne entre atomes sur l'amplitude du blocage dipolaire. Nous cherchons également à déterminer l'effet de saturation par puissance, car dans ce cas le blocage dipolaire peut être masqué.

Sur la figure 2.17 nous avons représenté le nombre d'atomes de Rydberg excités en fonction de la puissance du laser Ti:Sa pour deux valeurs de champ électrique, l'une à résonance ($F=2.53$ V/cm) et l'autre éloignée de la résonance ($F=1.37$ V/cm). Nous indiquons également les largeurs de raies pour deux densités initiales d'atomes ($D \sim 8 \times 10^9$ cm⁻³ et $D/3$) en fonction de la puissance du laser Ti:Sa loin de la résonance de Förster.

On peut voir l'effet de saturation par puissance qui apparaît dès 4mW ($I_{\text{sat}}=45$ W/cm²), sur la figure 2.17a. La saturation apparaît plus prononcée à résonance de Förster. Lorsque la densité initiale est changée (figure 2.17b) il n'y a pas d'effet visible sur la largeur de raie qui ne dépend que de la puissance du laser d'excitation. La largeur de raie initiale de 5.5MHz est compatible avec la largeur spectrale de l'excitation de 6MHz. Au delà de 6mW la puissance du laser Ti:Sa augmente suffisamment pour permettre des excitations d'atomes de Rydberg plus proche que la limite donnée par l'interaction dipôle-dipôle et alors la largeur de raie augmente.

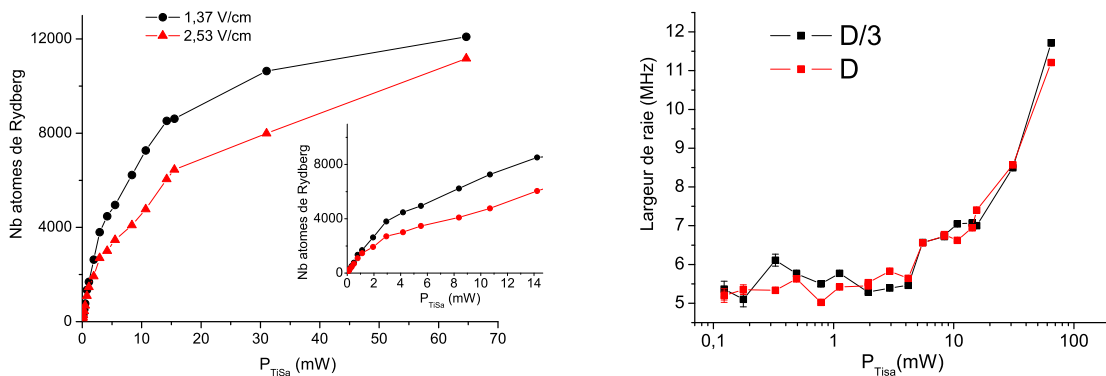


FIGURE 2.17 – Étude de l'état $36p_{3/2}$ en fonction de la puissance du laser d'excitation. À gauche, nombre d'atomes de Rydberg excités à résonance de Förster (champ électrique $F=2.53$ V/cm) et loin de la résonance de Förster (champ électrique $F'=1.37$ V/cm) pour une densité initiale d'atomes $D \sim 8 \times 10^9$ cm⁻³. À droite, largeurs de raie pour deux densités initiales d'atomes D et $D/3$, avec un champ électrique $F'=1.37$ V/cm éloigné de la résonance de Förster.

Nous venons de voir que la puissance du laser d'excitation influe sur les largeurs de raies. Afin de mieux caractériser l'effet de la puissance sur le blocage dipolaire, nous

avons mesuré l'excitation relative d'atomes de Rydberg à résonance et hors résonance en fonction de la puissance du laser d'excitation pour deux densités différentes. Lorsque la puissance augmente jusqu'à 10 mW le blocage dipolaire augmente également. On note qu'à faible puissance peu d'atomes sont excités et leur nombre varie de façon importante à chaque répétition de l'expérience. L'effet de blocage est plus prononcé pour la densité D que pour la densité D/3 car l'interaction dipôle-dipôle dépend de la densité moyenne.

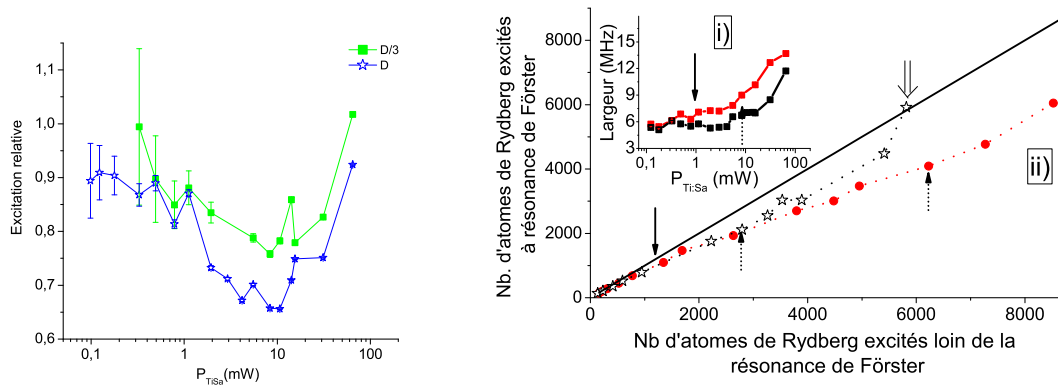


FIGURE 2.18 – Comportement de l'excitation de l'état $36p_{3/2}$. Rapports des amplitudes d'excitation Rydberg obtenues à résonance de Förster (Champ $F=2.53$ V/cm) et loin de résonance (Champ $F'=1.37$ V/cm) pour les deux densités $D \sim 8 \times 10^9$ at/cm $^{-3}$ (étoiles) et D/3 (carrés), en fonction de la puissance du laser Ti:Sa. (1) Nombre d'atomes excités à résonance de Förster en fonction du nombre d'atomes excités loin de résonance (Champ F') pour une même puissance laser et une même densité initiale d'atome D (ronds pleins) ou D/3 (étoiles vides). (2) Elargissements des raies d'excitation pour les champs F et F' (courbes du haut et du bas respectivement) en fonction de la puissance du laser Ti:Sa. L'absence de blocage serait caractérisée Fig. (a) par une valeur constante et Fig. (b)(2) par une droite de pente égale à 1. Le début de la saturation de l'excitation par le blocage dipolaire est caractérisé par les flèches continues alors que le début de la limitation du blocage par la saturation en puissance est indiqué par les flèches brisées (à 10mW). La double flèche indique la saturation quasi complète de la saturation pour la densité D/3 (cf Fig. 2.17).

Le résultat indiqué sur la figure 2.18a montre que l'effet maximal du blocage pour la densité D (carrés) atteint plus de 30% tandis qu'il atteint plus de 20% pour la densité D/3 (étoiles). On s'attend à un rapport de 1/3 et pas 2/3 comme ici, la densité donnée n'est valable qu'à $\pm 50\%$. Au delà de 10 mW de puissance du laser d'excitation l'efficacité du blocage diminue et le phénomène de saturation par puissance apparaît.

Une autre représentation est donnée figure 2.18b. Le nombre d'atomes excités à résonance de Förster est donné en fonction du nombre d'atomes excités hors résonance pour les deux densités D (ronds) et D/3 (étoiles). Une droite de pente 1 est attendue en absence de blocage quelle que soit la densité. Les deux densités présentent le même comportement jusqu'à ce que le nombre d'atomes excités à résonance de Förster atteigne 2000.

On voit que pour la densité D/3 (étoiles) dès que le nombre d'atomes excités dépasse les 2700 (10mW de Ti:Sa) la saturation a pour effet de ramener les points vers la droite de pente 1 indiquant la suppression du blocage. En revanche pour la densité D, une saturation apparaît vers 6500 atomes excités (10 mW de Ti:Sa). Nous voyons donc

que le comportement du blocage dipolaire dépend de la densité initiale d'atomes. Les largeurs de raies traduisent le fait que, pour une résolution spectrale donnée, lorsque la densité initiale d'atome augmente, le blocage dipolaire augmente et les largeurs 'apparentes' augmentent aussi. La figure 2.18b indique alors que le blocage dipolaire est plus important à résonance de Förster.

Largeur de résonance

Pour terminer cette étude nous avons fait des mesures de largeur de résonance au voisinage de la résonance de Förster de l'état $41p_{3/2}$, pour deux puissances du laser Ti:Sa (8 mW et 20 mW) comme indiqué sur la figure 2.19 (Le champ électrique est également indiqué en fonction du décalage Stark qu'il induit sur l'état $41p_{3/2}$). Le nombre d'atomes à résonance de Förster passe de 3000 pour 8 mW à 5000 pour 20 mW. Nous voyons que le profil de raie est relativement piqué avec un maximum pour la valeur de résonance d'environ 0.40 V/cm.

La largeur de résonance varie de 20 ± 5 MHz pour une puissance d'excitation de 8 mW à 90 ± 30 MHz pour 20 mW alors que la puissance de saturation est d'environ 10 mW. On remarque également une asymétrie à droite de résonance pour 20 mW. Les largeurs de raies sont supérieures à celles attendues, calculées dans [Vogt, 2006], qui sont de 20 MHz à 8 mW et 35 MHz à 20 mW. De la même façon nous mesurons des largeurs de raies dans le cas du $38_p3/2$ de 50 ± 10 MHz, alors que le même modèle que précédemment indique une largeur de 33 MHz. Ce phénomène pourrait être causé par un mécanisme de diffusion d'excitations tel que décrit dans [Mourachko et al., 1998]. En effet, la mise en évidence d'effets à plusieurs corps dans un gaz d'atomes de Ryberg gelé par [Mourachko et al., 1998] peut être à l'origine de l'élargissement de la largeur de résonance, par exemple par des transferts toujours résonants comme

$$n_p + n_s \leftrightarrow n_s + n_p \quad (2.5)$$

$$n_p + n_{s'} \leftrightarrow n_{s'} + n_p \quad (2.6)$$

qui en favorisant la migration des 'produits' de réaction permet à des zones où des paires pp sont résonantes avec des paires ss' de renouveler le processus. Des détails sur cette approche peuvent être trouvés dans [Mourachko et al., 2004; Anderson et al., 1998; Akulin *et al.*, 1999; Westermann et al., 2006].

2.3.2 Conclusion

Nous avons montré qu'il est possible d'étudier expérimentalement une résonance de Förster à l'aide d'une excitation continue de grande résolution spectrale (6 MHz). Pour cela nous nous sommes assuré qu'en changeant le nombre quantique principal l'effet de blocage observé est compatible avec les positions calculées de la résonance de Förster. L'effet de 'déblocage' par saturation par puissance observé, nous indique que l'observation du blocage dipolaire de l'excitation est sensible à l'élargissement des raies par puissance.

Nous avons observé une différence importante du blocage dipolaire lorsque le champ électrique positionne l'état excité à résonance par rapport au cas hors résonance. Les

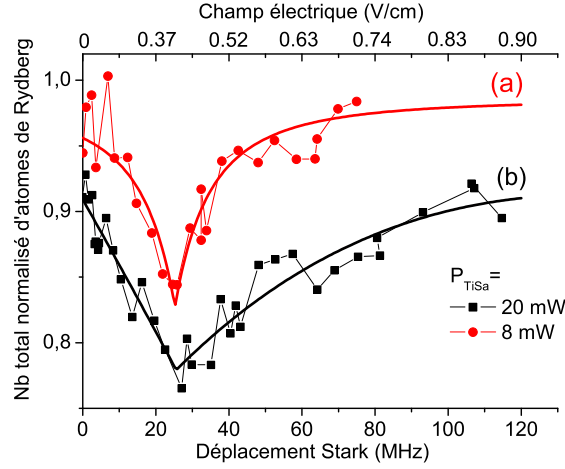


FIGURE 2.19 – Nombre normalisé d’atomes excités en fonction du décalage Stark (V/cm et MHz) de l’état $41p_{3/2}$, autour de la résonance de Förster pour $n=41$. Le champ électrique est converti en fréquence en utilisant le déplacement Stark expérimental. Les deux courbes correspondent à deux nombres différents d’atomes excités à résonance de Förster, 3000 (a) et 5000 (b), obtenus pour deux puissances laser différentes, 8 et 20 mW respectivement. Le facteur de normalisation est pris comme étant le nombre d’atomes excités pour un décalage Stark plus élevé (200 MHz). Les ajustements utilisent une loi empirique (voir [Vogt, 2006] p197). Les largeurs (FWMH) des deux résonances de blocage sont 20 ± 5 MHz et 90 ± 30 MHz.

faibles champs électriques nécessaires pour changer l’intensité du blocage dipolaire montrent qu’il est possible d’utiliser cette propriété comme interrupteur pour contrôler l’interaction dipôle-dipôle entre atomes de Rydberg. Nous avons également vu que des ions se forment lorsqu’une paire d’atomes excités se trouve du côté de la résonance de Förster où le potentiel est attractif. Nous reviendrons sur ce point dans le chapitre 4.

L’effet de blocage à résonance de Förster donne une efficacité maximum de 30% dans nos expériences, principalement limité par le nombre quantique principal des états excités. En effet pour $n=41$ le ‘rayon’ de blocage est limité à $R=4 \mu\text{m}$. L’utilisation d’états plus excités comme $n=100$ permettrait d’atteindre un ‘rayon’ de blocage de l’ordre de $R=20 \mu\text{m}$. En utilisant des micro-ondes à la place d’un champ statique [Pillet *et al.*, 1987], il est possible de coupler l’état excité à des états dont l’énergie de liaison est plus grande ou plus faible [Bohlouli-Zanjani *et al.*, 2007].

En conclusion, nous avons montré que plusieurs paramètres sont à prendre en compte afin d’éviter de masquer les effets de blocage dipolaire à résonance de Förster. Trois points sont critiques pour l’observation du blocage dipolaire. Le premier point est le contrôle de champs parasites qui peuvent être des champs externes (radio-fréquences, micro-ondes), des champs statiques dans l’enceinte à vide (charges présentes à la surface des fenêtres) ou dûs à la présence d’ions durant la séquence d’excitation. Cela est d’autant plus important que la résonance choisie est à grand n . Le deuxième point est qu’il faut également s’assurer que les transitions ne sont pas élargies par puissance. Le travail à faible puissance est nécessaire pour qu’il n’y ait pas d’excitations rendues possibles par saturation i.e. pour éviter que des paires proches puissent être

excitées. Le troisième point est de travailler avec la résolution spectrale la plus grande possible. La prise en compte de l'ensemble des états dégénérés pour le calcul des interactions indique également une limitation du blocage dans certaines configurations [Walker and Saffman, 2005]. Nous reviendrons sur ce point dans l'étude de l'expérience à deux atomes. D'autres études seront nécessaires pour comprendre les largeurs de raies mesurées et pour déterminer le lien éventuel de la diffusion d'excitations. L'étude du blocage dipolaire d'un nombre limité d'atomes permettrait de mieux contrôler ces effets.

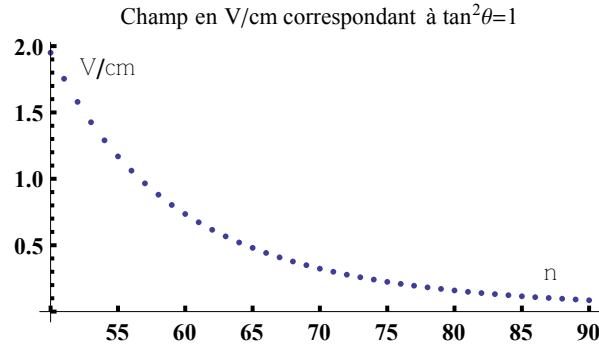


FIGURE 2.20 – Champs électriques correspondant à $\tan^2\theta = 1$ pour $n= 50$ à $n=90$.

2.4 Expérience de contrôle du blocage dipolaire par un champ électrique

Le but de cette série d'expérience est de caractériser le blocage dipolaire de l'excitation par l'intermédiaire d'interactions entre dipôles 'permanents' induits par champ obtenus grâce aux couplages des états atomiques par effet Stark. Dans cette série d'expériences, les atomes sont excités vers des états de Rydberg $np_{3/2}$ ou $np_{1/2}$ depuis l'état $7s$ (n variant de 40 à 85) en balayant la fréquence du laser Ti:Sa pour différents champs électriques appliqués.

Rappels sur l'effet du champ électrique

Nous avons indiqué dans le premier chapitre qu'il est possible d'induire une interaction dipôle dipôle du premier ordre lorsqu'on applique un champ électrique permanent aux atomes. Nous prenons l'exemple du système à 2 niveaux entre les états np et $(n-1)d$. Le couplage est défini pour tout n en fonction du paramètre $\tan^2\theta$, avec $\tan\theta = \frac{-\mu_{pd}F}{\Delta_{pd}/2}$, μ_{pd} est le dipôle de transition entre l'état np et l'état $(n-1)d$, Δ_{pd} la différence d'énergie à champ nul entre E_p et E_d et F est l'amplitude du champ électrique. Lorsque le champ électrique est suffisamment important, nous fixons par exemple ici $\tan^2\theta=1$ (voir figure 2.20), le couplage entre états np et $(n-1)d$ permet d'obtenir un dipôle permanent dont l'effet est visible, via le blocage dipolaire, sur les spectres expérimentaux. Le blocage dipolaire de l'excitation est valable pour tout n (à condition d'avoir une résolution expérimentale suffisante) contrairement au cas Förster qui nécessite de trouver des coïncidences en énergie accessibles expérimentalement. Nous nous attendons donc à une diminution du nombre d'atomes excités en fonction du nombre quantique principal puisque les dipôles de transition varient comme n^2 , de la densité d'atomes et du champ électrique. Nous vérifierons que le nombre d'ions produits durant l'excitation reste faible et ne nous empêche pas d'observer le blocage dipolaire.

2.4.1 Résultats

Rappel des conditions expérimentales

L'intensité du laser Ti:Sa est choisie de manière à être sous le seuil de saturation

par puissance mais proportionnelle à n^3 pour palier à la diminution en n^{-3} de la force d'oscillateur. La puissance du laser Ti:Sa utilisée pour l'excitation de l'état $50p_{3/2}$ est ainsi seulement de 7.8 mW (correspondant à une intensité pic de 88 W/cm^2 à comparer à l'intensité de saturation évaluée à $\sim 121 \text{ W/cm}^2$) et de 36 mW pour l'excitation de l'état $85p_{3/2}$. Le décalage de la fréquence des lasers pièges par rapport à la transition $6s_{1/2}, F = 4 \rightarrow 6p_{3/2}, F = 5$ est $\delta_{PMO} \sim -15 \text{ MHz}$ (configuration normale de fonctionnement du piège magnéto-optique). La diode laser 1470 est collimatée au niveau du PMO (waist $\omega_{1470} \sim 105 \mu\text{m}$ et puissance $\sim 2 \text{ mW}$) suivant un axe faisant un angle de 67.5° par rapport à l'axe de propagation du faisceau laser Ti:Sa (waist $\omega_{TiSa} \sim 75 \mu\text{m}$ et puissance variable)⁴. Le schéma de principe est donné sur la figure 2.4. Les polarisations des deux lasers sont toutes deux parallèles au champ électrique pour permettre l'excitation de l'état $|m_j| = 1/2$ uniquement.

2.4.1.1 Étude en champ

Un résultat typique montrant l'effet du couplage entre niveaux Stark responsable du phénomène de blocage dipolaire est présenté sur la figure 2.21. Deux spectres ont été réalisés en balayant la fréquence du laser Ti:Sa autour de la fréquence de résonance $7s \rightarrow 85p_{3/2}$ pour deux valeurs du champ électrique, (0 V/cm et 0.13 V/cm). L'excitation de l'état $85p_{3/2}$ est fortement réduit lorsqu'un champ électrique de l'ordre de $\tan^2(\theta) > 1$ est appliqué. La diminution relative du nombre d'atomes excités est d'environ 66% au centre de la raie. On remarque immédiatement que la possibilité d'utiliser des atomes dans des états de Rydberg plus élevés que dans nos expériences à résonance de Förster (blocage de l'ordre de 30%, $n=38$), permet d'atteindre un blocage dipolaire plus important en champ électrique (66%, $n=85$)

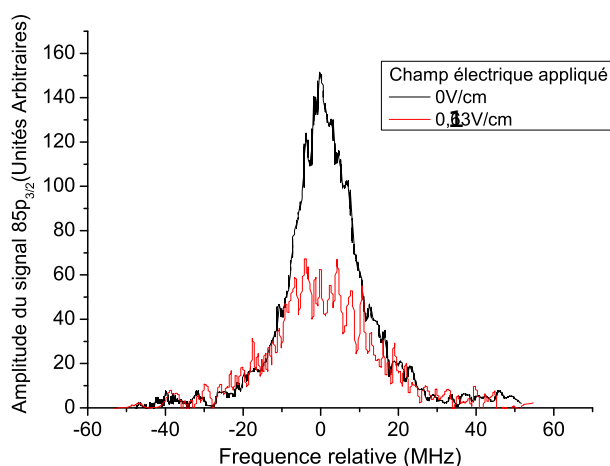


FIGURE 2.21 – Superposition de deux spectres obtenus à 0 V/cm et 0.13 V/cm pour l'état $85p_{3/2}$. La puissance du Ti:Sa est de 54 mW. La fréquence du Ti:Sa est ramenée à 0 au centre de la résonance.

4. le positionnement des waists au niveau du PMO se fait simplement en utilisant la saturation laser de l'excitation : si l'intensité laser est supérieure à l'intensité de saturation au point de focalisation, le minimum d'excitation est obtenu lorsque ce point de focalisation se trouve sur le centre du piège magnéto-optique.

Nous avons réalisé plusieurs spectres similaires à celui de la figure 2.21 pour l'état $75p_{3/2}$ en fonction de plusieurs valeurs du champ électrique. La figure 2.22 est le résultat de la superposition de ces spectres. La position du centre de chaque raie suit la courbe Stark du niveau $75p_{3/2}$. La diagonalisation de la matrice d'interaction à deux niveaux np et $(n-1)d$ en champ permet d'obtenir une valeur approchée du décalage Stark :

$$\Delta_{pd}(n)/2 - \sqrt{(\Delta_{pd}(n)/2)^2 + (\mu_{pd}F)^2} \quad (2.7)$$

On voit immédiatement la décroissance de l'amplitude du signal Rydberg qui correspond à l'effet de blocage. Cependant, il faut noter que, même en l'absence d'interaction dipôle-dipôle, une diminution de l'excitation Rydberg est attendue. En effet le nombre quantique l n'est plus un état propre du système. La probabilité d'exciter un atome dépend du champ électrique appliqué comme indiqué dans la formule :

$$V = E_{|np(F),np(F)\rangle} = 4 \underbrace{a_p(\theta)a_d(\theta)}_{f(\theta)} \frac{\mu_{pd}^2(1 - 3(\cos \Theta)^2)}{4\pi\epsilon_0 R^3} \quad (2.8)$$

où l'on reconnaît l'expression 1.28 de l'interaction dipôle-dipôle entre deux dipôles alignés (Θ est l'angle entre les l'axe de quantification et l'axe internucléaire), a_p et a_d sont les amplitudes caractérisant les états $np_{3/2}$ et $(n-1)d_{5/2}$ dans l'état Stark $np_{3/2}(F)$ et pour un système à deux niveaux $f(\theta)=\sin^2 \theta$.

Afin de caractériser l'amplitude du blocage dipolaire en fonction du nombre quantique principal, nous avons réalisé des spectres en champ électrique pour différents états $np_{3/2}$, que nous avons regroupés dans la figure 2.23. Chaque point est normalisé à 1, en prenant la valeur au centre de la raie à 0V/cm comme valeur de référence. La figure 2.23b présente les mêmes données en fonction de $\tan^2(\theta)$ qui normalise la dépendance en champ pour tout n . La diminution de la probabilité d'exciter l'état np en champ électrique donné par le facteur $f(\theta)$ est représentée en trait noir continu. Mis à part l'état $40p_{3/2}$ tous les états montrent une diminution significative du nombre d'atomes excités lorsque le champ électrique augmente. Visiblement l'effet du blocage dipolaire augmente avec le nombre quantique principal.

Etats $np_{1/2}$ en champ électrique

Nous avons fait la même étude que précédemment avec les états $np_{1/2}$, dans les mêmes conditions expérimentales. L'écart en énergie entre les paires pp et ss' est plus important pour les états $np_{1/2}$ que pour les paires $np_{3/2}$, ce qui supprime dans le cas $np_{1/2}$ une contribution de l'interaction van der Waals en champ nul. Le choix de ces états $j=1/2$ permet de travailler avec une seule valeur de $|m_j|=1/2$ sur l'axe de quantification. Lors de l'étude théorique nous réduisons alors le nombre d'états qui sont couplés entre eux, et la comparaison entre expérience et théorie est plus simple (voir par exemple l'annexe A de [Vogt, 2006]). Nous avons réalisé des spectres en champ électrique (abscisse normalisée par le paramètre $\tan^2(\theta)$) pour différents états $np_{1/2}$, que nous avons regroupés dans la figure 2.24. Chaque point est normalisé à 1, en prenant la valeur au centre de la raie à 0 V/cm comme valeur de référence. La diminution

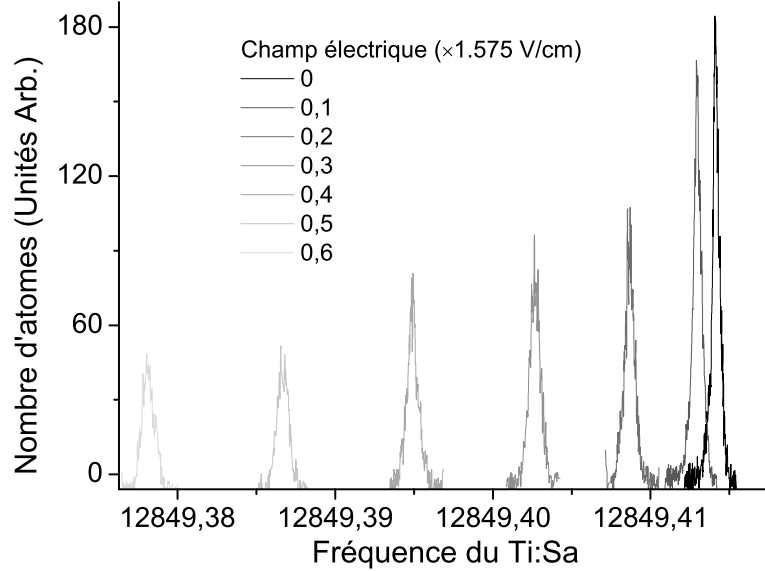


FIGURE 2.22 – Spectres de l'état $75p_{3/2}$, pour différents champs électriques (du fait de la polarisabilité négative des états $np_{3/2}$ du césium, la fréquence de résonance du laser Ti:Sa est une fonction décroissante du champ électrique). La diminution du signal en champ électrique est beaucoup plus importante qu'attendue lorsqu'on ne considère que la diminution de la probabilité d'excitation liée au couplage Stark des niveaux. Il faut prendre en compte l'interaction dipôle-dipôle pour comprendre cette diminution du signal, principalement due au blocage dipolaire.

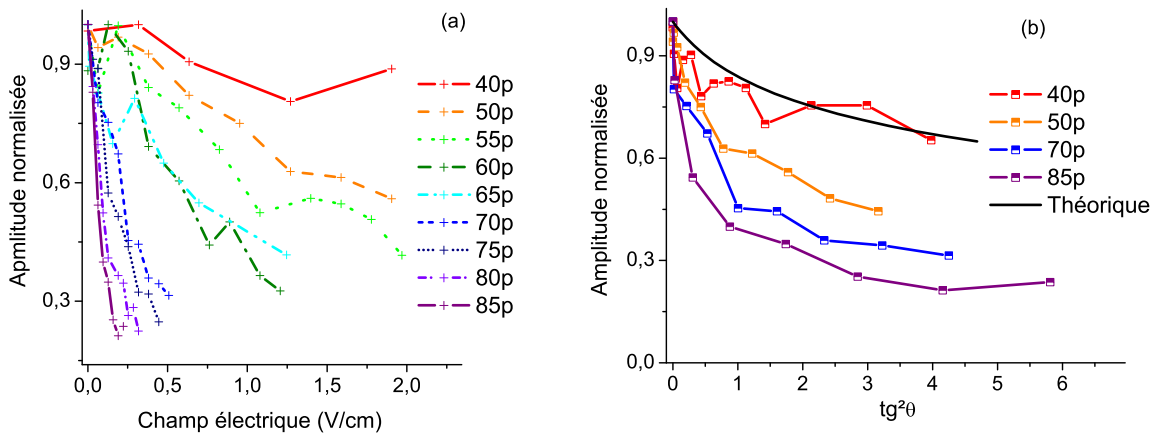


FIGURE 2.23 – (a) Variation de l'amplitude d'excitation Rydberg pour $n=40-85$, en fonction du champ électrique. La puissance du laser Ti:Sa varie en n^3 pour compenser la diminution de la force d'oscillateur en n^{-3} . (b) Données de la courbe (a) pour quelques états n en fonction du paramètre normalisé $\tan^2 \theta$. La courbe noire représente la diminution de l'amplitude $a_p(\theta)$ attendue sans interactions entre atomes.

de l'excitation est quasiment identique à celle obtenue pour $np_{3/2}$ (le dipôle de transition est $\mu_{p_{1/2}d_{3/2}} = 3082.3 \text{ u.a.} = 0.957 \mu_{p_{3/2}d_{5/2}}$).

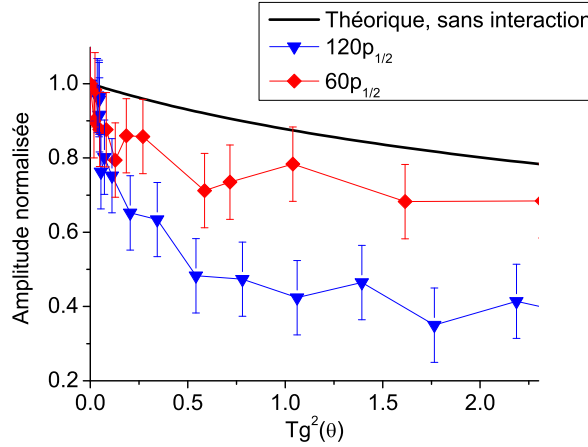


FIGURE 2.24 – (a) Variation de l'amplitude d'excitation Rydberg en fonction du paramètre normalisé $\tan^2 \theta$ pour les états $60p_{1/2}$ et $120p_{1/2}$. La courbe noire représente la diminution de l'amplitude attendue, $a_p(\theta)$, sans saturation par puissance et sans interaction entre atomes .

Un exemple de mesure de blocage dipolaire à n élevé est donnée sur la figure 2.25. La figure 2.25 représente le nombre d'atomes excités en fonction de la fréquence à résonance du laser Ti:Sa (184mW)⁵, à champ nul et en champ. L'effet du blocage de l'excitation est nettement visible avec une diminution d'un facteur voisin de 3 sur le spectre de la figure 2.25.

2.4.1.2 Étude en densité et en puissance

Nous avons étudié la dépendance du blocage dipolaire en fonction de la densité d'atomes initialement dans l'état $7s$. Afin d'obtenir une variation de la densité atomique dans l'état $7s$, nous contrôlons le nombre d'atomes dans l'état $6s_{1/2}$, $F = 4$ (à intensité laser de la diode 1470 constante) en coupant le laser repompeur pendant une durée de 0 à 1ms , ce qui nous permet de transférer une partie de la population du niveau $F=4$ vers le niveau $F=3$ ⁶.

Nous avons également fait varier l'intensité du laser Ti:Sa lors de l'excitation de l'état $70p_{3/2}$ pour deux densités d'atomes dans l'état $7s$ (voir la figure 2.26). Dans un cas le laser repompeur est présent en continu ($D1=4 \pm 0.5 \times 10^9 \text{ at/cm}^3$) et dans l'autre il est coupé pendant $200\mu\text{s}$ ($D2=2 \pm 0.5 \times 10^9 \text{ at/cm}^3$). L'expérience est reproduite de

5. l'intensité de saturation est environ 4 fois plus importante pour l'état $np_{1/2}$ que pour l'état $np_{3/2}$. Cette valeur vient du fait que le coefficient de photo-absorption des transitions $7s \rightarrow np_{3/2}$ ou $np_{1/2}$ reflète le poids statistique des deux sous niveaux de structure fine, soit 2. De plus la partie angulaire du moment dipolaire donne un rapport de $\sqrt{2}$, qui apparaît au carré avec le moment dipolaire lorsqu'on calcule le coefficient d'absorption d'Einstein. Au final il y a un facteur 4 pour l'intensité de saturation entre $np_{1/2}$ et $np_{3/2}$.

6. une coupure de $200\mu\text{s}$ diminue d'un facteur 2 la densité dans le piège

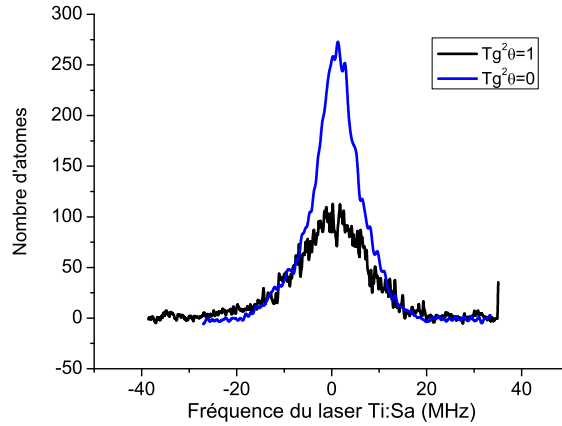


FIGURE 2.25 – Spectres du niveau $120p_{1/2}$ en fonction de la fréquence du laser Ti:Sa (rapportée à 0 au centre de la raie), pour deux champs électriques, 0 mV/cm ($\tan^2 \theta = 0$) et 17.6 mV/cm ($\tan^2 \theta = 1$.)

façon identique en champ nul et pour un champ correspondant à $\tan^2 \theta = 1$.

Sur la figure 2.26a nous voyons que pour une densité donnée, lorsqu'un champ électrique (0.25V/cm) est appliqué le nombre d'atomes $70p_{3/2}$ excités reste plus faible qu'en champ nul et sature plus rapidement. Nous nous attendons à ce que le blocage soit plus fort en champ car l'interaction doit prendre un caractère dipôle-dipôle alors qu'en champ nul il reste (pour les densités moyennes avec lesquelles nous travaillons) de type van der Waals. Pour la densité D1 et D2 l'excitation en champ nul est quasi linéaire alors qu'elle sature en champ électrique.

Pour la densité D1, en champ nul, une légère saturation apparaît autour de 1200 atomes excités, pour une densité pic de $D \sim 10^9 \text{at/cm}^3$, soit une distance interatomique moyenne d'environ $6\mu\text{m}$. Afin de savoir si l'effet observé est compatible avec du blocage dipolaire en champ nul, calculons la distance moyenne à partir de laquelle le blocage dipolaire peut se manifester. Pour $n = 70$, l'écart d'énergie pp ss' est $\Delta \sim 187 \text{ MHz}$. Le décalage dû à l'interaction définie dans le modèle à deux niveaux n'est observable que s'il est supérieur à la largeur spectrale de l'excitation $\Delta\nu$, soit : $\frac{\Delta}{2} (\sqrt{1 + (\frac{W(R_{min})}{\Delta/2})^2} - 1) > \Delta\nu$. En prenant $W = \frac{\mu_{ps}\mu_{ps'}}{4\pi\epsilon_0 R_d^3}$ et $\Delta\nu = 5 \text{ MHz}$ on trouve que l'espacement minimum Rmin entre deux atomes doit être d'environ $6\mu\text{m}$, en accord avec l'espacement inter-atomique moyen pour la densité pic considérée. On remarque que l'interaction est de type Van der Waals puisque l'interaction dipolaire est inférieure à l'écart pp ss' pour la distance moyenne considérée, $W = 32 \text{ MHz} < \Delta/2$.

Nous avons mesuré les largeurs à mi-hauteur des raies d'excitations sur la figure 2.26b. Elle doivent traduire l'intensité du blocage dipolaire en s'élargissant lorsque le nombre d'atomes excités diminue. A champ nul sur la plage de puissance étudiée, la largeur des raies varie faiblement, de 5MHz à 6MHz. En revanche l'effet d'un champ électrique ($\tan(\theta) = 1$) augmente la distance minimale sous laquelle il n'y a pas d'excitation Rydberg, le 'rayon' de blocage augmente avec le champ appliqué, et les largeurs de

raies augmentent. On comprend qu'en champ électrique l'augmentation de la puissance du laser Ti:Sa est rapidement sans effet sur l'augmentation du nombre d'atomes excités car le blocage est déjà important à faibles puissances.

Nous pouvons comparer à faible puissance d'excitation la distance moyenne inter-atomique, qui correspond au nombre d'atomes excités, à la distance minimale de blocage à laquelle on peut s'attendre. Pour une puissance de 2 mW 100 atomes sont excités, ce qui correspond à une densité de $\sim 8 \times 10^{-7}$ at/cm³ ou encore une distance inter-atomique moyenne de 14 μ m. La distance minimale de blocage obtenue pour le champ de 0.248V/cm avec une largeur de raie mesurée de $W=5$ MHz ($W=f(\theta)\mu_{pd}^2/R^3$) est de 9 μ m.

On peut faire une évaluation de la fraction d'atomes bloqués en considérant la distribution des atomes plus proches voisins d'un atome excité. Celle ci est donnée par $1-\exp^{-(R_{min}/R_{moy})^3}/2^7$, où R_{min} est la distance minimale de blocage et R_{moy} la distance moyenne inter-atomique. On calcule alors qu'une fraction des atomes, environ $((1-\exp^{-(9/14)^3})/2)=10\%$ est bloquée, ce qui représente déjà un effet notable. On conclue que l'effet de la densité est visible sur les courbes de blocage, que ce soit en changeant la densité atomique initiale ou la puissance du laser Ti:Sa.

Etats $np_{1/2}$ en fonction de la densité

L'interaction pp ss' est plus faible pour les états $np_{1/2}$. En effet le décalage pp ss' pour 70 $p_{1/2}$ est de 908MHz en champ nul au lieu de 187 MHz pour l'état 70 $p_{3/2}$. En champ nul il n'y a donc pas d'effet dipôle-dipôle et on peut considérer que l'interaction du deuxième ordre de type Van der Waals domine. Sur la figure 2.27a on peut voir que l'excitation de l'état 70 $p_{1/2}$ est quasiment linéaire en fonction de la puissance du laser Ti:Sa. Cependant en présence d'un champ électrique l'excitation à saturation légèrement au delà de 300 atomes. La distance moyenne internucléaire correspondante est de 10 μ m. Lorsqu'on calcule la distance minimale de blocage on trouve 9 μ m qui est en accord avec l'estimation de 10 μ m. La diminution de signal en champ est compatible avec le blocage dipolaire de l'excitation.

Les largeurs de raie correspondantes sont présentées sur la figure 2.28. L'élargissement est visible en champ, passant de 6MHz pour quelques mW à 14MHz pour 300mW. Les élargissements de raies ne sont pas dus dans notre cas à des excitations hors résonance. L'élargissement est le signe d'un blocage de l'excitation. Ils correspondent à l'ajustement sur des raies qui sont de plus faible amplitude en présence de blocage dipolaire, et ont alors des largeurs à mi-hauteur plus grandes.

7. La probabilité de trouver n particules à une distance dans un volume centré sur 0 contenant en moyenne λ particules vaut 1 moins la somme des probabilités de (n-1) événements d'une distribution de Poisson, $1 - \sum_{k=0}^{n-1} \exp^{-\lambda} \frac{\lambda^k}{k!}$, avec $\lambda = (\frac{R_{min}}{R_{moy}})^3$ et le plus proche voisin n=1. Plus exactement, la densité de probabilité de trouver un k^{th} plus proche voisin à une distance r d'un atome est donnée par la distribution d'Erlang $4\pi r^2 * f(k, r)$, avec $f(k, r) = \frac{3}{4\pi k!} \frac{(r^3)^k}{(R_{moy}^3)^k} e^{-(\frac{r}{R_{moy}})^3}$ et $R_{moy} = (\frac{4\pi\rho_0}{3})^{-\frac{1}{3}}$ [Torquato et al., 1990; Vogt, 2006]. Pour le plus proche voisin on a $P_{ppv}(r)=4\pi r^2 \rho_0 e^{-(\frac{r}{R_{moy}})^3}$. On en déduit que la distance la plus probable est obtenue lorsque $dP_{ppv}(r)/dr=0$ ce qui correspond à une distance $r \approx 0.5 \frac{3}{4\pi} R_{moy}$.

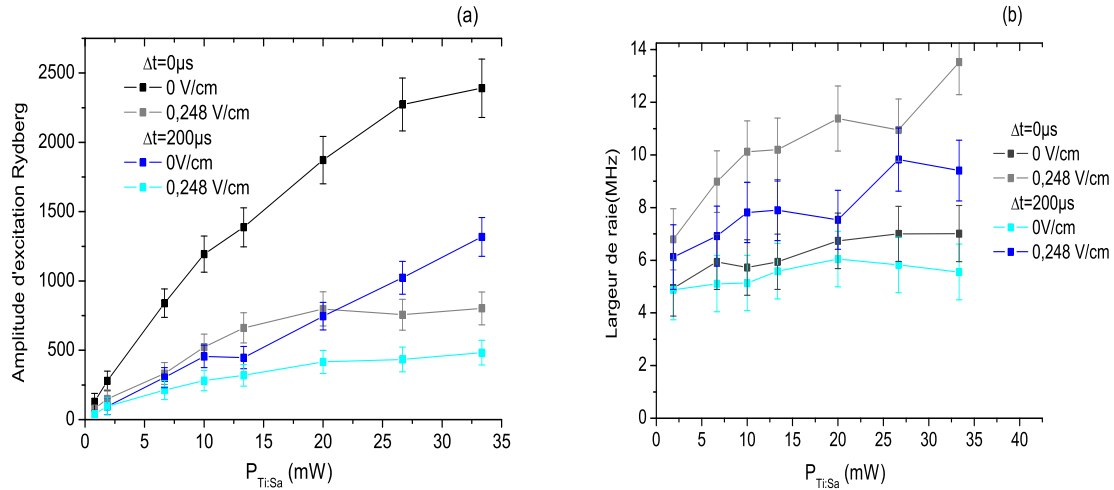


FIGURE 2.26 – Analyse des raies d'excitation de l'état $70p_{3/2}$, $|m_j| = 1/2$ en fonction de la puissance du laser Ti:Sa, pour deux densités d'atomes initialement dans l'état $7s$, D1 ($\Delta t=0$) et D2 ($\Delta t=200 \mu s$) et pour deux champs électriques différents ($F = 0$ V/cm, correspondant à $\tan^2 \theta = 0$ et $F' = 0.25$ V/cm, correspondant à $\tan^2 \theta = 1$). $I_{sat}=280$ W/cm² (a) Nombre d'atomes excités lorsque le laser Ti:Sa est résonant. (b) Largeur à mi-hauteur des raies d'excitation.

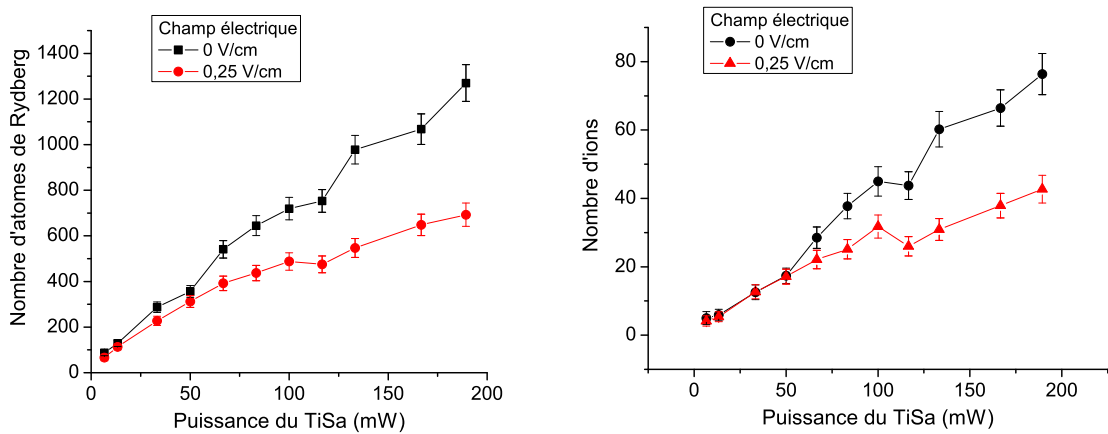


FIGURE 2.27 – Analyse des nombres d'atomes de Rydberg et nombres d'ions après excitation de l'état $70p_{1/2}$, $|m_j| = 1/2$ en fonction de la puissance du laser Ti:Sa (le laser Ti:Sa est résonant) pour deux champs électriques différents ($F = 0$ V/cm, correspondant à $\tan^2 \theta = 0$ et $F' = 0.25$ V/cm, correspondant à $\tan^2 \theta = 0.65$). (a) Nombre d'atomes de Rydberg détectés (b) Nombre d'ions présent durant l'excitation détectés.

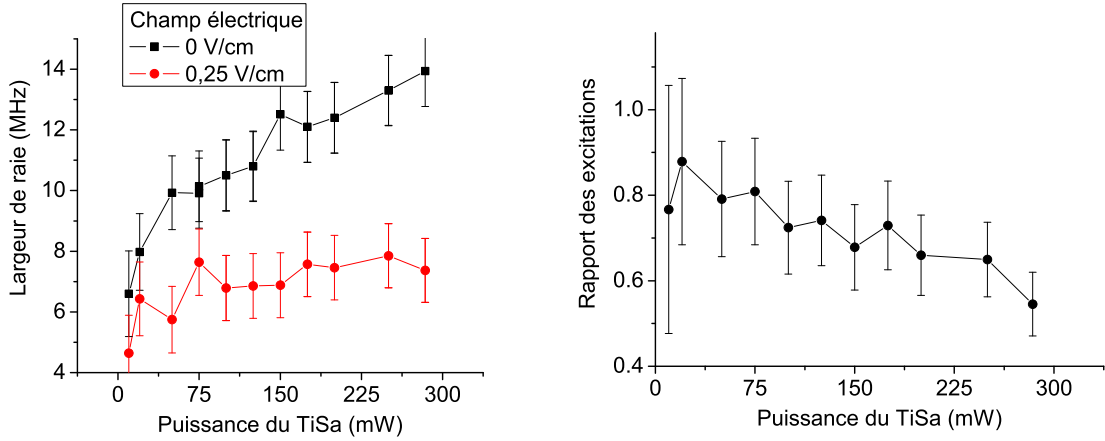


FIGURE 2.28 – (a) Élargissement des raies correspondant aux données de la Fig. 2.27 (a) en fonction de la puissance du laser Ti:Sa. La largeur est mesurée à mi-hauteur (FWHM). (b) Rapport des nombres d’atomes excités dans l’état $70p_{1/2}, |m_j| = 1/2$ en champ électrique $F' = 0.25$ V/cm et en champ nul $F = 0$ V/cm.

2.4.1.3 Effet parasite des ions

Dès qu’un ion est présent dans le volume d’excitation il crée un champ électrique $\frac{qe}{4\pi\epsilon_0 r^2}$ qui induit un décalage Stark des niveaux Rydberg. En effet, l’effet visible des ions est de décaler les niveaux Stark des atomes de Rydberg via leur champ électrique. À distance égale d’un atome l’interaction coulombienne d’un ion est bien plus importante que l’effet de l’interaction dipôle-dipôle d’un atome de Rydberg. Par exemple, à $20\mu m$ le champ crée est de $3.6mV/cm$, et induit un décalage d’environ $30MHz$ du niveau Rydberg $70p_{3/2}$. À $10\mu m$ le champ crée est de $150mV/cm$ et il induit un décalage d’environ $190MHz$ du niveau Rydberg $70p_{3/2}$. Lorsque un nombre important d’ions est formé ils peuvent alors permettre l’excitation d’atomes qui se trouvent dans le rayon de blocage d’un atome de Rydberg, ou mettre des atomes hors résonance avec le laser d’excitation, mimant l’effet du blocage dipolaire.

Les conditions choisies dans lesquelles s’est déroulée l’expérience permet de limiter le nombre d’ions présent lors de l’excitation à une valeur très largement inférieur à l’unité⁸.

Sur les figures 2.27b ($70p_{1/2}$) et 2.29 ($70p_{3/2}$) nous avons indiqué le nombre d’ions détectés en fonction de la puissance du laser Ti:Sa. Le nombre d’ions détectés est au plus de 5% aux puissances les plus élevées. On peut cependant noter que ce nombre est surestimé car tous les ions détectés ne sont pas formés durant l’excitation puisqu’il y a un délai de $700ns$ entre l’excitation et la détection⁹.

8. Pour rappel, au cours de chaque expérience, l’impulsion de champ électrique qui ionise les atomes dans des états de Rydberg nous permet de séparer temporellement les ions formés durant l’excitation et les atomes de Rydberg.

9. Une évaluation [Vogt, 2006] indique que le nombre d’ions présent durant l’excitation peut être divisé par

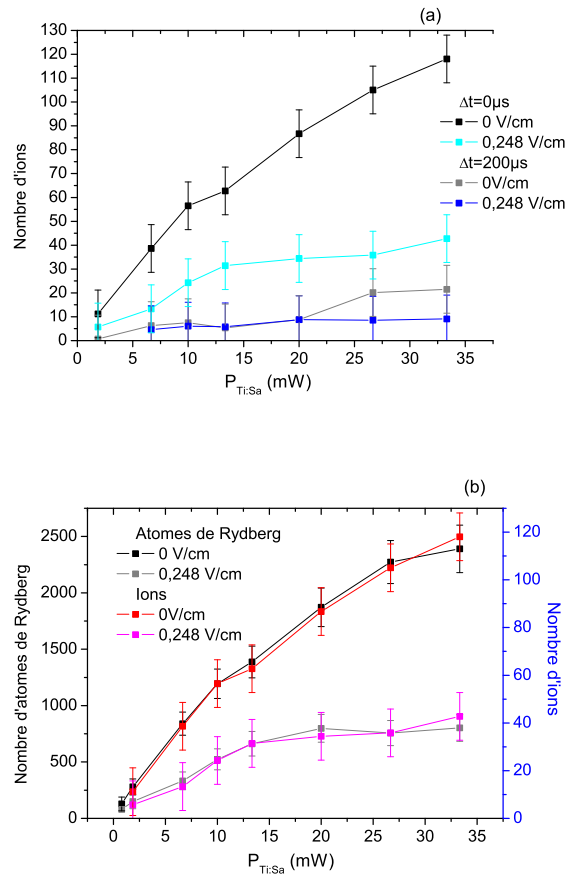


FIGURE 2.29 – Analyse des nombres d’ions détectés après excitation de l’état $70p_{3/2}, |m_j| = 1/2$ dans les mêmes conditions que Fig. 2.26, à savoir une excitation d’une durée de 300ns et un délai d’ionisation de 700ns. (a) Nombre d’ions libres détectés lorsque le laser Ti:Sa est résonant. (b) Comparaison du nombre d’ions et du nombre d’atomes de Rydberg en fonction de la puissance du laser Ti:Sa, pour la densité initiale maximale dans l’état 7s et les deux champs électriques étudiés Fig. 2.26.

Nous voyons sur les figure 2.26b ($70p_{3/2}$) et 2.27b ($70p_{1/2}$) que le nombre d'ions est proportionnel au nombre d'atomes de Rydberg détectés. Plusieurs sources d'ionisation sont possibles. Nous y reviendrons dans le chapitre 4 (voir [Viteau et al., 2008b]). Un certain nombre de ces ions proviennent de collisions $7s$ -Rydberg ou $6p$ -Rydberg ainsi que de l'absorption du rayonnement thermique. Les collisions entre atomes $6p$ et Rydberg peuvent être éliminées en coupant les lasers de piégeage. Lors d'une expérience nous avons pu réaliser une excitation Rydberg avec un nombre d'ions très faible. L'utilisation des lasers du piège magnéto-optique comme premier étage de l'excitation d'atomes n'est pas optimum dans notre cas. En effet, nous avons observé que la présence d'atomes chaud dans l'état $6p$ est un facteur de collisions ionisantes avec les atomes de Rydberg. Ceux ci sont excités en passant perpendiculairement aux faisceaux lasers du piège car il ne sont pas sélectionnés en vitesse par effet Doppler. Nous avons alors utilisé une séquence d'excitation différente qui consiste à décaler en fréquence les lasers du piège magnéto-optique avant et pendant l'excitation et à utiliser une diode laser à 852nm en cavité étendue, asservie sur la transition $6s_{1/2}, F = 4 \rightarrow 6p_{3/2}, F' = 5$ qui traverse le nuage d'atomes froids dans une seule direction.

Le résultat obtenu sur la figure 2.30 représente deux spectres de résonance de l'état $70p_{3/2}$ à champ nul et en champ $F=0.25V/cm$. Un effet de blocage de l'excitation apparaît au centre de la raie. Cet effet est supérieur à la simple chute de la probabilité d'excitation du caractère np en champ et représente le blocage dipolaire de l'excitation. La formation d'un nombre aléatoire d'ions à chaque répétition de l'expérience serait visible sous forme de fluctuation du nombre d'atomes excités. L'absence d'ions est confirmée par deux simulations de la figure 2.31 parcequ'il n'y a pas d'élargissement important des résonances ni de fluctuations importantes du signal.

Le faible nombre d'ions que l'on détecte peut aussi être produit après l'excitation. L'effet sur le profil des raies d'excitations est différent à champ nul ou en champ électrique. À champ statique nul, le déplacement Stark dû à un ion est asymétrique. Le décalage Stark induit un décalage des niveaux np vers le rouge de la transition et il y a un élargissement asymétrique du profil d'excitation. En revanche lorsqu'un champ électrique statique est appliqué entre les grilles de part et d'autre de la zone d'excitation, la présence d'un ion va élargir de façon symétrique le profil de raie. Ainsi, pour les états np du césium, en présence d'un nombre important d'ions, les raies seraient élargies vers le rouge en champ nul ou faible et de façon symétrique à champ plus élevé.

2.4.2 Conclusion

Nous avons mis en évidence l'effet du blocage dipolaire induit par un champ électrique de faible intensité (quelques mV/cm). La suppression d'excitation peut atteindre les 2/3 de l'excitation initiale pour l'état $n=85p$ ce qui représente une amélioration par rapport au 1/3 de blocage mesuré pour des résonances avec $n<42p$. Nous avons vu que le blocage dipolaire en champ électrique dépend de la densité d'atomes initial et de la

3. Ainsi sur la figure 2.29, pour la densité D1 au plus 40 ions sont présent durant l'excitation. Pour la densité D2, 10 ions sont présent au plus.

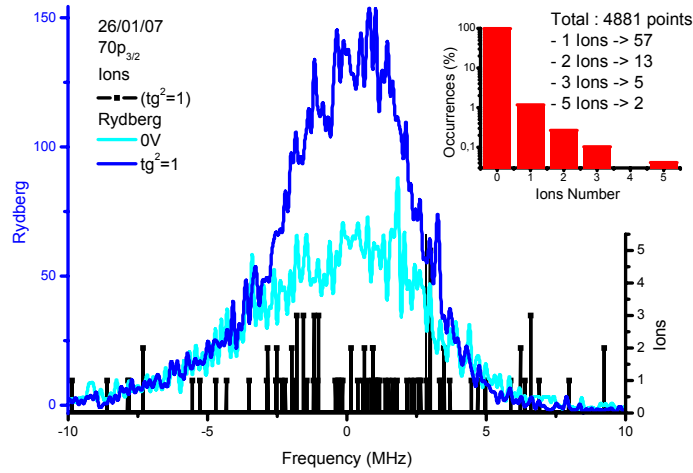


FIGURE 2.30 – Nombre d’atomes de Rydberg lors d’un profil d’excitation dans l’état $70p_{3/2}$ pour deux valeurs de champ électrique en fonction du décalage à résonance $7s \rightarrow 70p_{3/2}$, dans un nuage sphérique gaussien de rayon $\sigma = 30 \mu\text{m}$ ($1/e^{1/2}$). Le nombre d’ions est donné pour l’expérience en champ. L’encart indique la répartition du nombre d’ions durant l’excitation.

puissance d’excitation. Dans toutes les expériences que nous avons faites l’élargissement des raies est artificiel et vient de la diminution du signal, lorsque nous prenons soin de travailler sous la puissance de saturation. Nous avons également pris soin dans cette étude de minimiser le nombre d’ions présent durant l’excitation. La présence des ions peut être un problème car l’effet charge dipôle est beaucoup plus important que l’effet dipôle-dipôle.

Nous pourrions augmenter l’intensité du blocage dipolaire de plusieurs façons. En continuant à augmenter le nombre quantique principal nous pouvons augmenter les dipôles de transitions et donc l’intensité du blocage. Cependant, comme nous l’avons déjà indiqué, plus l’état de Rydberg est élevé plus il est sensible aux perturbations extérieures et aux collisions. En augmentant la densité il serait également possible d’obtenir des interactions plus fortes tout en faisant attention aux collisions entre atomes. On peut imaginer une expérience dans laquelle le volume d’excitation est réduit à quelques atomes de telle sorte que le rayon de blocage de l’excitation autour d’un atome contienne le plus d’atomes bloqués possibles. La dépendance angulaire ($1 - 3 \cos^2 \Theta$) de l’interaction peut toutefois permettre des excitations multiples à l’intérieur du volume de blocage.

Il est donc plus favorable pour l’observation du blocage dipolaire de réduire la puissance du laser d’excitation pour rester sous la saturation et faire que la résolution spectrale de l’excitation reste inférieure au décalage dipôle-dipôle de l’interaction. L’effet des collisions entre des atomes chauds $6p$ et les atomes de Rydberg doit conduire à couper les lasers du piège avant l’excitation. De la même façon, la durée d’excitation ainsi que le délai entre l’excitation et la détection doivent être minimisés pour éviter les collisions et l’ionisation des atomes de Rydberg.

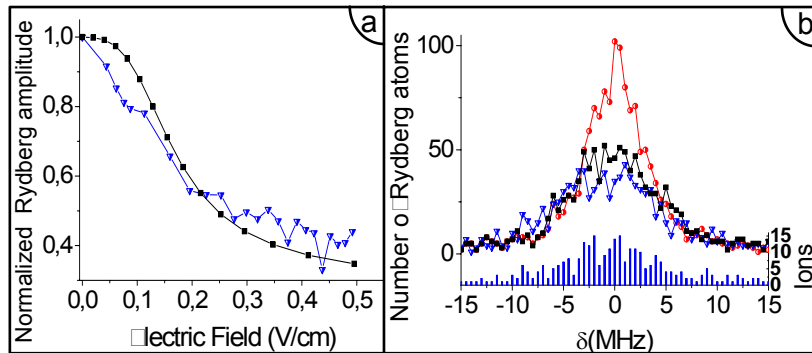


FIGURE 2.31 – Comparaison du blocage dipolaire avec le blocage dû aux ions. Nombre d’atomes excités de l’état fondamental vers l’état $70p_{3/2}$ après une excitation laser de 300ns. (a) Modèle basé sur la matrice densité réduite, pour différentes valeurs de champ électrique. Triangles : un ion unique est placé aléatoirement dans l’échantillon avant l’excitation mais l’effet de l’interaction dipôle-dipôle n’est pas pris en compte. Carrés : calcul prenant uniquement en compte l’interaction dipôle-dipôle avec le plus proche voisin, sans ions. (b) Simulation Monte Carlo cinétique de l’excitation laser en fonction du décalage à résonance. 8500 atomes dans l’état fondamental sont présent dans un nuage sphérique gaussien de rayon $\sigma = 30 \mu\text{m}$ ($1/e^{1/2}$) pour un champ électrique de ($F=0.4\text{V/cm}$). Pas d’interactions dipôle-dipôle (cercles), sans interactions dipôle-dipôle mais avec des ions qui apparaissent durant l’excitation (triangles), interactions dipôle-dipôle mais pas d’ions. (squares).

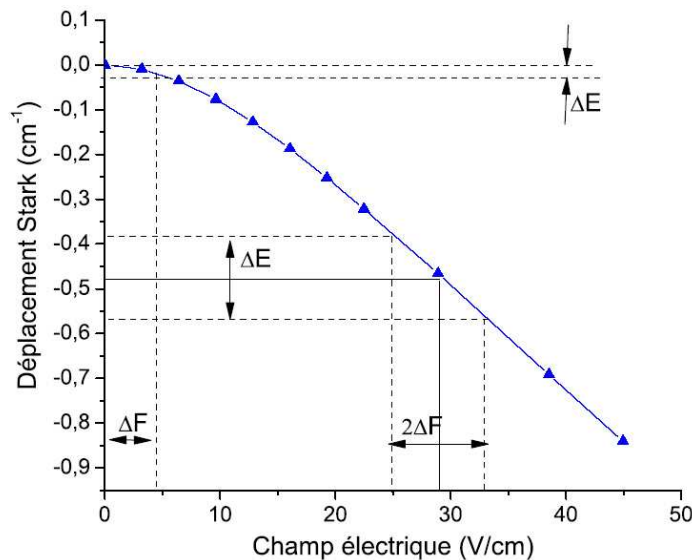


FIGURE 2.32 – Déplacement Stark expérimental du niveau $33p_{3/2}$. Le déplacement est quadratique à champ faible puis devient linéaire. Un ion crée un champ inhomogène d’amplitude $|\Delta F|$ qui conduit à un élargissement des raies. $|\Delta E|$

Bilan

Il ressort de nos expériences qu’il est possible de contrôler l’intensité du blocage dipolaire de plusieurs façons.

- En se rapprochant d’une résonance de Förster nous observons un changement prononcé de l’effet de blocage dipolaire car l’interaction passe d’une intensité faible

en C_6/R^6 loin de la résonance à une intensité plus forte en C_3/R^3 au voisinage de la résonance. Au voisinage de la résonance l'interaction augmente avec le nombre quantique principal (jusqu'à ce qu'il n'y ait plus de résonance accessible) et avec la densité d'atomes dans l'état initial. Nous avons observé l'effet de blocage dipolaire de l'excitation jusqu'à $n=41$.

- En appliquant un champ électrique, nous mélangeons des états de moments angulaires différents ce qui a pour effet d'induire des dipôles permanent. L'interaction est toujours en C_3/R^3 et augmente avec le nombre quantique principal, avec la densité d'atomes dans l'état initial et l'intensité du champ électrique. Nous avons observé l'effet de blocage dipolaire de l'excitation à n relativement élevé (jusqu'à $n=120$). Ces configurations ont l'avantage d'atteindre des valeurs de moments dipolaires élevés et des interactions dipôle-dipôle plus grandes que la largeur spectrale de l'excitation.

Des expériences faites par d'autres groupes ont également permis d'observer un blocage de l'excitation dans des nuages d'atomes froids dans une configuration van der Waals dont le 'rayon' de blocage est limité et ne permet pas un contrôle autre que la variation de la densité initiale, contrairement aux expériences que nous avons faites.

2.5 Expériences complémentaires

Dans cette section nous donnons un aperçu rapide d'expériences faites par d'autres groupes dans le but d'observer le blocage dipolaire de l'excitation. Les premières expériences ont montré l'observation du blocage dipolaire de type van der Waals. Elles ont été suivies par nos expériences où les interactions se font à plus grande distance en choisissant d'exciter des paires d'états dégénérés ou en induisant des dipôles permanents. Ces expériences de blocage dipolaire ont servi de démonstration de principe pour passer à l'observation d'excitations collectives d'atomes de Rydberg. À présent des expériences sont faites en manipulant deux atomes dans des pinces optiques qui sont ensuite excités sur des états de Rydberg à résonance de Förster. Nous décrivons l'observation de l'oscillation collective des deux atomes de Rydberg dans l'une de ces expériences.

Interaction non résonante

Dans [Tong et al., 2004] le groupe du Connecticut a été le premier à observer une diminution notable du nombre d'atomes de Rydberg excités en fonction du nombre quantique principal pour des interactions du second ordre de type van der Waals (voir figure 2.33). Dans cette expérience des atomes de rubidium (densité de $6 \cdot 10^{10}$ at/cm³) sont excités à un photon à partir de l'état $5s$ à l'aide d'un laser pulsé dans l'ultraviolet pendant 30ns. Les impulsions ont une largeur spectrale de 100MHz¹⁰. Le nombre d'ions mesuré, moins de 100 à forte intensité laser, indique que le blocage de l'excitation n'est pas dû à un effet Stark. [Tong et al., 2004] montre qu'il est possible de réduire

10. Une analyse de leur modèle, est faite dans [Vogt, 2006]. Cette analyse montre qu'au centre du nuage atomique l'interaction est plutôt de type dipôle-dipôle. Elle montre également que le modèle utilisé par [Tong et al., 2004] qui considère la probabilité d'exciter un atome à l'intérieur d'une sphère en fonction du champ moyen induit par les atomes excités à l'extérieur de la sphère peut se traduire comme la moyenne angulaire de la probabilité d'exciter un atome en fonction de sa distance avec l'atome plus proche voisin excité.

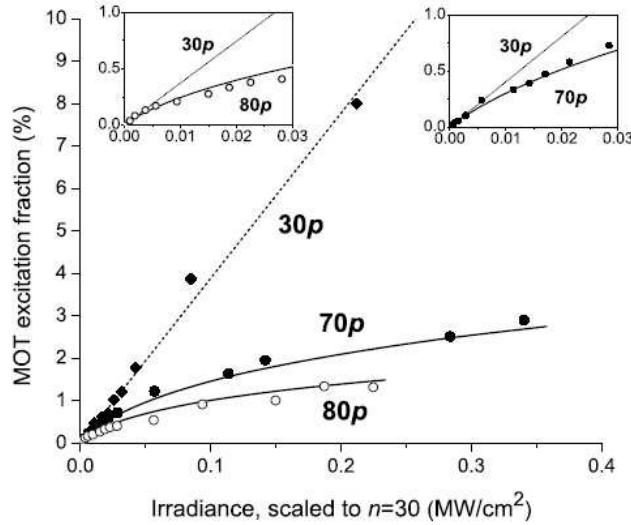


FIGURE 2.33 – Tirée de [Tong et al., 2004]. Comparaison du blocage de l’excitation des états 70p et 80p par rapport à l’état non bloqué 30p en fonction de l’intensité du laser d’excitation. Lorsque la puissance du laser d’excitation augmente, le nombre d’atomes excités augmente linéairement pour l’état 30p, indiquant que dans ce cas l’interaction est plus faible que la résolution spectrale de l’excitation. En revanche, lorsque les états 70p et 80p sont excités, il apparaît une saturation du nombre d’atomes excités.

le nombre d’atomes excités dans le nuage atomique en changeant le nombre quantique principal ce qui se traduit par une diminution du nombre d’atomes excités d’un facteur 6 lorsqu’on passe de $n=30$ à $n=80$.

L’étude du blocage de type van der Waals est aussi faite dans [Singer et al., 2004] par le groupe de Fribourg. Nous avons développé une simulation de type Monte Carlo cinétique destinée à rendre compte de la dynamique du blocage dipolaire de l’excitation. Elle montre que la présence d’un grand nombre d’ions est peut être à l’origine des profils observés. Nous développerons cette simulation dans le prochain chapitre 3.

Une méthode indirecte mettant en évidence le blocage de l’excitation dans un petit volume est proposée par l’équipe du Michigan dans [Liebisch et al., 2005] (voir figure 2.34).

L’étude de la statistique du nombre d’atomes de Rydberg détectés permet de mettre en évidence les contraintes du volume pour une interaction donnée. La mesure de cette contrainte est faite par le rapport de la variance sur le nombre moyen d’atomes détectés appelé paramètre de Mandel $Q = \frac{\langle N^2 \rangle - \langle N \rangle^2}{\langle N \rangle} - 1$. Ainsi, la réduction du nombre d’atomes excités à cause de l’interaction dipolaire fait apparaître un nombre relativement constant d’atomes excités si le blocage atteint la saturation (blocage dipolaire fort)¹¹. De façon inexplicable l’effet attendu n’a cependant pas été observé [Liebisch et al., 2007] (il est possible que les valeurs positives mesurées soient dues

11. Lorsque la variance est supérieure à la moyenne, comme dans le cas d’une source de lumière thermique, la statistique est dite super-poissonnienne. Elle est dite poissonnienne pour une source cohérente et sub-poissonnienne pour une source non classique (anti-bunching).

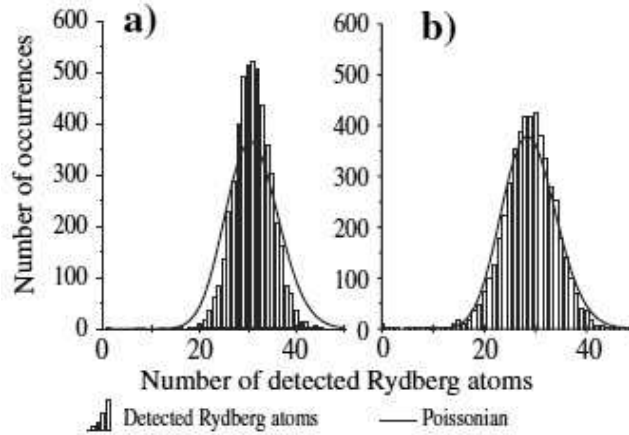


FIGURE 2.34 – Tirée de [Liebisch et al., 2005]. a) histogramme du nombre d’atomes détectés et enveloppe poissonnienne. b) densité de Rydberg 100 fois plus faible qu’en a).

aux fluctuations du nombre d’atomes dans l’état fondamental).

Dans [Afrousheh et al., 2004] le groupe de Waterloo a sondé les interactions par application de micro-ondes. Après avoir excité des atomes de rubidium par un laser pulsé dans l’état $45d_{5/2}$, une transition micro-onde transfère une partie des atomes dans l’état $46p_{3/2}$. Les auteurs font une spectroscopie micro-onde des atomes restés dans l’état $45d_{5/2}$ vers l’état $46d_{5/2}$. Les données indiquent un élargissement de la raie $46d_{5/2}$ sous l’effet de l’interaction $45d_{5/2} - 46p_{3/2}$.

Interaction résonante

Dans [Bohlouli-Zanjani et al., 2007] l’utilisation de micro-ondes permet de se positionner sur une résonance en décalant le niveau considéré vers le rouge ou vers le bleu et rendre ainsi l’interaction plus forte comme dans [Vogt et al., 2007]. En effet contrairement au champ électrique statique qui couple des états avec un signe constant, le champ micro-onde habille l’atome en fonction de son désaccord avec la transition considérée.

Oscillation de Rabi d’atomes individuels

Une limitation pour observer l’excitation d’un ensemble d’atomes est l’homogénéité spatiale de la phase du champ d’excitation $\vec{k}\vec{r}_i$, où \vec{k} est le vecteur d’onde du laser d’excitation et \vec{r}_i la position de l’atome i . Le groupe de Fribourg a utilisé une lentille permettant une excitation homogène sur un volume mesoscopique [Reetz-Lamour et al., 2008b]. Un faisceau non homogène spatialement va conduire à des excitations déphasées pour les différentes intensités vues par les atomes. Dans [Reetz-Lamour et al., 2008b], l’expérience est faite en excitant l’état $5s$ du rubidium (densité 10^{10} at/cm³) vers l’état $31d_{5/2}$ avec deux lasers, l’un à 780 nm de profil gaussien et l’autre à 480 nm avec un profil rectangulaire. Le régime d’interaction faible permet d’observer une oscillation de Rabi d’atomes individuels Ω . Cependant ces oscillations sont fortement amorties, ce qui vient principalement, d’après les auteurs de l’article, de la largeur spectrale du laser (la largeur spectrale du laser est supérieure à la largeur de l’état de Rydberg excité). Nous

pouvons aussi penser que la phase $\vec{k}\vec{r}_i$ varie dans le volume d'excitation et est responsable d'une partie de l'amortissement. Dans [Reetz-Lamour et al., 2008a] les auteurs observent une oscillation de Rabi amortie à faible interaction (faible nombre quantique principal n) loin d'un couplage résonnant et une augmentation de l'excitation pour une interaction plus forte mettant en jeu des couplages vers des états voisins. Cela indique que le choix de l'état excité doit être fait en prenant en compte une possible décohérence du système.

Excitation collective

Plusieurs groupes ont également tenté de réaliser une excitation collective du nuage d'atomes froids, et nous en rappelons ici quelques caractéristiques.

L'état fondamental pour une assemblée de N atomes à 2 niveaux s'écrit

$$|\psi_i^{(N,0)}\rangle = |g_0, g_1, \dots, g_i, \dots, g_N\rangle \quad (2.9)$$

Lorsque l'interaction dipôle-dipôle est suffisamment forte pour que seul un atome soit excité, l'état formé est un état collectif dans lequel l'unique excitation est répartie de façon égale parmi les N atomes :

$$|\psi_i^{(N,1)}\rangle = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{i=1}^N e^{i\vec{k}\vec{r}_i} |g_0, g_1, \dots, e_i, \dots, g_N\rangle \quad (2.10)$$

où e représente l'état excité, \vec{k} est le vecteur d'onde du laser d'excitation et \vec{r}_i la position de l'atome i .

La transition entre l'état 2.9 et l'état 2.10 est donnée par l'élément de matrice

$$\langle \psi_i^{(N,1)} | \sum_{i=1}^N \frac{\hbar}{2} \Omega | \psi_i^{(N,0)} \rangle = \sum_{i=1}^N e^{i\vec{k}\vec{r}_i} \frac{1}{\sqrt{N}} \frac{\hbar}{2} \Omega \quad (2.11)$$

et dans le cas où la différence de phase associée à l'onde du laser d'excitation est très faible entre atomes on peut écrire

$$\langle \psi_i^{(N,1)} | \sum_{i=1}^N \frac{\hbar}{2} \Omega | \psi_i^{(N,0)} \rangle = \sqrt{N} \frac{\hbar}{2} \Omega \quad (2.12)$$

où Ω est la fréquence de Rabi donnée par le couplage dipolaire entre les 2 états, soit

$$\begin{aligned} \Omega &= \frac{q_e E}{\hbar} \langle e|r|g \rangle = \frac{E\mu}{\hbar} \\ \Omega &= \sqrt{\frac{2I}{\epsilon_0 c}} \frac{\mu}{\hbar} = \sqrt{2 \frac{(\frac{2P}{\pi\omega^2}) \mu}{\epsilon_0 c}} \frac{\mu}{\hbar} \end{aligned} \quad (2.13)$$

avec E l'amplitude du champ électrique associée à l'onde du laser d'excitation, μ le dipôle de transition entre g et e , I l'intensité du champ électrique associée à l'onde du

laser d'excitation, P la puissance du laser, ω le waist du faisceau au niveau du piège magnéto-optique.

Ce changement de la fréquence de Rabi par la présence du terme \sqrt{N} est présent dans [Dicke, 1954] lorsqu'il décrit le phénomène de superradiance dans lequel N atomes contenus dans un volume inférieur à la longueur d'onde radiative sont indistinguables et se déséxcitent avec un temps caractéristique proportionnel à $N\Gamma$. L'excitation collective des N atomes est parfois appelée 'superatome' [Vuletic, 2006; Heidemann et al., 2007]. Notons que la notion de superatome, c'est à dire considérer indépendamment chaque sous système contenant une excitation dans un 'rayon' de blocage donné peut simplifier le traitement numérique du problème qui contient 2^N états, pourvu que le nombre d'atomes dans le superatome soit petit.

Ainsi une oscillation collective doit avoir une période qui varie comme $\frac{2\pi}{\sqrt{N}\Omega}$ comme représenté sur la figure 2.35.

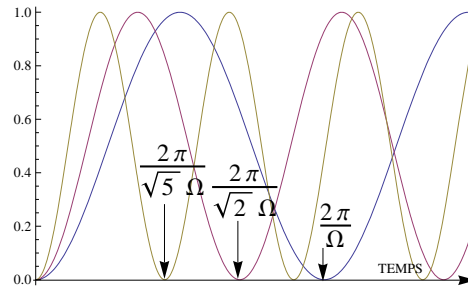


FIGURE 2.35 – Probabilité d'excitation collective d'un atome en fonction de la durée d'excitation. L'oscillation s'accélère lorsque le nombre d'atomes (1,2,5) présent augmente. Un brouillage de la phase peut réduire la visibilité des oscillations, notamment si les atomes ne sont pas excités par un front d'onde homogène.

Considérons que chaque superatome k contient N_k atomes. Dans chacun de ces volumes la fréquence de Rabi de l'excitation collective est alors donnée par $\sqrt{N_k}\Omega$. L'évolution cohérente d'un ensemble de N atomes doit donc montrer la dépendance temporelle en fonction de $\sqrt{N(r)}$, où $N(r)$ est le nombre d'atome définis localement en r dans un superatome qui est proportionel au rapport de la densité $n_f(r)$ dans l'état fondamental divisée par la densité dans l'état de Rydberg soit $N(r)=\frac{n_f(r)}{n_R(r)}$ ($n_f(r)$ est gaussienne). L'évolution temporelle sans interaction est quadratique à temps court. En revanche lorsqu'on considère la somme des évolutions dans chaque superatome (donc dépendant de la position), l'évolution globale du système devient linéaire après un temps de l'ordre de l'inverse de la fréquence de Rabi la plus rapide (puisque le sinus carré associé à cette fréquence est sommé avec des termes plus petit que l'on néglige, il définit une première tendance quadratique). L'évolution temporelle du nombre d'atomes de Rydberg est alors donné par $\int n_R(r) \sin^2(\sqrt{N(r)}\Omega t/2) dr^3$ [Heidemann, 2008]. Un exemple est calculé sur la figure 2.36¹². Ainsi cette partie linéaire de la courbe d'exci-

12. Le calcul de $n_R(r)$ et de $N(r)\Omega$ se fait de la sorte : l'énergie d'interaction est égalée avec la fréquence de Rabi de la transition (car la transition est élargie par puissance) $C_6/r^6=C_6*n_R(r)^2=\hbar\sqrt{N(r)}\Omega$. On a alors $n_R(r)=(\hbar/C_6)^{2/5}n_f^{1/5}(r)\Omega^{2/5}$ et $\Omega(r)=\sqrt{N(r)}\Omega=(C_6/\hbar)^{1/5}n_f^{2/5}\Omega^{4/5}$. On en déduit que la le nombre d'atomes

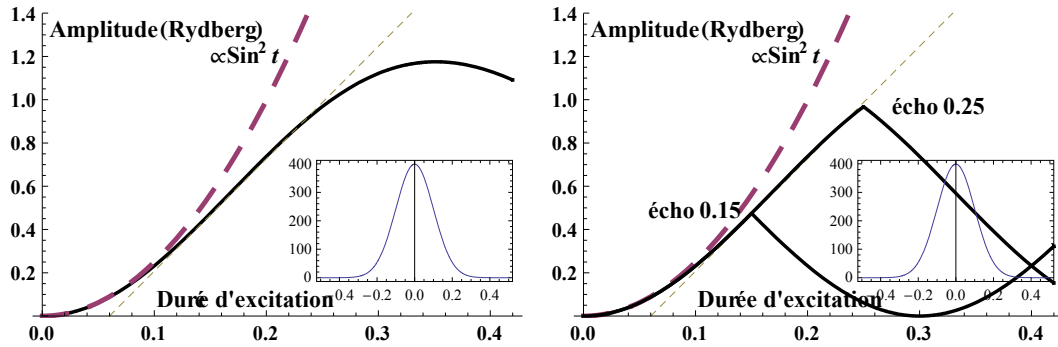


FIGURE 2.36 – À gauche. L'évolution temporelle de plusieurs superatomes (courbe solide) dépend de la fréquence de Rabi locale, que nous faisons dépendre d'une distribution initiale gaussienne des atomes dans l'état fondamental (encadré). Le comportement d'un ensemble d'atomes sans interaction à temps court est quadratique (courbe en pointillés). Dans le cas de plusieurs superatomes, après une première phase quadratique (de l'ordre de l'inverse de la fréquence de Rabi maximum) la pente est linéaire (droite en pointillés). C'est une caractéristique qui est utilisée par [Heidemann et al., 2007] pour parler d'oscillations collectives. À droite. Une impulsion π retourne la phase du champ au bout d'un temps indiqué par 'écho' [Raitzsch et al., 2008]. L'évolution est cohérente si l'évolution temporelle du nombre d'atomes de Rydberg excités est inversée.

tation permet de confirmer qu'il y a bien une excitation collective des atomes.

Le groupe de Stuttgart a analysé la présence le blocage dipolaire à très forte densité, 10^{13} atomes par cm^3 en densité pic, et décrit un comportement collectif de l'excitation dans [Heidemann et al., 2007], en reliant l'excitation à temps court à l'évolution simultanée de plusieurs superatomes. Il est alors possible de déduire la pente de la droite et le paramètre de saturation N_{sat} qui sont reliés à la densité au centre du nuage atomique et à la fréquence de Rabi de la transition à un atome. Ils ont ensuite montré la cohérence de l'excitation en appliquant un retournement (π) de la phase de la radio-fréquence du modulateur acousto-optique au travers duquel passe le laser d'excitation. Cela revient à changer la fréquence de Rabi en $-\Omega$ [Raitzsch et al., 2008]. Chaque superatome a donc une phase qui évolue de façon stable¹³.

Dans [Johnson et al., 2008] le groupe du Wisconsin travaille à faible nombre d'atomes dans un piège FORT. Dans ce type de piège la force due à l'interaction entre le laser et l'atome est proportionnelle au gradient d'intensité. Un faisceau laser désaccordé vers le rouge d'une transition atomique est fortement focalisé dans le nuage atomique, créant alors une force dirigée vers le waist du faisceau. Il est alors possible de piéger quelques atomes ou un atome unique au niveau du waist du faisceau laser. Les atomes de rubidium sont préparés par pompage optique dans un niveau Zeeman donné, puis excités à deux photons vers l'état de Rydberg $n=43d_{5/2}$. Une paire d'atome dans cet état est

à saturation N_{sat} et la pente du nombre d'atomes excités en fonction du temps R varie comme $N_{sat} \propto n_R(r) \propto n_f^{1/5}(r)\Omega^{2/5}$ et $R \propto n_R(r)\sqrt{N(r)}\Omega \propto n_f^{3/5}(r)\Omega^{6/5}$

13. La même équipe a réalisée la première excitation d'atomes d'un condensat vers des états de Rydberg [Heidemann et al., 2008], [Heidemann, 2008].

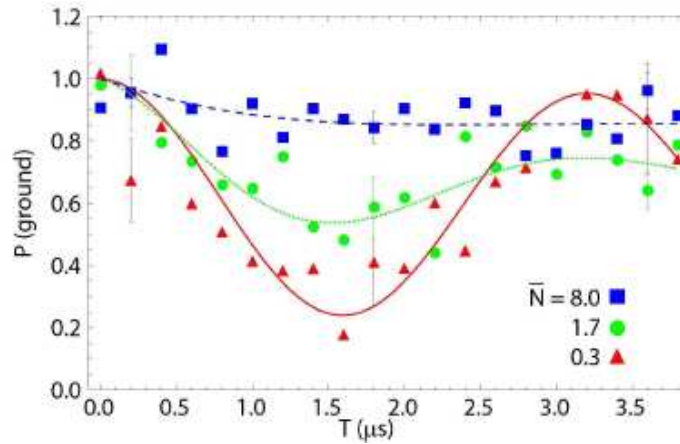


FIGURE 2.37 – Oscillations de Rabi observées par [Johnson et al., 2008] pour un nombre moyen d’atomes dans un piège FORT. La probabilité de recapture des atomes est exprimée en fonction de la durée d’excitation.

proche de la résonance de Förster $43d_{5/2} + 43d_{5/2} \rightarrow 45p_{3/2} + 41f_{5/2,7/2}$ indiquée dans la table 2.1. Comme nous l’avons vu au premier chapitre lorsque la différence d’énergie entre les paires d’atomes n’est pas dégénérée à l’infini, on peut définir une distance au delà de laquelle l’interaction est de type van der Waals et en deçà de laquelle l’interaction est de type dipôle-dipôle. L’écart en énergie entre les paires d’environ 6MHz implique un couplage résonant en C_3/R^3 pour une distance inférieure à $8\mu\text{m}$.

Les auteurs de [Johnson et al., 2008] observent des oscillations de Rabi à un atome entre le niveau fondamental et un état de Rydberg, comme on peut le voir sur la figure 2.37¹⁴. Lorsque plus d’un atome est excité, la fréquence de Rabi n’est pas modifiée d’un facteur \sqrt{N} , où N est le nombre d’atomes. Plusieurs hypothèses peuvent permettre d’expliquer cet effet. En fait il y a deux effets qui sont notés par les auteurs de l’article. Le premier est que dans certaines configurations la dégénérescence Zeeman d’un niveau de Rydberg entraîne des couplages entre ces niveaux lors de l’excitation. Le résultat est que l’interaction dipolaire peut alors devenir très faible, voire nulle, le blocage n’est pas suffisant pour qu’un seul atome soit excité de façon collective (c’est pour cela que pour 1.7 atomes il n’y a pas de facteur \sqrt{N} dans la fréquence d’oscillation par rapport au cas à 0.3 atomes). Le deuxième est que l’interaction entre atomes de Rydberg (deux à deux) reste supérieure à la fréquence de Rabi de l’excitation et provoque un déphasage proportionnel au nombre d’atomes¹⁵.

Il y a en moyenne $1/N$ atome excité (avec $N > 1$) mais chacun des N atomes décale la transition par rapport à la fréquence de l’excitation (différente à chaque répétition de l’expérience). La probabilité d’excitation est évaluée à 80% ce qui se traduit par une probabilité de se trouver dans l’état fondamental de $P_f = (1 - 0.8/N)$ (ainsi pour 8

14. Dans [Yavuz et al., 2006] une oscillation de Rabi à un atome entre sous niveaux de l’état fondamental de l’atome est observée dans un piège FORT

15. Les mêmes auteurs ont fait un intéressant travail théorique qui montre que les couplages entre niveaux dégénérés jouent un rôle important dans l’intensité des interactions dipôle-dipôle [Walker and Saffman, 2005],[Walker and Saffman, 2008]. Nous allons détailler ce point dans la suite du chapitre.

atomes $P_f=0.9$ et pour 1.7 atomes $P_f=0.52$) comme on peut le voir sur la figure 2.37. Dans [Urban et al., 2008] le même groupe piège deux atomes dans un piège FORT. Le blocage de l'excitation est alors de 70%. Ils n'observent cependant toujours pas d'oscillation collective pour les mêmes raisons que précédemment (couplages entre sous niveaux dégénérés dont certains ont une intensité de blocage très faible).

2.5.1 Excitation collective à deux atomes

Cette expérience est le résultat d'une collaboration supporté par l'IFRAF entre l'équipe atomes et molécules froids du Laboratoire Aimé Cotton et le groupe d'optique quantique de l'Institut d'Optique avec le soutien de l'IFRAF. L'ensemble des expériences à été réalisé au Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique. Notre équipe à apporté ses connaissances des atomes de Rydberg et du blocage dipolaire. L'objectif de ce travail est de réaliser une excitation collective de deux atomes dans un régime de blocage dipolaire fort en les piégeant au waist de deux faisceaux laser de forte intensité décalés vers le rouge d'une transition atomique. Le contrôle de l'interaction dipôle-dipôle semble plus aisé à l'échelle de deux atomes en vue d'application pour l'information quantique.

Le choix de l'état dans lequel doit être excité le rubidium 87 est important car il n'est pas possible d'appliquer de champ électrique statique pour mélanger les états par effet Stark dans cette expérience. Cet état doit être proche d'une résonance et ne pas avoir un nombre quantique trop élevé pour ne pas être trop sensible aux champs parasites.

Suite à mes calculs nous avons fait le choix de l'état $58d_{3/2}$. En effet celui ci est le plus proche d'une résonance de Förster pour des valeurs de nombres quantiques compris entre $n=30$ et $n=80$, l compris entre 0(s) et 3(f) de la forme

$$nl + nl \rightarrow n'l' + n''l''$$

et en particulier ici la résonance choisie est $58d_{3/2} + 58d_{3/2} \rightarrow 60p_{1/2} + 56f_{5/2}$. L'écart à la résonance $E_{58d_{3/2}} + E_{58d_{3/2}} - (E_{60p_{1/2}} + E_{56f_{5/2}})$ est $\Delta=6.92\text{MHz}$. Nous avons calculé ces valeurs. L'écart d'énergie entre paires d'atomes pour le rubidium sont regroupés sur la figure 2.1. Le comportement attendu de l'interaction est de type dipôle-dipôle en C_3/R^3 . A $4\mu\text{m}$ l'énergie d'interaction est de presque 50MHz dans le cas $58d_{3/2}$.

$nl + nl$	<i>résonance</i>	ΔMHz
$38p_{3/2}$	$39s + 38s$	4.46192
$58d_{3/2}$	$60p_{1/2} + 56f_{5/2}$	6.92266
$59d_{3/2}$	$61p_{1/2} + 57f_{5/2}$	-8.5619
$43d_{5/2}$	$45p_{3/2} + 41f_{5/2}$	6.0557
$43d_{5/2}$	$45p_{3/2} + 41f_{7/2}$	8.34255

TABLE 2.1 – Résonance à champ électrique nul, de type Förster dans le rubidium 87 en considérant uniquement les transitions dipolaires pour $30 < n < 80$.

Les deux atomes dans l'état $5s$ sont piégés dans deux pinces optiques dont la distance est contrôlée. La description complète de cette expérience se trouve dans la référence [Gaetan et al., 2009]. L'axe de quantification est défini le long de la direction d'un champ magnétique appliqué. Le PMO est coupé pendant que les 2 atomes sont excités par absorption de deux photons (780 nm et 480 nm) vers l'état de Rydberg $58d_{3/2}$. La présence d'un atome de Rydberg est détectée par perte du signal de fluorescence lorsque le piège dipolaire est rallumé car l'atome dans un état de Rydberg est perdu pour le piège FORT.

Effet de la dégénérescence des niveaux Zeeman

Considérons la résonance suivante

$$nlj + nlj \rightarrow n_s l_s j_s + n_t l_t j_t$$

La combinaison des états Zeeman dégénérés de l'état excité doivent être pris en compte dans le calcul de l'interaction dipolaire [Walker and Saffman, 2008]. Dans notre cas les deux atomes A et B excités sont dans le même état j et il existe alors $(2j+1)$ valeurs dégénérées de $|M = m_A + m_B| < 2j$ (pour un total de $(2j+1)^2$ états). Pour chacun des états M nous pouvons calculer les valeurs propres D_α d'un opérateur D qui, pour une résonance donnée, couple l'état initial $|nljm_A, nljm_B\rangle$ à l'état final $|n_s l_s j_s m_s, n_t l_t j_t m_t\rangle$ (ce terme est obtenu par l'application du théorème de Wigner-Eckart pour l'ensemble des deux paires, entre l'état initial et l'état final.).

Dans ce cas l'interaction dipolaire (au deuxième ordre car les énergies des paires sont non dégénérées à l'infini) s'écrit alors

$$V_v dW = \frac{C_6}{R^6} D_\alpha$$

avec $C_6 = \sum_{ns, nt} \frac{(\mu_{nl, n_s l_s} \mu_{nl, n_t l_t})^2}{\delta_{paires}}$ avec les états atomiques comme indices des moments dipolaires. Les états propres et les énergies propres sont obtenues par diagonalisation de la matrice d'interaction entre l'état de départ et l'état final. On obtient alors les mêmes équations que celle présentées dans le premier chapitre pour le couplage dipolaire en champ électrique. Les énergies propres sont données par (ici $C_6 = C_3^2/\Delta$)

$$V_\pm(R) = \frac{\Delta}{2} \pm \frac{1}{2} \sqrt{\Delta^2 + 4C_3^2 D_\alpha / R^6}$$

Nous représentons sur la figure 2.38 les coefficients D_α et les courbes de potentiels pour la résonance qui nous intéresse, à savoir $58d_{3/2} + 58d_{3/2} \rightarrow 60p_{1/2} + 56f_{5/2}$. La probabilité d'exciter un atome à une distance R donnée sur l'état $58d_{3/2}$ associé au coefficient D_α est proportionnelle à $\cos^2 \Theta$, avec $\tan(2\Theta) = -2\sqrt{D_\alpha} \frac{C_3}{\Delta R^3}$. L'intensité du blocage dipolaire est définie dans [Walker and Saffman, 2008] comme la somme des termes d'interaction entre ces états pondéré par l'amplitude relative d'excitation de ces paires dans une géométrie expérimentale donnée. Il y a deux états $D_\alpha=0$ pour $|M|=0$ pour la résonance considérée. Ces états vont donc contribuer à diminuer le blocage dipolaire si leur amplitude lors de l'excitation est non négligeable.

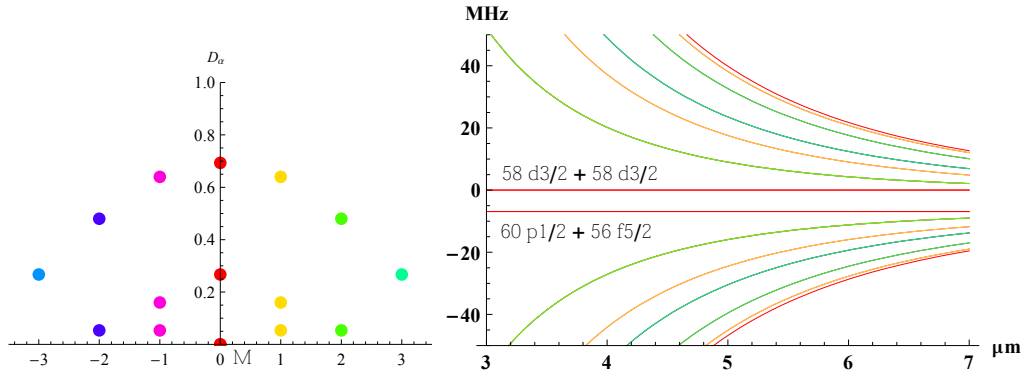


FIGURE 2.38 – À gauche, coefficients van der Waals D_α en fonction de $|M|$ avec une couleur associée à chaque valeur de M . À droite, courbes de potentiel reprenant le code couleur de gauche. Les potentiels sont $58d_{3/2} + 58d_{3/2}$ et $60p_{1/2} + 56f_{5/2}$ calculés le long de l'axe internucléaire. La référence des énergies est prise en $E(58d_{3/2} + 58d_{3/2})$. La distance van der Waals est $R_{vdW}=8.11\mu\text{m}$ dans ce cas.

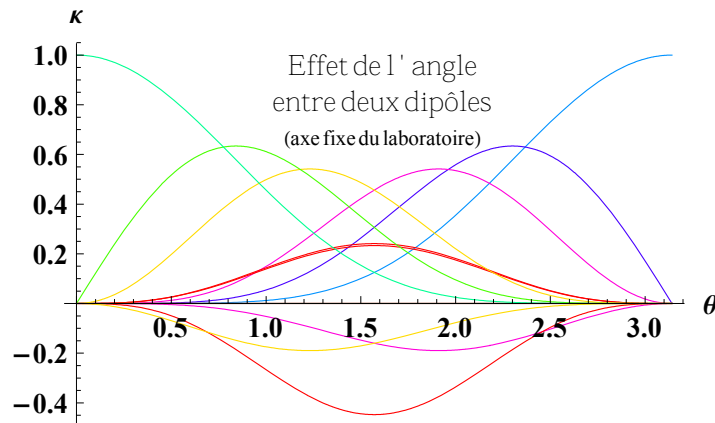


FIGURE 2.39 – Amplitude $\kappa(\Theta, \alpha)$ de l'excitation des états de départ projetés sur l'axe de quantification. L'amplitude de l'excitation dépend de l'angle relatif entre les deux atomes.

Les courbes de potentiels ont été calculées le long de l'axe internucléaire. En définissant un axe fixe dans le référentiel du laboratoire nous pouvons évaluer l'effet de l'orientation relative des atomes sur l'intensité du blocage dipolaire¹⁶. Le paramètre $\kappa(\theta, \alpha)$ définit l'intensité de la projection de chaque état de départ α sur un axe fixe du laboratoire (qui sera choisi comme axe de quantification) en fonction de l'angle θ entre les atomes. Sur la figure 2.39 on peut voir l'effet de l'orientation relative des atomes sur l'axe fixe pour chacun des états de départ. Le choix de la géométrie de l'excitation permet de réduire l'effet des états très faiblement couplés.

L'intensité moyenne du blocage dipolaire B , ou blocage effectif, pour N atomes à deux niveaux est reliée à la probabilité de double excitation P_2 qui s'écrivent en suivant

16. Nous utilisons les matrices de rotations réduites de Wigner pour cette opération

[Walker and Saffman, 2008]

$$\frac{1}{B^2} = \frac{2}{N(N-1)} \sum \frac{\kappa^2(\theta, \alpha)}{\Delta^2(\alpha, R)} \quad (2.14)$$

$$P_2 = \frac{(N-1)(\sqrt{N}\Omega)^2}{2NB^2} \quad (2.15)$$

où $\Delta(\alpha, R)$ est le décalage à résonance pour les états dans la configuration α à la distance R . Le facteur de décalage D et le décalage par rapport à la résonance $\delta\nu$ du système à deux niveaux sont donnés par

$$\frac{1}{D} = \frac{2}{N(N-1)} \sum \frac{\kappa^2(\theta, \alpha)}{\Delta(\alpha, R)} \quad (2.16)$$

$$\delta\nu = \frac{(N-1)(\sqrt{N}\Omega)^2}{2ND} \quad (2.17)$$

Il est alors possible que le le blocage effectif B soit tel que la probabilité de double excitation P_2 est importante (pas de blocage collectif) alors que le facteur de décalage D est suffisamment important pour que le décalage à résonance $\delta\nu$ soit supérieur à fréquence de Rabi de l'excitation (déphasage de l'excitation). Ce cas est celui de [Johnson et al., 2008] et de [Urban et al., 2008] que nous avons décrit plus haut.

Ainsi il semble plus judicieux de choisir un angle telle que les états les moins couplés (les zéros d'interaction) aient une amplitude très faible sur l'axe de quantification (pour limiter leur impact sur B), ce qui correspond sur la figure 2.39 à faire le choix d'aligner les atomes le long de l'axe de quantification ($\Theta=0$, dans ce cas le états $|M|=0$ ont une contribution presque nulle). Le blocage est alors de l'ordre de 50MHz si les deux atomes sont alignés à mieux que 2 degrés.

La situation la plus favorable est donc d'aligner les atomes le long de l'axe de quantification et de n'exciter que l'état $m_j=+3/2$ en polarisant l'excitation du laser à 480 nm en σ_+ . Dans cette expérience les atomes sont polarisés dans l'état $5s_{1/2}F=2 M_F=2$ puis ils sont excités à deux photons en passant par $5p_{1/2}F=2 M_F=2$ vers le $5d_{3/2}F=3 M_F=3$.

Résultats

Dans un premier temps les pièges sont séparés de $18\mu m$. Lorsqu'un seul atome est présent dans un piège, l'oscillation de Rabi entre l'état fondamental et l'état excité est visible sur la figure 2.40a et la fréquence correspondante est en accord avec les paramètres expérimentaux. Les deux atomes sont ensuite excités simultanément et la mesure d'une double excitation est comparée avec l'excitation individuelle sur la même figure 2.40a. Une courbe calculée à partir du produit des excitations individuelles de chaque atome est superposée au résultat et indique qu'il n'y a pas d'interaction notable à cette distance $18\mu m$, comme attendu.

Dans un deuxième temps les pièges sont séparés de $3.6\mu m$ et la même expérience qu'en a est répétée sur la figure 2.40b. Cette fois la probabilité de double excitation

ne correspond plus au produit des excitations individuelles de chaque atome. L'interaction attendue à une distance de $4\mu\text{m}$, de l'ordre de 50 MHz, est plus importante que la largeur spectrale de l'excitation (7 MHz). Les atomes interagissent fortement sous l'effet de l'interaction résonante dipôle-dipôle et on voit la suppression de la double excitation. La probabilité résiduelle peut avoir plusieurs origines comme la présence de champs parasites ou bien la contribution d'états α' différents de l'état excité α qui diminuent l'intensité du blocage dipolaire selon la projection de l'axe internucléaire sur l'axe de quantification [Walker and Saffman, 2008], [Walker and Saffman, 2005].

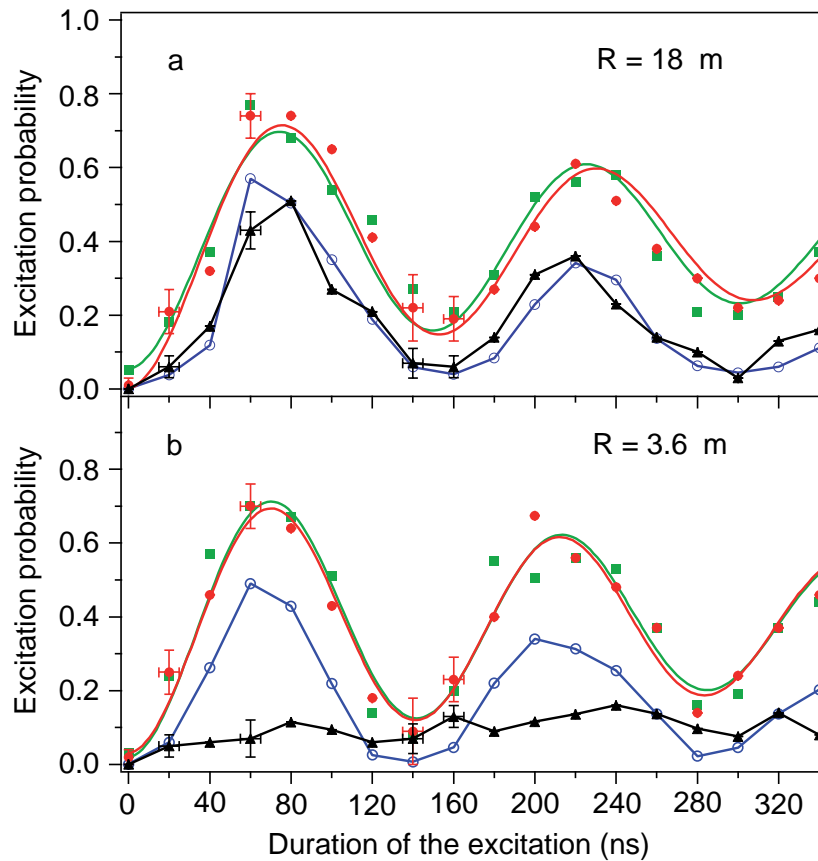


FIGURE 2.40 – Excitation Rydberg de deux atomes. Dans les deux figures, les cercles rouges et les carrés verts représentent la probabilité d'exciter l'atome a et l'atome b respectivement, lorsque l'autre atome est absent. Les données sont ajustées avec la fonction $A - Be^{t/\tau} \cos\Omega t$, indiquée en trait plein. Les cercles bleus vides sont le produit de la probabilité d'exciter l'atome a et l'atome b lorsque l'autre atome est absent. Les triangles sont la probabilité d'exciter les deux atomes simultanément lorsqu'ils sont excités par la même impulsion. (a) Les atomes sont séparés de $18\mu\text{m}$. Les fréquences de Rabi sont de 6.5MHz pour l'atome a et 6.4MHz pour l'atome b . L'accord entre les triangles et les cercles bleus indique que les atomes n'interagissent pas. (b) Blocage de l'excitation lorsque les deux atomes sont séparés de $3.6\mu\text{m}$. L'interaction entre atomes diminue fortement la double excitation.

Enfin la probabilité d'exciter un atome sur les deux atomes présent à $3.6\mu\text{m}$ est représentée en fonction de la durée d'excitation 2.41. Le cas où seul un atome est présent avant l'excitation est également reproduit. Le rapport des fréquences d'excitations est

voisin de $\sqrt{2}$ ce qui confirme une excitation collective des deux atomes comme nous l'avons décrit pour l'équation 2.12.

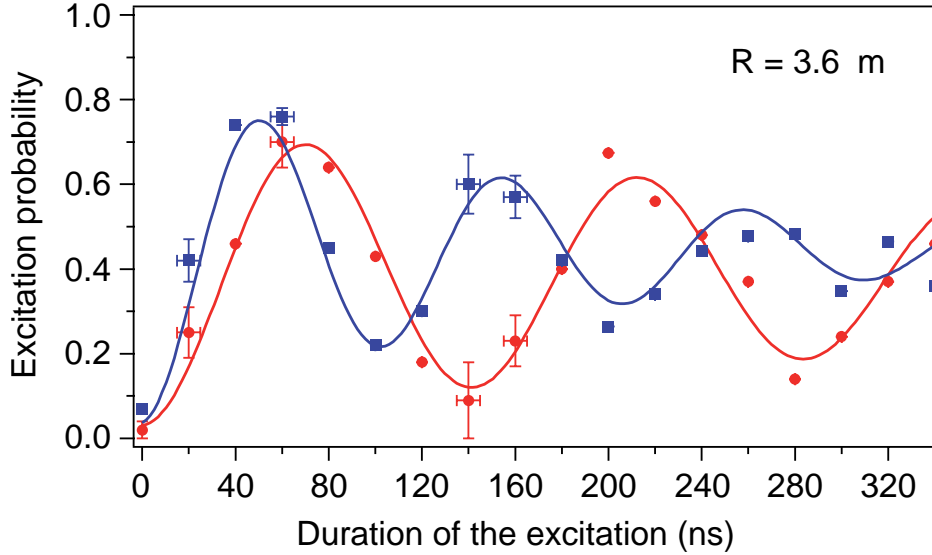


FIGURE 2.41 – Excitation collective de deux atomes séparés de $3.6\mu\text{m}$. Les cercles représentent la probabilité d'exciter l'atome a lorsque l'atome b est absent (comme sur la figure 2.40). Un ajustement des données indique une fréquence de Rabi de $\Omega/2\pi=7.0\pm 0.2\text{MHz}$ (Les barres d'erreurs viennent de l'ajustement). Les carrés représentent la probabilité d'exciter un unique atome lorsque les deux atomes sont piégés et reçoivent la même impulsion d'excitation. L'ajustement indique une oscillation de fréquence $\Omega'/2\pi = 9.7 \pm 0.2\text{MHz}$. Le ratio des fréquences d'oscillation est 1.38 ± 0.003 , ce qui est proche de la valeur $\sqrt{2}$ attendue pour l'oscillation collective de deux atomes entre $|g, g\rangle$ et $|\Psi_{\pm}\rangle$ ($|\Psi_{\pm}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_a}|r, g\rangle \pm e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_b}|g, r\rangle)$ représente l'état symétrique (+) et anti-symétrique (-) du système avec une excitation collective. L'état (-) a une amplitude de probabilité nulle).

2.6 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons introduit la motivation pour l'étude du blocage dipolaire d'une excitation d'atomes dans un état de Rydberg avec les propositions pour la réalisation de portes logiques quantiques.

Nous avons montré que le contrôle de l'intensité de blocage dipolaire à longue portée en C_3/R^3 peut être atteint de plusieurs manières. La première configuration utilisée consiste à ce positionner au voisinage d'une résonance de Förster où l'interaction entre atomes de Rydberg est fortement augmentée. Ceci a constitué la première mise en évidence du blocage dipolaire de l'excitation. Cependant le choix des résonances accessibles est limité au niveau $n_p \leq 42$ ce qui est une condition de limitation pour atteindre des régimes de couplage fort pour l'interaction dipôle-dipôle.

Nous avons ensuite étudié expérimentalement le blocage dipolaire en couplant les états internes des atomes de Rydberg par application d'un champ électrique constant. Ceci nous a permis de considérer des états de nombre quantique principal supérieur

à 70 et jusqu'à $n=120$. Dans les deux cas de blocage dipolaire que nous avons étudié, l'effet du blocage dipolaire de l'excitation indique des interactions à longues distances qui peuvent être mise à profit pour contrôler l'excitation d'un nombre d'atomes fixés, à partir d'un nuage atomique macroscopique [Lukin et al., 2001].

Nous avons terminé ce chapitre en faisant le point sur l'état de l'art sur l'utilisation du blocage dipolaire d'atomes de Rydberg. La mise en évidence en collaboration avec le LCFIO d'une excitation collective d'une paire d'atomes dans l'état de Rydberg offre des perspectives rapides à la réalisation d'une porte quantique.

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](https://doi.org/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

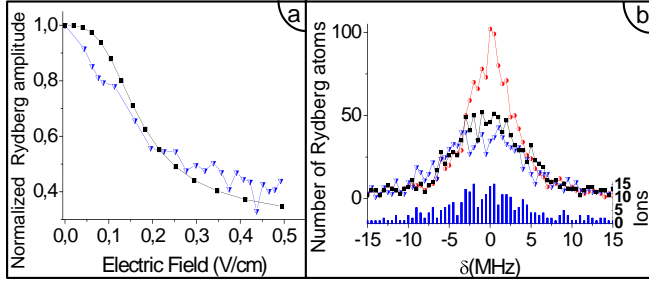


FIG. 1 (color online). Comparison of the DB with the ion blockade effect. Number of atoms excited from ground state to the $70p_{3/2}$ Rydberg state after a 300 ns laser excitation. (a) Reduced density matrix model (see text) for different external electric-field values. Down triangles: a single ion 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 $6p$, $7s$ 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 $np_{3/2}$ $|m| = 1/2$. 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} , $\langle np_j, m, F | q_e r \vec{r} | np_j, m, F \rangle = \vec{\mu}$. 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

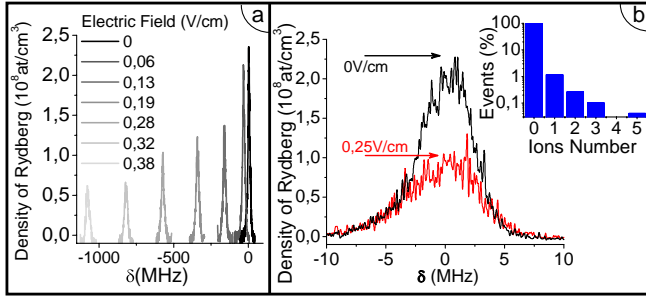


FIG. 2 (color online). (a) Excitation spectral lines of the $75p_{3/2}$ level recorded for different electric fields with $\sigma = 120 \mu\text{m}$. (b) Excitation spectral lines of the $70p_{3/2}$ level for two different fields, as a function of the detuning from the resonance frequency of the transition $7s \rightarrow 70p_{3/2}$ 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

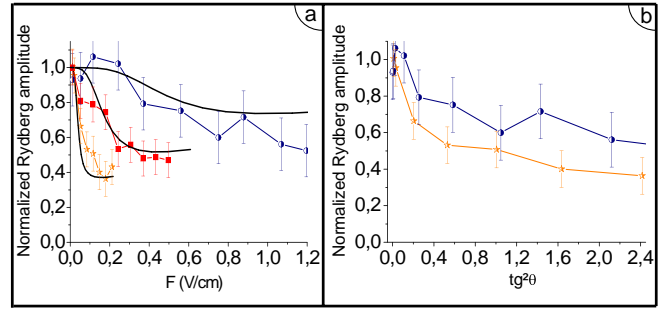


FIG. 3 (color online). (a) Probability, as a function of the electric field, of Rydberg atoms excitation in our sample compared to the single atom probability excitation. n is equal to 60 (circles), 70 (squares), and 85 (stars). The Ti:Sa laser intensity is given by $(n/85)^3 \times 560 \text{ W/cm}^2$. 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

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

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

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

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

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

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].

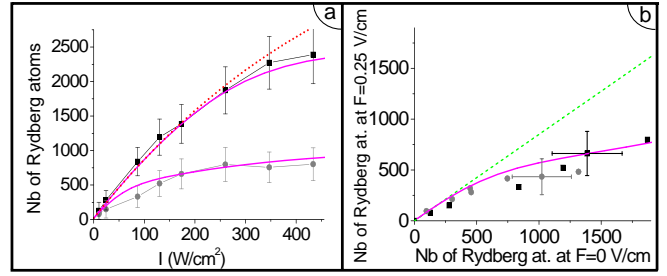


FIG. 4 (color online). Number of Rydberg atoms excited versus the Ti:Sa laser intensity, in the case of the $70p_{3/2}$ state, for (a) $7s$ -atom density $D \sim 4 \pm 2 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$ and in the presence of two different electric fields, 0 V/cm (squares) and $F_1 = 0.25 \text{ V/cm}$ (circles); (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](https://doi.org/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

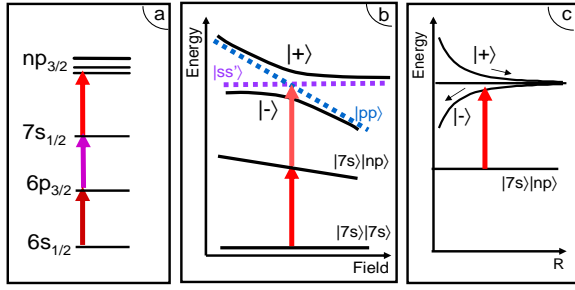


FIG. 1 (color online). (a) Three-step scheme of excitation for $np_{3/2}$ Rydberg levels. (b) Excitation of a pair of atoms at the Förster resonance. The dipole-dipole coupling $W \sim \mu\mu'R^{-3}$ leads to an avoided crossing between the energy levels of the pair of atoms $pp \equiv |np_{3/2}\rangle \otimes |np_{3/2}\rangle$ 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

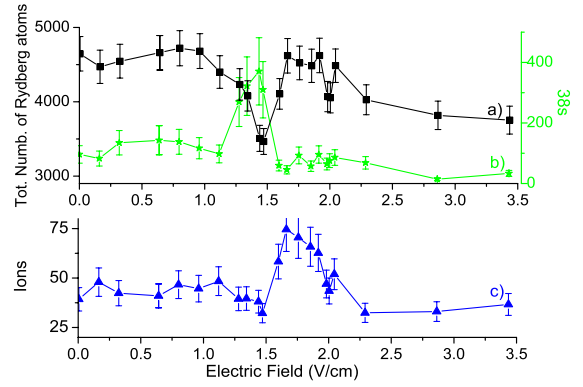


FIG. 2 (color online). Dipole blockade for the $38p_{3/2}$ level versus the applied electric field for a $7s$ -atom density $\sim 8 \pm 3 \times 10^9$ cm⁻³. For each recorded point of the curves, the Ti:Sa laser is resonant with the transition $7s \rightarrow 38p_{3/2}$, with a power ~ 8 mW corresponding 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, $D \sim 8 \pm 3 \times 10^9$ cm $^{-3}$ (case also considered in Figs. 2 and 4) and $D/3 \sim 2.7 \times 10^9$ 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

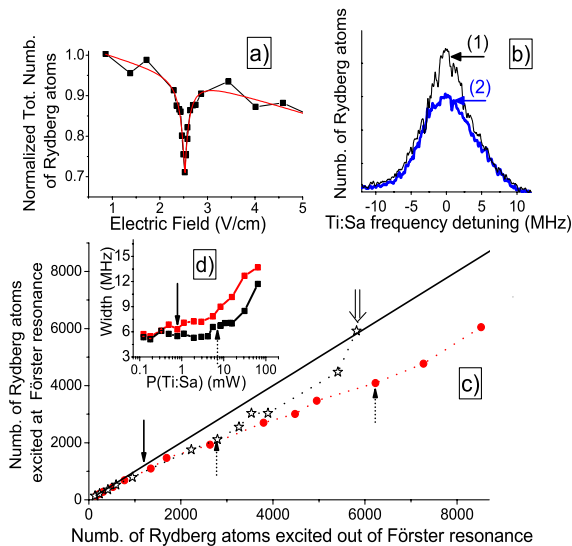


FIG. 3 (color online). Dipole blockade for the $36p_{3/2}$ level. Similar conditions as Fig. 2 are used in (a) and (b). (a) Field sweep of the FR. The signal is normalized to one at 0.86 V/cm. (b) Excitation spectral lines for two different fields: (1) at FR ($F = 2.52$ V/cm) and (2) off FR at 0.86 V/cm. (c) Total number of Rydberg atoms at FR versus the one off FR ($F' = 1.37$ V/cm), for the $7s$ -atom densities $D \sim 8 \pm 3 \times 10^9$ 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 .

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

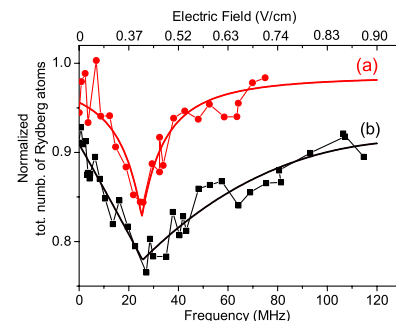


FIG. 4 (color online). Normalized total number of excited $41p_{3/2}$ Rydberg atoms versus the Stark shift (V/cm and MHz) of the $41p_{3/2}$ Stark level. The electric field has been converted to frequency using the experimental Stark shifts, in agreement with calculated ones. The two curves correspond 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.

(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

$$\begin{aligned} ns + np_{3/2} &\rightarrow np_{3/2} + ns \\ \text{and } (n+1)s + np_{3/2} &\rightarrow np_{3/2} + (n+1)s. \end{aligned} \quad (2)$$

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).

Observation of collective excitation of two individual atoms in the Rydberg blockade regime

Alpha Gaëtan¹, Yevhen Miroshnychenko¹, Tatjana Wilk¹, Amodsen Chotia², Matthieu Viteau², Daniel Comparat², Pierre Pillet², Antoine Browaeys^{1*} and Philippe Grangier¹

When two quantum systems interact strongly with each other, their simultaneous excitation by the same driving pulse may be forbidden. The phenomenon is known as blockade of excitation. Recently, extensive studies have been devoted to the so-called Rydberg blockade between neutral atoms, which appears when the atoms are in highly excited electronic states, owing to the interaction induced by the accompanying large dipole moments. Rydberg blockade has been proposed as a basic tool in quantum-information processing with neutral atoms^{1–5}, and can be used to deterministically generate entanglement of several atoms. Here, we demonstrate Rydberg blockade between two atoms individually trapped in optical tweezers at a distance of 4 μm . Moreover, we show experimentally that collective two-atom behaviour, associated with the excitation of an entangled state between the ground and Rydberg levels, enhances the allowed single-atom excitation. These observations should be a crucial step towards the deterministic manipulation of entanglement of two or more atoms, with possible implications for quantum-information science, as well as for quantum metrology, the study of strongly correlated systems in many-body physics, and fundamental studies in quantum physics.

A large experimental effort is nowadays devoted to the production of entanglement, that is quantum correlations, between individual quantum objects such as atoms, ions, superconducting circuits, spins or photons. There are several ways to engineer entanglement in a quantum system. Here, we focus on a method that relies on a blockade mechanism where the strong interaction between different parts of a system prevents their simultaneous excitation by the same driving pulse. Single excitation is still possible but is delocalized over the whole system, and results in the production of an entangled state. This approach to entanglement is deterministic and can be used to realize quantum gates¹ or to entangle mesoscopic ensembles, provided that the blockade is effective over the whole sample². Blockade effects have been observed in systems where interactions are strong such as systems of electrons using the Coulomb force⁶ or the Pauli effective interaction⁷, as well as with photons and atoms coupled to an optical cavity⁸. Recently, atoms held in the ground state of the wells of an optical lattice have been shown to exhibit interaction blockade, due to *s*-wave collisions⁹. An alternative approach uses the comparatively strong interaction between two atoms excited to Rydberg states. This strong interaction gives rise to the so-called Rydberg blockade, which has been observed in clouds of cold atoms^{10–15} as well as in a Bose condensate¹⁶. A collective behaviour associated with the blockade has been reported in an ultracold atomic cloud¹⁷. Recently, an experiment demonstrated the blockade

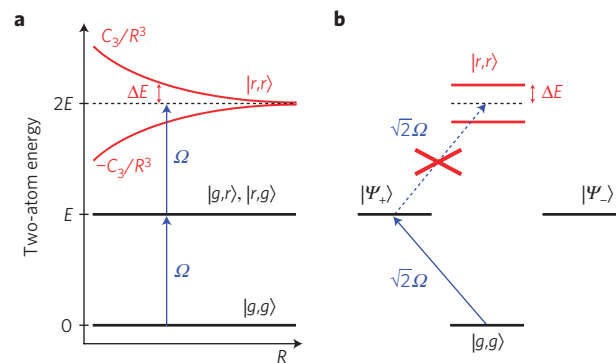


Figure 1 | Rydberg excitation of two atoms in the blockade regime.

a, Principle of the Rydberg blockade between two atoms separated by a distance R . Two states $|g\rangle$ and $|r\rangle$ are coupled with Rabi frequency Ω . When the two atoms are in state $|r,r\rangle$, they interact strongly, which leads to symmetrical energy shifts $\Delta E = \pm(C_3/R^3)$. When this shift becomes larger than $\hbar\Omega$, the laser is out of resonance with the transition coupling the singly and doubly excited states, and only one atom at a time can be transferred to the Rydberg state. **b**, When the atoms are in the blockade regime, the state $|\Psi_+\rangle$, described in the text, is only coupled to the ground state $|g,g\rangle$ with a strength $\sqrt{2}\Omega$, whereas the state $|\Psi_-\rangle$ is not coupled by the laser to the states $|g,g\rangle$ and $|r,r\rangle$. The atoms are therefore described by an effective two-level system.

between two atoms 10 μm apart, by showing that when one atom is excited to a Rydberg state, the excitation of the second one is greatly suppressed¹⁸. However, the enhancement of the excitation rate of one atom when two atoms are present, explained by the excitation of an entangled state in the blockade regime, has not been observed until now.

Here, we study two individual atoms, held at a few micrometres distance by two optical tweezers. The ground state $|g\rangle$ and a Rydberg state $|r\rangle$ of an atom are separated by an energy E (see Fig. 1a) and can be coupled by a laser. For non-interacting atoms, **a** and **b**, the two-atom spectrum exhibits two transitions at the same frequency E/\hbar , connecting states $|g,g\rangle$ to $|r,g\rangle$ or $|g,r\rangle$, and then to $|r,r\rangle$. This enables the simultaneous excitation of the two atoms to state $|r,r\rangle$. However, if the two atoms interact strongly when in state $|r,r\rangle$, this energy level is shifted by an amount ΔE and the laser excitation cannot bring the two atoms to state $|r,r\rangle$. A fundamental consequence of this blockade is that the atoms are excited in the entangled state $|\Psi_+\rangle = (1/\sqrt{2})(e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_a}|r,g\rangle + e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_b}|g,r\rangle)$, where \mathbf{r}_a and \mathbf{r}_b are the positions of the two atoms and \mathbf{k} is related to the wave vectors of the exciting lasers. More

¹Laboratoire Charles Fabry, Institut d'Optique, CNRS, Univ Paris-Sud, Campus Polytechnique, RD 128, 91127 Palaiseau cedex, France, ²Laboratoire Aimé Cotton, CNRS, Univ Paris-Sud, Bâtiment 505, Campus d'Orsay, 91405 Orsay cedex, France. *e-mail: antoine.browaeys@institutoptique.fr.

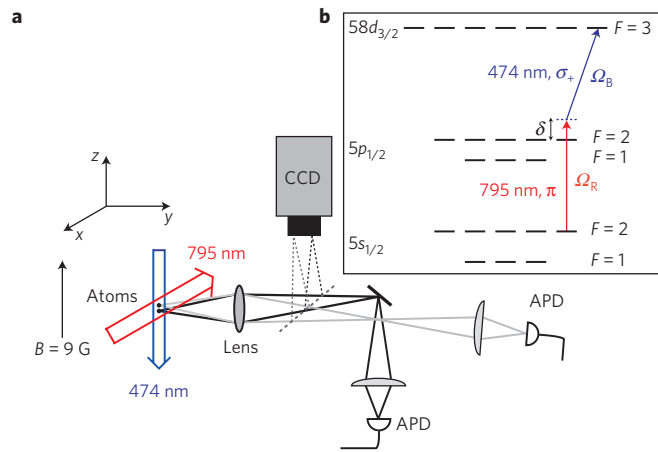


Figure 2 | Experimental details. **a**, Two rubidium 87 atoms are trapped in two tightly focused dipole traps (not shown). The quantization axis is set by a 9 G magnetic field. The fluorescence of each trap is collected on two separated photon-counting avalanche photodiodes (APD). We can also image the two atoms on a CCD (charge-coupled device) camera, which enables us to measure the distance between the atoms. **b**, The atoms are excited to the Rydberg state by a two-photon transition. An infrared laser at 795 nm propagating along the x axis, with π -polarization, couples states $|5s_{1/2}, F=2, M_F=2\rangle$ and $|5p_{1/2}, F=2, M_F=2\rangle$. The laser is detuned to the blue side of this transition by $\delta = 400$ MHz, with a beam waist of $130 \mu\text{m}$ and a power of 7 mW. The second laser at 474 nm is σ_+ -polarized, coupling the states $|5p_{1/2}, F=2, M_F=2\rangle$ and $|5d_{3/2}, F=3, M_F=3\rangle$, and propagates along the z axis. It is focused on $25 \mu\text{m}$ with 30 mW power. From a light-shift measurement, we get a Rabi frequency $\Omega_R \approx 2\pi \times 260$ MHz. The two-photon Rabi frequency, measured experimentally (see Fig. 3), is given by $\Omega = (\Omega_R \Omega_B / 2\delta)$, leading to $\Omega_B \approx 2\pi \times 21$ MHz.

precisely, the laser excitation is described by the operator $(\hbar\Omega/2)(e^{ik\cdot r_a}|r, g\rangle\langle g, g| + e^{ik\cdot r_b}|g, r\rangle\langle g, g| + \text{complex conjugate})$ (ref. 19). Here, Ω is the Rabi frequency characterizing the coupling between the laser and one atom. It is then convenient to use as a basis the two entangled states $|\Psi_{\pm}\rangle = (1/\sqrt{2})(e^{ik\cdot r_a}|r, g\rangle \pm e^{ik\cdot r_b}|g, r\rangle)$, so that $|\Psi_{-}\rangle$ is not coupled to the ground state, whereas $|\Psi_{+}\rangle$ is coupled with an effective Rabi frequency $\sqrt{2}\Omega$. In the blockade regime, where the state $|r, r\rangle$ is out of resonance, the two atoms are therefore described by an effective two-level system involving collective states $|g, g\rangle$ and $|\Psi_{+}\rangle$ coupled with a strength of $\sqrt{2}\Omega$, as shown in Fig. 1b. Hence, the atoms are excited into an entangled state containing only one excited atom, with a probability oscillating $\sqrt{2}$ times faster than the probability to excite one atom when it is alone.

In our experiment, we excite two individual rubidium 87 atoms to the Rydberg state $|r\rangle = |5d_{3/2}, F=3, M_F=3\rangle$, with the internuclear axis aligned along the quantization axis. The state $58d_{3/2}$ was chosen because of the existence of a quasi-degeneracy between the two-atom states $(58d_{3/2}, 58d_{3/2})$ and $(60p_{1/2}, 56f_{5/2})$, also called a Förster resonance²⁰. As detailed in Supplementary Information, the dipole-dipole interaction lifts the degeneracy and leads to two potential curves $\pm(C_3/R^3)$, as represented in Fig. 1a. For our particular geometry, we calculated $C_3 \approx \hbar \times 3,200$ MHz μm^3 . Accordingly, the interaction energy between two atoms at distance $R = 4 \mu\text{m}$ is $\Delta E \approx \hbar \times 50$ MHz.

The two single rubidium 87 atoms are confined in two independent optical dipole traps, as shown in Fig. 2a. The traps are formed in the focal plane of the same large numerical aperture lens²¹. Each trap has a waist of $0.9 \mu\text{m}$ and a depth of 0.5 mK. The distance between the two traps can be varied between 3 and $20 \mu\text{m}$ with a precision of $0.5 \mu\text{m}$. The axis between the two traps is aligned with the magnetic field defining the quantization axis. The traps are

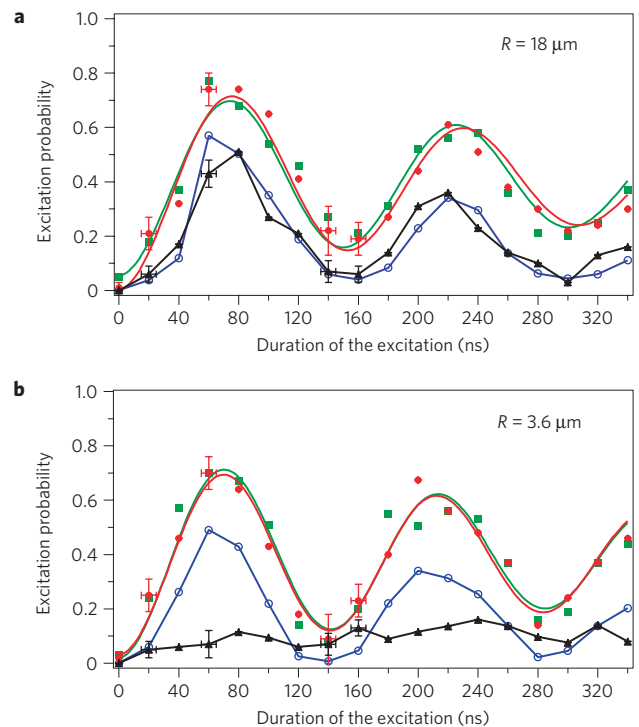


Figure 3 | Rydberg excitation of one and two atoms. In **a** and **b**, the red circles and the green squares represent the probability to excite atom a and atom b respectively, when the other atom is absent. We fit the data by the function $A - Be^{-\frac{1}{2}} \cos \Omega t$, shown as solid red and green lines. The error bars on the data are the r.m.s. statistical error on the measured probability, as well as the error in the estimation of the pulse duration. The blue open circles are the product of the probabilities to excite atom a and atom b when the other one is absent. The triangles are the probability to excite the two atoms simultaneously when they are driven by the same pulse. **a**, Atoms separated by $18 \mu\text{m}$. The frequencies of the Rabi oscillations are 6.5 and 6.4 MHz for atom a and b respectively. The agreement between the triangles and the blue circles indicates that the atoms do not interact. **b**, Blockade of the Rydberg excitation when the two atoms are separated by $3.6 \mu\text{m}$. Owing to the interaction between the atoms, this double excitation is greatly suppressed.

loaded from the cold atomic cloud of an optical molasses. We collect the fluorescence emitted by the atoms, induced by the cooling lasers, on two separated single-photon counters. A high fluorescence level indicates the presence of an atom in the respective trap and triggers the experimental sequence, described hereafter.

We prepare the two atoms in the hyperfine state $|g\rangle = |5s_{1/2}, F=2, M_F=2\rangle$ by a $600 \mu\text{s}$ optical pumping phase (efficiency $\sim 90\%$). We then excite the atoms to the Rydberg state $|r\rangle = |5d_{3/2}, F=3, M_F=3\rangle$ by a two-photon transition, as represented in Fig. 2b. The intermediate state $|5p_{1/2}, F=2, M_F=2\rangle$ is connected to the ground state by a laser detuned by 400 MHz to the blue side of the 795 nm transition to avoid populating the intermediate state. The second laser connects the $5p_{1/2}$ to the $5d_{3/2}$ state and has a wavelength of 474 nm. Both laser beams illuminate the two atoms. During the excitation (< 500 ns), the dipole trap is turned off to avoid an extra light-shift on the atoms. We finally detect the excitation to the Rydberg state through the loss of the atom after turning the dipole trap back on. In a Rydberg state, the atom is not trapped by the optical potential any longer. Owing to its residual velocity ($\sim 10 \text{ cm s}^{-1}$) it leaves the trapping region in less than $10 \mu\text{s}$. This time is much shorter than the lifetime of Rydberg state $58d_{3/2}$ induced by blackbody radiation ($160 \mu\text{s}$) and than the radiative decay time ($200 \mu\text{s}$; ref. 22).

In a first experiment, we placed the two traps at a distance of $18 \pm 0.5 \mu\text{m}$ and repeated the excitation sequence 100 times, starting each time with newly trapped atoms. We measured for each atom whether it was lost or recaptured at the end of each sequence and calculated the probability to excite it in the Rydberg state, which is equal to the probability to lose it. When only one of the two traps is filled, the excitation probability exhibits Rabi oscillations between the ground state and the Rydberg state, as shown in Fig. 3a. A fit to the data yields a two-photon Rabi frequency $\Omega \approx 2\pi \times 7 \text{ MHz}$, which is in agreement with the measured waists and powers of the lasers. The decay of the fringe amplitude is explained by frequency fluctuations ($\sim 1 \text{ MHz}$) as well as shot-to-shot intensity fluctuations of the lasers ($\sim 5\%$), which results in a jitter in the two-photon resonance frequency. We attribute the maximum excitation probability of $\sim 80\%$ to this decay and to the imperfect optical pumping of the atoms in the Zeeman state $|5s_{1/2}, F=2, M_F=2\rangle$.

We then repeated the sequence with two atoms trapped at the same time and measured the probability to excite the two atoms with the same laser pulse. The results are represented in Fig. 3a by the triangles. We compared this probability with the probability to excite simultaneously two non-interacting atoms, which should be equal to the product of the probabilities to excite each atom independently, measured previously. The blue circles in Fig. 3a represent this product, calculated from the data for each independent atom. The agreement between the two curves shows that the two atoms, when separated by $18 \mu\text{m}$, behave independently and therefore have a negligible interaction. This result agrees with the theory because the blockade becomes effective at a distance between the atoms for which the interaction shift ΔE is equal to the linewidth of the excitation pulse, of the order of the Rabi frequency Ω . For our particular choice of the Rydberg state, this yields $R \approx 8 \mu\text{m}$.

In a second step, we repeated the previous experiment but with a distance between the traps of $3.6 \pm 0.5 \mu\text{m}$, which is in a regime where blockade is expected. Once again we measured the probability to excite one atom when the other one is absent and got the one-atom Rabi oscillations. When two atoms were trapped, we measured the probability to excite the two atoms simultaneously, as shown in Fig. 3b by the triangles. The simultaneous excitation of the two atoms is greatly suppressed with respect to the case where the atoms are far apart. This suppression is the signature of the blockade regime. The fact that the probability of simultaneous excitation of the two atoms is not completely cancelled may be explained by the existence of extra potential curves coming from imperfect control of the atomic state and leading to smaller interaction energies²⁰. This imperfect control can be due to stray electric fields, imperfect polarizations of the lasers and random positions of the atoms in their trap (see last paragraph) meaning that the inter-nuclear axis is not always perfectly aligned with the quantization axis.

We now come to the direct observation of collective one-atom excitation in the blockade regime, that is, with two atoms separated by $R = 3.6 \mu\text{m}$. Figure 4 shows the probability to excite only one of the two atoms as a function of the duration of the excitation pulse, together with the probability to excite only one atom when the other dipole trap is empty. The two probabilities oscillate with different frequencies, the ratio of which is 1.38 ± 0.03 (the error corresponds to one standard deviation). This value is compatible with the ratio $\sqrt{2}$ that we expect in the blockade regime. As explained at the beginning of this letter, the oscillation of the probability to excite only one atom at a frequency $\sqrt{2}\Omega$ is the signature that the two-atom system oscillates between the state $|g, g\rangle$ and the entangled state $|\Psi_+\rangle = (1/\sqrt{2})(e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_a}|r, g\rangle + e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_b}|g, r\rangle)$, where $\mathbf{k} = \mathbf{k}_R + \mathbf{k}_B$ is the sum of the wave vectors of the two lasers involved in the two-photon transition.

Finally, we analyse the influence of the atoms' motion on this entangled state. We measured a temperature of the atoms in their

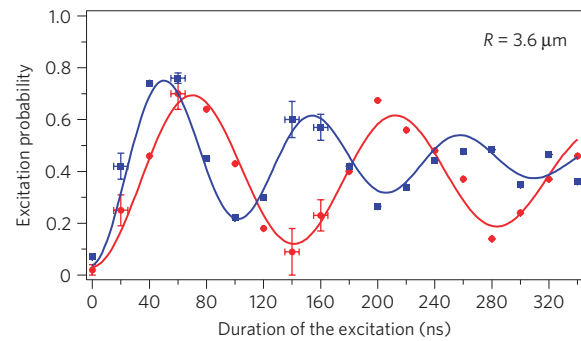


Figure 4 | Excitation of one atom versus collective excitation of two

atoms separated by 3.6 μm . The circles represent the probability to excite atom a when atom b is absent (same curve as in Fig. 3b). A fit to the data yields a frequency of this Rabi oscillation $\Omega/2\pi = 7.0 \pm 0.2 \text{ MHz}$. The error comes from the fit and corresponds to one standard deviation. The squares represent the probability to excite only one atom when the two atoms are trapped and are exposed to the same excitation pulse. The fit gives an oscillation frequency $\Omega'/2\pi = 9.7 \pm 0.2 \text{ MHz}$. The ratio of the oscillation frequencies is 1.38 ± 0.03 , close to the value $\sqrt{2}$ expected for the collective oscillation of two atoms between $|g, g\rangle$ and $|\Psi_+\rangle$.

trap of $70 \mu\text{K}$ (ref. 23). This leads to amplitudes of the motion of $\pm 800 \text{ nm}$ in the longitudinal (y) direction (trap frequency 16 kHz) and $\pm 200 \text{ nm}$ in the radial (x and z) direction of the traps (frequency 77 kHz). As the fastest oscillation period is $13 \mu\text{s}$ and the excitation time is of the order of a hundred nanoseconds, the motion of the atoms is frozen during the excitation. The temperature results only in a dispersion of the positions of the atoms from shot to shot. Therefore, the relative phase $\phi = \mathbf{k} \cdot (\mathbf{r}_a - \mathbf{r}_b)$ between the two components of the superposition is constant during the excitation, but varies randomly from shot to shot over more than 2π . This creates an effective decoherence mechanism for the state $|\Psi_+\rangle$, which would prevent the direct observation of the entanglement. However, this fluctuating phase can be erased in the following way: one first couples one hyperfine ground state $|0\rangle$ to a Rydberg state $|r\rangle$, producing the state $|\Psi_+\rangle = (1/\sqrt{2})(|r, 0\rangle + e^{i\phi}|0, r\rangle)$ as described in this letter. Then a second pulse, applied before the atoms move, couples $|r\rangle$ to a second hyperfine ground state $|1\rangle$. If the wave vectors of the two excitations are the same, the phase during the second step cancels the phase of the first excitation. The resulting entangled state is therefore $(1/\sqrt{2})(|1, 0\rangle + |0, 1\rangle)$, which involves long-lived atomic qubits^{24,25}.

In conclusion, the results presented here indicate that we control the physical mechanism needed to deterministically entangle two atoms on fast timescales, compatible with sub-microsecond operation of a quantum gate¹. Combined with our abilities to manipulate the state of a single atom²⁴, to keep and to transport its quantum state²⁵, our system is well adapted to applications of the Rydberg blockade in quantum-information processing.

Received 23 September 2008; accepted 11 December 2008; published online 11 January 2009

References

- Jaksch, D. *et al.* Fast quantum gates for neutral atoms. *Phys. Rev. Lett.* **85**, 2208–2211 (2000).
- Lukin, M. D. *et al.* Dipole blockade and quantum information processing in mesoscopic atomic ensembles. *Phys. Rev. Lett.* **87**, 037901 (2001).
- Safronova, M. S., Williams, C. J. & Clark, C. W. Optimizing the fast Rydberg quantum gate. *Phys. Rev. A* **67**, 040303 (2003).
- Saffman, M. & Walker, T. G. Analysis of a quantum logic device based on dipole–dipole interactions of optically trapped Rydberg atoms. *Phys. Rev. A* **72**, 022347 (2005).
- Hyafil, P. *et al.* Coherence-preserving trap architecture for long-term control of giant Ryberg atoms. *Phys. Rev. Lett.* **93**, 103001 (2004).

6. Fulton, T. A. & Dolan, G. J. Observation of single-electron charging effects in small tunnel junctions. *Phys. Rev. Lett.* **59**, 109–112 (1987).
7. Ono, K., Austing, D. G., Tokura, Y. & Tarucha, S. Current rectification by Pauli exclusion in a weakly coupled double quantum dot system. *Science* **297**, 1313–1317 (2002).
8. Birnbaum, K. M. *et al.* Photon blockade in an optical cavity with one trapped atom. *Nature* **436**, 87–90 (2005).
9. Cheinet, P. *et al.* Counting atoms using interaction blockade in an optical superlattice. *Phys. Rev. Lett.* **101**, 090404 (2008).
10. Tong, D. *et al.* Local blockade of Rydberg excitation in an ultracold gas. *Phys. Rev. Lett.* **93**, 063001 (2004).
11. Singer, K. *et al.* Suppression of excitation and spectral broadening induced by interactions in a cold gas of Rydberg atoms. *Phys. Rev. Lett.* **93**, 163001 (2004).
12. Afrousheh, K. *et al.* Spectroscopic observation of resonant electric dipole–dipole interaction between cold Rydberg atoms. *Phys. Rev. Lett.* **93**, 233001 (2004).
13. Cubel Liebisch, T., Reinhard, A., Berman, P. R. & Raithel, G. Atom counting statistics ensembles of interacting Rydberg atoms. *Phys. Rev. Lett.* **95**, 253002 (2005); erratum **98**, 109903 (2007).
14. Vogt, T. *et al.* Dipole blockade at Förster resonances in high resolution laser excitation of Rydberg states of cesium atoms. *Phys. Rev. Lett.* **97**, 083003 (2006).
15. van Ditzhuijzen, C. S. E. *et al.* Spatially resolved observation of dipole–dipole interaction between Rydberg atoms. *Phys. Rev. Lett.* **100**, 243201 (2008).
16. Heidemann, R. *et al.* Rydberg excitation of Bose–Einstein condensates. *Phys. Rev. Lett.* **100**, 033601 (2008).
17. Heidemann, R. *et al.* Evidence for collective Rydberg excitation in the strong blockade regime. *Phys. Rev. Lett.* **99**, 163601 (2007).
18. Urban, E. *et al.* Observation of Rydberg blockade between two individual atoms. *Nature Phys.* **5**, doi:10.1038/nphys1178 (2009).
19. Dicke, R. H. Coherence in spontaneous radiation process. *Phys. Rev.* **93**, 99–110 (1954).
20. Walker, T. G. & Saffman, M. Consequences of Zeeman degeneracy for the van der Waals blockade between Rydberg atoms. *Phys. Rev. A* **77**, 032723 (2008).
21. Schlosser, N., Reymond, G., Protsenko, I. & Grangier, P. Sub-poissonian loading of single atoms in a microscopic dipole trap. *Nature* **411**, 1024–1027 (2001).
22. Gallagher, T. F. *Rydberg Atoms* (Cambridge Univ. Press, 1994).
23. Tuchendler, C., Lance, A. M., Browaeys, A., Sortais, Y. R. P. & Grangier, P. Energy distribution and cooling of a single atom in an optical tweezer. *Phys. Rev. A* **78**, 033425 (2008).
24. Jones, M.P.A. *et al.* Fast quantum state control of a single trapped neutral atom. *Phys. Rev. A* **75**, 040301(R) (2007).
25. Beugnon, J. *et al.* Two-dimensional transport and transfer of a single atomic qubit in optical tweezers. *Nature Phys.* **3**, 696–699 (2007).

Acknowledgements

We thank M. Saffman, T. Walker, R. Côté and T. F. Gallagher for enlightening discussions. We thank I. Liu for theoretical support and T. Puppe for technical assistance with the lasers. We thank C. Evellin for calculations and experimental assistance, as well as L. Servant. We acknowledge support from the EU through the IP SCALA, and from IARPA and IFRAF. A.G. is supported by a DGA fellowship. Y.M. and T.W. are supported by IFRAF.

Additional information

Supplementary Information accompanies this paper on www.nature.com/naturephysics. Reprints and permissions information is available online at <http://npg.nature.com/reprintsandpermissions>. Correspondence and requests for materials should be addressed to A.B.

Chapitre 3

Modélisation Monte Carlo cinétique du blocage dipolaire en champ électrique

Nous présentons ici une méthode pour modéliser l'interaction et la dynamique d'atomes excités dans des états de Rydberg [Chotia et al., 2008]. Nous montrerons une façon de résoudre les équations de Bloch optique pour l'excitation laser du gaz gelé en bon accord avec l'expérience [Vogt, 2006]. Une seconde méthode, de type Monte Carlo cinétique (MCC), permet une résolution exacte des équations de taux. L'utilisation d'un intégrateur N-corps (Verlet) nous permet de décrire la dynamique de l'excitation spatialement et temporellement. Contrairement à des méthodes plus sophistiquées, la simulation Monte Carlo cinétique offre la possibilité de suivre l'évolution de centaines ou plus d'atomes en des temps de calculs raisonnables. La simulation Monte Carlo cinétique donne des résultats en bon accord avec l'expérience de blocage dipolaire décrite au chapitre précédent 2. Nous montrerons que l'effet des ions est non négligeable. Cette simulation a été initialement codée en C++ par Daniel Comparat. Je l'ai corrigée et adaptée à plusieurs situations de blocage dipolaire.

3.1 Modélisation du blocage dipolaire de l'excitation

Modèles utilisés pour décrire le blocage dipolaire

Différentes approches ont été suivies pour étudier le problème de l'excitation vers un état de Rydberg en présence d'atomes déjà excités. Parmi les modèles traitant de l'interaction de plusieurs particules, on peut citer par exemple la résolution d'une fonction d'onde à plusieurs particules dans [Robicheaux and Hernandez, 2005], la résolution d'équations de taux dans [Ates et al., 2007] ou bien une approche Monte Carlo dans [Amthor et al., 2007].

Dans la référence [Robicheaux and Hernandez, 2005] les atomes sont décrits par deux états $|g\rangle$ fondamental et $|e\rangle$ excité. Les atomes sont considérés comme gelés pendant toute la simulation. La fonction d'onde est la somme des fonctions d'ondes de N atomes à deux niveaux comportant de 0 à N excitations. La simulation est faite

dans un cube avec des conditions aux limites en forme de boucle, et avec un effet de champ moyen pour simuler les atomes à l'extérieur du cube [Hernandez, 2008]. Afin de réduire le temps de calcul une représentation simplifiée du problème est faite. Des pseudos atomes fixe dans l'espace remplacent les N atomes de la façon à avoir k pseudos atomes. Chaque pseudo atome contient N/k atomes et interagis avec le champ d'excitation avec un facteur $\sqrt{N/k}$. Les interactions entre atomes sont prises en compte au premier ordre (dipôle-dipôle) ou au second ordre (van der Waals). Les excitations sont obtenues en résolvant numériquement l'équation de Schrödinger dépendante du temps. Cette simulation permet de définir une région de l'espace à partir de laquelle plusieurs excitations sont possibles. Les résultats mettent également en évidence des corrélations spatiales, via le paramètre de Mandel Q ($Q = \frac{\langle N^2 \rangle - \langle N \rangle^2}{\langle N \rangle} - 1$), qui augmentent avec la densité initiale d'atomes. La résolution de l'équation de Schrödinger permet de suivre l'évolution de la phase du système, donnée que nous ne calculons pas dans notre simulation Monte Carlo. La principale difficulté de ce type de simulation est le temps nécessaire à la résolution du système et qui limite le nombre de pseudo atomes à quelques dizaines.

Dans la référence [Ates et al., 2007] l'évolution du nombre d'atomes de Rydberg excités par laser est d'abord décrite par l'évolution du produit des matrices densités des atomes individuels. La résolution des équations de Bloch optiques pour un atome est ensuite réduite à une équation de taux en faisant une approximation adiabatique des cohérences et en ajoutant au hamiltonien l'interaction dipôle-dipôle avec l'ensemble des atomes excités. Finalement les équations de taux sont utilisées avec un échantillonnage spatial des positions de type Monte Carlo. Ce modèle permet de montrer que des corrélations spatiales apparaissent lorsque le nombre quantique principal augmente, en mesurant le paramètre de Mandel comme nous l'avons indiqué au paragraphe 2.5.

Dans la référence [Amthor et al., 2007], un maximum de 5000 atomes peuvent être excités ou desexcités par laser. La probabilité de changer d'état est définie par le profil de l'excitation, le décalage à résonance et l'interaction van der Waals avec l'atome excité plus proche voisin. Un modèle d'équation horaire du mouvement à force centrale est utilisé pour rendre compte des collisions entre les paires d'atomes excités les plus proches. Avec ce modèle les auteurs de [Amthor et al., 2007] peuvent comparer la distribution des paires d'atomes excités lorsque l'excitation est décalée vers le rouge (paires plus éloignées) ou vers le bleu (paires plus proches). Le modèle permet de reproduire la présence d'ions due à des collisions entre paires d'atomes en fonction du délai entre l'excitation d'atomes de Rydberg. Par la suite un modèle Monte Carlo prend en compte la redistribution vers des états voisins par les photons du corps noir, la desexcitation spontanée et l'ionisation par les photons du corps noir (ces deux derniers processus font sortir l'atome considéré de la simulation) [Amthor, 2008]. Le résultat de la simulation permet d'obtenir un accord qualitatif avec les expériences d'ionisation sur des courbes de potentiel répulsives.

3.1.1 Développement de notre modèle

Nous discutons ci-après quelques hypothèses et simplifications que nous avons faites pour modéliser l'effet de blocage. La première simplification est faite en considérant

l'excitation vers les états np seulement. Les interactions de type dipôle-dipôle sont calculées pour les premiers et deuxièmes ordres entre le np et tous états voisins dans le diagramme Stark. En regardant l'excitation spécifique d'un atome, le décalage en énergie de l'état de Rydberg est du aux atomes voisins déjà excités. Comme nous le verrons, la contribution de chaque atome au phénomène de blocage peut être étudié et indique que l'effet dominant viens du plus proche voisin.

Lorsqu'un champ électrique est présent, qu'il soit externe ou bien du à des ions, les états de Rydberg se couplent à ce champ, créant un moment dipolaire permanent pour les atomes de Rydberg. Par exemple, pour le césium en présence d'un champ électrique \vec{F} , l'état np est principalement couplé avec l'état $(n-1)d$.

Notons $\mu_{pd} = \langle np_j, m_j = 1/2 | q_e z | (n-1)d_{j+1}, m_{j+1} = 1/2 \rangle$, le moment dipolaire de transition d'un atome dans un état np ($j, m_j = 1/2$) vers $(n-1)d$ ($j+1, m_{j+1} = 1/2$). Le paramètre d'échelle θ caractérise le couplage dipolaire de chaque niveau np défini par $\tan \theta = \frac{\mu_{pd} \cdot F}{h\Delta_{pd}/2}$, où $h\Delta_{pd}$ est la différence d'énergie à champ nul entre les niveaux $(n-1)d$ et np . Les niveaux d'énergie et les dipôles de transition sont obtenus par un calcul numérique donné par [Zimmerman et al., 1979] et expliqué dans le premier chapitre 1 et sont calculés dans notre cas pour les états correspondant à $|m_j| = 1/2$. Le moment dipolaire d'un atome dans un état np aligné avec le champ électrique local (\vec{F}) est donné par (ici z est la coordonnée le long du vecteur défini par \vec{F}) :

$$\mu_{pd}(F) = \langle np(F) | q_e z | np(F) \rangle = \mu_{pd} \sin \theta \quad (3.1)$$

Les vecteur de la base ($|np(\vec{F})\rangle, |(n-1)d(\vec{F})\rangle$) sont les états propres donnés par la diagonalisation de la matrice hamiltonienne

$$\begin{pmatrix} E_p & -\mu_{pd}F \\ -\mu_{pd}F & E_d \end{pmatrix} \quad (3.2)$$

où E_p et E_d sont les énergies des états np et nd en l'absence de champ électrique. Le décalage en énergie pour le niveau np est $h\Delta_p(\vec{F}) = \frac{h\Delta_{pd}}{2}(1 - \sqrt{1 + \tan^2(\theta)})$, où $h\Delta_{pd} = E_p - E_d$.

Il est possible de calculer le terme d'interaction dipôle-dipôle V_{ij} entre deux atomes i et j séparés de $\vec{R}_{ij} = R_{ij}\vec{n}_{ij}$. On a $V_{ij} = V_{ij}^{dip} + V_{ij}^2$ avec V_{ij}^{dip} et V_{ij}^2 qui sont les termes de premier et deuxième ordre de l'interaction dipolaire. Au premier ordre cette interaction s'écrit :

$$V_{ij}^{dip} = \frac{\vec{\mu}(\vec{F}_i) \cdot \vec{\mu}(\vec{F}_j) - 3 \left(\vec{\mu}(\vec{F}_i) \cdot \vec{n}_{ij} \right) \left(\vec{\mu}(\vec{F}_j) \cdot \vec{n}_{ij} \right)}{4\pi\epsilon_0 R_{ij}^3} \quad (3.3)$$

où $\vec{\mu}(\vec{F}_i) = \mu_{pd}(\vec{F}_i) \cdot \frac{\vec{F}_i}{\|\vec{F}_i\|}$ est le dipôle électrique permanent classique de i , aligné le long du champ électrique local \vec{F}_i . L'interaction au second ordre de la théorie des perturbations avec un terme que nous appelons van der Waals. La correction d'ordre 2 à l'énergie s'écrit

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

L'énergie potentielle d'un atome de Rydberg $np(i)$ est la somme de l'énergie du niveau en l'absence de champ électrique E_p plus le décalage du niveau dans le champ électrique local $\Delta_p(\vec{F}_i)$ plus la somme des interactions dipôle dipôle avec l'ensemble des atomes excités dans des états de Rydberg.

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

$$E_{pot}[i] = E_p + h \frac{\Delta_{pd}(i)}{2} (1 - \sqrt{1 + \tan^2(\theta_i)}) + \sum_{j \neq i} V_{ij} \quad (3.4)$$

Une importante part du temps de calcul est utilisée pour calculer les potentiels et les champs électriques.

3.2 Matrice densité réduite, champ moyen

Une autre méthode consiste à traiter l'évolution de la matrice densité pour l'excitation et y inclure l'interaction dipôle-dipôle. Les détails de ce travail peut être retrouvés dans la thèse [Vogt, 2006]. Nous revoyons ici les principaux développement et résultats. Le processus décrivant l'excitation à 3 photons pour un atome peut être décrit en utilisant les équations de Bloch optiques.

$$\frac{d\rho}{dt} = -\frac{i}{\hbar}[H, \rho] - \frac{1}{2}(\rho\Gamma + \Gamma\rho) + \gamma \quad (3.5)$$

où l'évolution temporelle de la matrice densité ρ est décomposée en trois termes. Le premier terme contient l'Hamiltonien H qui est la somme des énergies potentielles individuelles, et de l'interaction d'un atome avec tous les autres en présence de champs électriques $H = \sum_i E_{pot}[i] + \sum V_{ij}$. Le deuxième terme représente la relaxation des populations et des cohérences où Γ est l'inverse de la durée de vie radiative de l'état considéré. Le troisième terme γ prend en compte la relaxation radiative de l'état k d'énergie E_k à partir des états k d'énergie $E_k > E_i$ en raison de l'émission spontanée.

Prendre la trace sur tous les atomes, sauf ceux marqués i dans les équations de Bloch optique, donne l'évolution de la matrice densité pour la particule i . Le terme d'interaction, ou décalage d'énergie, pour l'atome i en raison de l'interaction avec ses voisins est $\sum_{j \neq i} Tr_j[V_{ij}, \rho_{i,j}]$, avec V_{ij} l'interaction dipôle-dipôle et $\rho_{i,j}$ la matrice densité à deux corps des atomes i et j . Le couplage avec tous les autres atomes devient un terme de champ moyen proportionnel à la densité d'atomes. Un traitement similaire a été effectué par [Ates et al., 2006].

Des corrélations apparaissant au cours de l'excitation, l'état du système ne reste pas un état produit. Cependant la probabilité d'excitation d'un atome dans l'état fondamental vers un état de Rydberg étant de l'ordre de quelques pourcents, et tant que le produit des matrices densités individuelles reste faible, nous utilisons l'approximation Hartree-Fock. Avec cette approximation la matrice densité à deux particules $\rho_{i,j}$ peut s'écrire comme le produit de matrices densités à une particule ρ_i et ρ_j . Partons d'un

atome i dans l'état fondamental et d'un atome j dans l'état excité, cet état est noté (ge). Après excitation, le système est dans l'état doublement excité noté (ee). L'approximation Hartree-Fock nous permet d'écrire, $\rho_{(i,j)ge,ee} = \rho_{ige} \times \rho_{jee}$.

Ainsi le terme d'interaction s'écrit

$$\delta_{dd}(i) = \sum_{j \neq i} Tr_j[V_{ij}, \rho_{i,j}] = \left(\sum_{j \neq i} V_{ij} \rho_{jee} \right) (\rho_{ige} |g_i\rangle \langle e_i| - \rho_{iege} |e_i\rangle \langle g_i|) \quad (3.6)$$

ce qui représente simplement un décalage du niveau Rydberg de l'atome i dû aux interactions dipôles-dipôles avec ses voisins j qui sont dans des états de Rydberg. Comme exemple, nous prenons l'état $70p_{3/2}$ en champ électrique faible, $\tan^2(\theta)=0.05$. L'effet de blocage dipolaire induit un décalage de 6MHz (exactement la largeur de l'excitation) qui empêche l'excitation de deux atomes à une distance de $5\mu\text{m}$. Pour une densité de 10^{11}cm^{-3} une sphère de rayon $5\mu\text{m}$ contient 50 atomes. Cela signifie qu'une seule excitation peut être présente sur les 50 atomes, et que la probabilité d'exciter un atome j est voisine de 0 pour la sphère. La population dans l'état excité ρ_{jee} est remplacée par la valeur moyenne $\overline{\rho_{ee}}$. Comme la densité atomique est inhomogène ainsi que l'excitation laser, un $\overline{\rho_{ee}}(\vec{r})$ local est considéré aux différentes positions \vec{r} sur l'ensemble du nuage atomique.

Une estimation naïve de type champ moyen pour ρ_{jee} donnerait une estimation fautive. En effet, l'interaction de champ moyen pour un atome au centre du nuage atomique s'écrit comme l'intégrale du terme d'interaction V_{ij} sur toute les directions Θ (l'angle entre l'axe internucléaire et la direction du dipôle i) $\int_0^\pi V_{ij}^{dip} \sin \Theta d\Theta$ qui est égale à zéro. Afin de surmonter ce problème, une meilleure façon d'évaluer le potentiel d'interaction local est d'examiner séparément l'atome de Rydberg plus proche voisin des autres atomes.

Le décalage en énergie $\delta_{dd}(i)$ est décomposé en une somme sur tous les atomes j , traitée comme une distribution continue à l'extérieur d'une sphère contenant un seul atome excité (le plus proche voisin de i) en son centre, plus une contribution de l'atome de Rydberg plus proche voisin. Le résultat du calcul est que la contribution du champ du plus proche voisin domine la contribution de champ moyen lorsqu'un champ électrique est présent. La contribution de l'atome de Rydberg plus proche voisin est pris à la distance la plus probable, donnée par la distribution d'Erlang de l'atome i . Le décalage en énergie dépend de la densité locale (gaussienne) $\rho_0(\vec{r})$ des atomes dans l'état fondamental. Nous trouvons finalement que le décalage en énergie de l'atome i est donné par

$$\delta_{dd}(i) \propto \overline{\rho_{ee}}(\vec{r}) \rho_0(\vec{r}) \quad (3.7)$$

Nous résolvons ensuite l'équation (3.5) pour un atome i en utilisant le résultat de l'équation (3.7). Le résultat donné dans la figure 3.1 reproduit bien l'expérience. Nous prenons en compte l'excitation multiphotonique aussi bien que le temps de cohérence fini des lasers dans le modèle au travers une variation temporelle de la phase des lasers dans l'excitation à 3 étages. Deux résultats sont donnés dans la figure 3.1, où l'approche

par la matrice densité est comparée à l'expérience pour différents champs électriques A) et différentes intensités B).

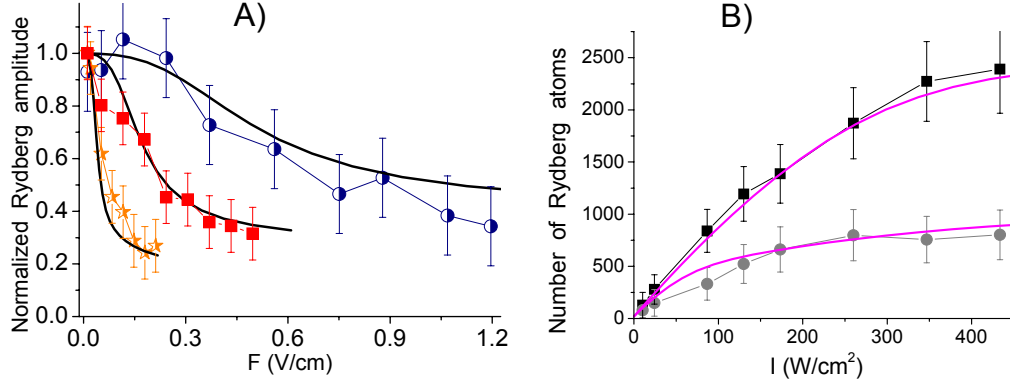


FIGURE 3.1 – (A) Probabilité dans notre échantillon, d’exciter un atome dans un état de Rydberg comparé à la probabilité d’exciter un atome isolé, en fonction du champ électrique \vec{F} . n est égal à 60 (cercles), 70 (carrés) et 85 (étoiles). L’intensité du laser Ti:Sa est donnée par $(n/85)^3 \times 560 \text{ W/cm}^2$. Les symboles représentent les données expérimentales et les traits plein représentent le modèle de matrice densité réduite. (B) Nombre d’atomes de Rydberg excités en fonction de l’intensité du laser Ti:Sa, dans le cas de l’état $70p_{3/2}$, pour une densité d’atomes $7s D \sim 4 \pm 2 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$ pour deux valeurs du champ électrique, 0 V/cm (carrés) et 0.25V/cm (cercles). La courbe en trait plein est calculée par le modèle de la matrice densité réduite et prend en compte l’effet du blocage van der Waals à champ nul ainsi que l’effet du blocage dipolaire en champ électrique.

3.3 Introduction aux algorithmes Monte Carlo cinétiques

L’approche précédente basée sur la matrice densité réduite a quelques limitations. Bien que décrivant correctement l’excitation, il n’a pas été possible de détailler la dynamique du système, l’orientation des dipôles dans un champ électrique, d’étudier les interactions entre les atomes hormis en utilisant un terme de champ moyen ni de suivre les effets de l’ionisation. Pour ces raisons, nous avons développé une simulation Monte Carlo cinétique (notée MCC). Tous les limites mentionnées ci-dessus peuvent être surmontées. Toutefois, dans les simulations MCC l’excitation doit être fondée sur la résolution des équations de taux. Une description plus détaillée de l’algorithme de MCC, et plus généralement d’une éventuelle solution numérique de tout type d’équation maîtresse ou d’équations de taux, est donnée dans [Chotia et al., 2008].

L’évolution d’un système donné par une équation pilote

$$\frac{dP_k}{dt} = \sum_{l=1}^N \Gamma_{kl} P_l - \sum_{l=1}^N \Gamma_{lk} P_k \quad (3.8)$$

décrit l’évolution temporelle de la probabilité P_k d’occuper chacun des états possible k . Chaque processus arrive avec un taux moyen Γ_{lk} , qui dépend éventuellement du temps.

Il y a donc deux actions facile à comprendre dans ce type de simulation. Il faut choisir le temps t' à partir duquel le système quitte son état initial *et* il faut choisir l'état final du système. L'algorithme MCC est alors l'itération des étapes suivantes.

- Initialisation du système dans son état appelé k au temps t .
- Création de la nouvelle liste de taux Γ_{lk} pour le système, $l = 1, \dots, N$.
- Choix d'un nombre aléatoire¹ $r : 0 < r \leq 1$ et calcul du temps auquel a lieu la réaction t' en résolvant $\int_t^{t'} \sum_{l=1}^N \Gamma_{lk}(\tau) d\tau = -\ln r$.
- Choix d'un nombre aléatoire $r' : 0 < r' \leq 1$ et recherche d'un entier l pour lequel $R_{l-1} < r'R_N \leq R_l$ où $R_j = \sum_{i=1,j} \Gamma_{ik}(t')$ et $R_0 = 0$. Cette étape peut être réalisée efficacement en utilisant un algorithme de recherche binaire.
- Mettre le système dans l'état l et modifier le temps à t' . Retour à la première étape.

Le point important est qu'il n'est pas possible de distinguer la simulation MCC du comportement du système réel (si le système évolue à travers une équation maîtresse *et* si tous les taux, décrivant toutes les situations physiques d'importance sont correctement calculés). Ainsi la simulation MCC reproduit par exemple toutes les données possibles dans une expérience, y compris son bruit statistique.

3.3.1 Le code

Le code est écrit en C++. Les atomes sont définis par des classes. Chaque particule est décrite par un ensemble d'informations comme le type d'atome (atome neutre, atome excité, ion ...) l'accélération, la champ ou le potentiel qu'elle subit. Le coeur du programme est divisé en deux parties, l'une constituée par l'algorithme Monte Carlo cinétique permet d'avoir une évolution temporelle du système et gère l'excitation et la désexcitation de particules, les collisions entre atomes excités et la redirection vers la partie N corps. Cette deuxième partie contient les algorithmes qui prennent en charge la dynamique du système comme le déplacement simple sous l'effet de la vitesse initiale, l'attraction et la répulsion entre atomes et ions. Le reste du programme contient l'ensemble des fonctions nécessaires aux calculs de champs et de potentiels, ainsi que tous les taux utilisés dans la partie Monte Carlo cinétique.

La simulation est dotée d'une sortie graphique utilisant la bibliothèque OpenGL qui permet de suivre la dynamique de l'excitation et des forces entre les différentes particules en trois dimensions. A chaque fois qu'un pas de temps est calculé dans la partie Monte Carlo cinétique il est possible de visualiser la position des atomes dans le volume d'excitation. Il est également possible d'enregistrer l'ensemble des paramètres associés à chacun des atomes ainsi que leur positions relative (distance, angle).

3.4 Simulation MCC de l'interaction dipôle-dipôle

Considérons un nuage d'atome de densité spatiale gaussienne. Initialement les atomes sont dans leur état fondamental avec une distribution maxwellienne de vitesse $\sigma_v = \sqrt{k_b T / m_{at}}$, où T, k_b, m_{at} sont respectivement la température du gaz d'atome froids dans

1. Dans notre cas nous utilisons l'implémentation GSL (GNU Scientific Library) du twister unit-interval générateur de nombre aléatoire uniforme de Matsumoto et Nishimura.

le PMO, la constante de Boltzmann et la masse de l'espèce atomique que l'on considère. Dans un tel système d'environ 100 atomes, considérer une excitation cohérente reviendrait à résoudre l'équation de Schrödinger avec $\approx 2^{100}$ états, ce qui reste hors de notre portée. Cependant, il est possible d'obtenir une valeur du décalage en énergie et la dynamique du système en un temps de calcul raisonnable avec un traitement numérique simplifié.

Nous considérons un système effectif à deux niveaux pour chaque atome. Les atomes peuvent ainsi être soit dans leur état fondamental ($6s_{1/2}$) soit excités par laser dans un état de Rydberg ($np_{3/2}$). Initialement, les dipôles sont alignés le long de l'axe de polarisation z du laser d'excitation et du champ électrique extérieur, qui est l'axe de quantification. Durant l'évolution temporelle les dipôles seront alignés le long du champ électrique local (ceci est important notamment en présence d'ions). Contrairement au modèle précédent qui ne considérait que l'atome plus proche voisin, l'énergie potentielle d'un atome est la somme des énergies dues au décalage Stark et des interactions avec tous les autres atomes. Le décalage $\delta_{dd}(i)$ du niveau de Rydberg i est donc $\sum_{j \neq i} V_{ij}$.

Nous partons des équations de Bloch du système à deux niveaux [Blushs and Auzinsh, 2004] :

$$\frac{d\rho_{ee}}{dt} = -\Gamma_{spont}\rho_{ee} - \frac{i}{2}\Omega(\rho_{ge} - \rho_{eg}) \quad (3.9)$$

$$\frac{d\rho_{ge}}{dt} = -\left(\frac{\Gamma_{laser} + \Gamma_{spont}}{2} - i(\delta_{laser} + \delta_{dd})\right)\rho_{ge} + \frac{i}{2}(\rho_{gg} - \rho_{ee})\Omega \quad (3.10)$$

$$\frac{d\rho_{gg}}{dt} = \Gamma_{spont}\rho_{ee} + \frac{i}{2}\Omega(\rho_{ge} - \rho_{eg}) \quad (3.11)$$

où ρ_{gg} et ρ_{ee} sont les populations de l'état fondamental et de l'état excité, Γ_{spont} est le taux d'émission spontané, Γ_{laser} est la largeur à mi hauteur du laser d'excitation ($\Gamma_{spont} \ll \Gamma_{laser}$), Ω est la fréquence de Rabi locale de la transition et δ_{laser} est le décalage de la résonance atomique pour un atome isolé et en absence de champ.

Pour obtenir une équation de taux pour chaque atome, nous négligeons les cohérences $\dot{\rho}_{ge} = \dot{\rho}_{eg} = 0$. C'est l'hypothèse la plus forte que nous faisons dans le modèle. Nous obtenons finalement des équations de taux pour ρ_{ee} et ρ_{gg} :

$$\frac{d\rho_{ee}}{dt} = -(\Gamma_{spont} + \Gamma_{exc})\rho_{ee} + \Gamma_{exc}\rho_{gg} \quad (3.12)$$

$$\frac{d\rho_{gg}}{dt} = -\Gamma_{exc}\rho_{gg} + (\Gamma_{spont} + \Gamma_{exc})\rho_{ee} \quad (3.13)$$

$$\Gamma_{exc} = \frac{\Omega^2\Gamma_{laser}}{\Gamma_{laser}^2 + 4(\delta_{laser} + \delta_{dd})^2} \quad (3.14)$$

où le taux Γ_{exc} d'excitation de l'atome i dépend de la projection de $|np(\vec{F}_i)\rangle$ sur $|np\rangle$, qui est $\cos^2(\theta_i/2)$, fois le taux laser stimulé. Le taux de désexcitation est semblable à celui de l'excitation, plus le taux d'émission spontanée de l'état np .

Le grand avantage offert par cette méthode 'cinétique', est la simplicité d'ajouter des

phénomènes ou des particules dont l'évolution est fondée sur les taux.

Le calcul est réalisé comme suit. La formation des ions est possible et ils créent alors un champ électrique ressenti par les autres atomes. La direction et l'intensité des dipôles peuvent ainsi varier en fonction des champs électriques locaux. Deux mécanismes de formation des ions sont présents. Le premier est dû à l'ionisation par laser ou par le corps noir. Le second intervient lorsque deux atomes de Rydberg se déplacent l'un vers l'autre et atteignent une distance internucléaire inférieure à $4n^2a_0$ [Robicheaux, 2005]. Dans le dernier cas un atome de Rydberg est ionisé, le deuxième atome est transféré vers un état d'énergie plus bas, c'est le phénomène d'ionisation Penning. Du fait de la conservation de l'énergie, l'énergie de liaison est au moins deux fois plus grande après l'ionisation, et comme l'état final est souvent différent de s ou d , il n'interagit plus avec les atomes dans l'état np . Ainsi nous ne faisons plus agir ces atomes dans la simulation pour simplifier le problème.

En raison de sa résolution spatiale et temporelle la simulation MCC prend en compte toutes les interactions dipolaires développées au cours de l'excitation et donne accès aux atomes individuels. Une évolution dynamique du système est faite, jusqu'à ce qu'une collision entre deux atomes d'état np soit détectée ou lorsqu'une réaction est détectée.

Afin de traiter le mouvement des particules dans la simulation nous utilisons un intégrateur de type Verlet. Les méthodes numériques comme la méthode Runge-Kutta ne sont pas idéales pour l'intégration de systèmes hamiltoniens, parce qu'elles ne conservent pas l'énergie². Au contraire, des intégrateurs symplectique tels que l'intégrateur Verlet, conservent l'énergie. Les effets mécaniques sont ensuite traités par l'intermédiaire de mouvements classique des atomes, et les forces dipolaires entre les atomes sont prisent en compte à l'aide de l'algorithme (leapfrog) Verlet-Störmer-Delambre (voir [Chotia et al., 2008] appendice B). L'évolution temporelle de la simulation est incrémentée soit avec le pas de temps MCC soit avec une petite fraction du temps de collision. Après chaque changement de position ou modification de l'état des particules, les champs et les potentiels sont recalculés pour tous les atomes. Ensuite, les opérations sont répétées jusqu'à la fin de l'expérience numérique.

3.4.1 Résultats de la modélisation

3.4.1.1 Blocage dipolaire induit par champ

Le moment dipolaire de l'état np augmente avec le couplage par champ électrique et atteint un maximum lorsque $\tan\theta$ est égal à 1, comme reporté dans l'expérience [Vogt et al., 2007]. En fait, lorsque l'intensité du champ augmente, le rayon de blocage augmente aussi ce qui conduit le nombre d'atomes excités dans un volume donné à diminuer. Il est bon de noter que la condition de blocage dipolaire dans une approche à deux niveaux est $\sum_{j \neq i} V_{ij} > h\delta_{laser}$.

La figure 3.2 A) représente le résultat de la simulation Monte Carlo pour différents

2. Il existe des méthodes dites Runge-Kutta symplectique à pas fixe qui conservent en moyenne l'énergie, mais consomment beaucoup de ressources de calcul

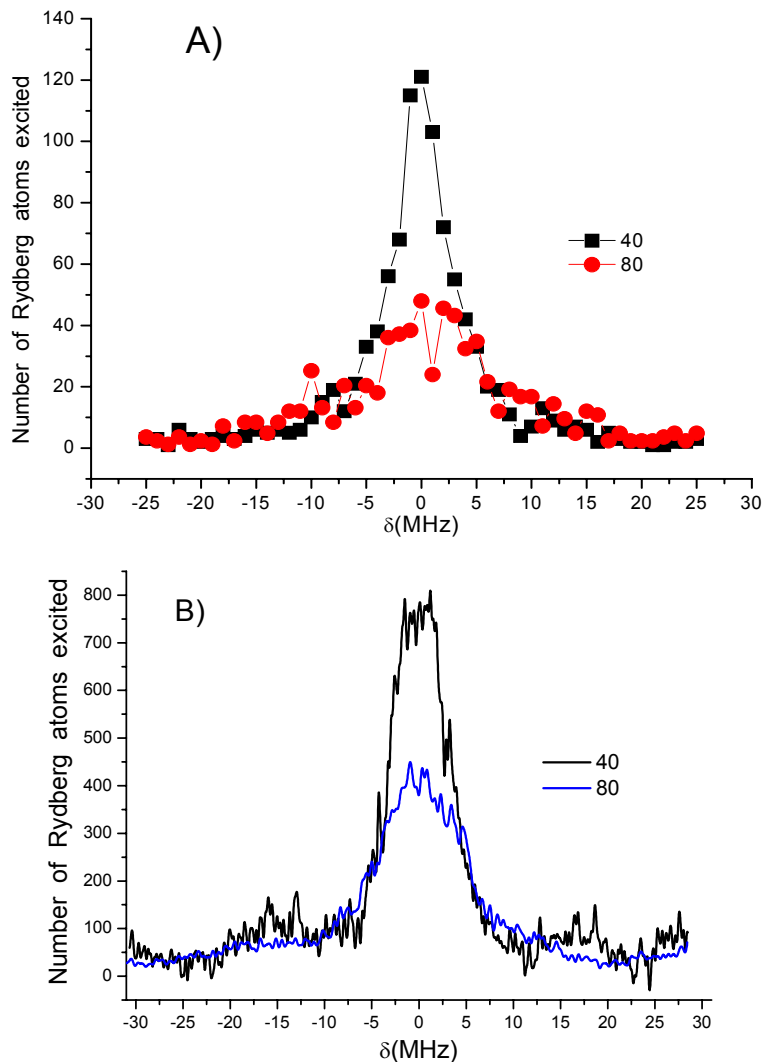


FIGURE 3.2 – (A) Nombre d’atomes de Rydberg excités en fonction du décalage de la fréquence d’excitation autour de la résonance pour $n=40$ et $n=80$. Simulations Monte Carlo avec 2000 atomes à une densité $D = 2 * 10^{10} \text{cm}^{-3}$ et un champ électrique statique de 50 mV/cm. Ce résultat est obtenu après une durée d’excitation de 300 ns, $I=0.7 * I_{\text{sat}}$, où I_{sat} est l’intensité de saturation de la transition $7s \rightarrow np$. Le nombre moyen d’ions formés durant la simulation varie entre 0.5 pour $n=40$ à 1.3 for $n=80$. (B) Données expérimentales pour $n=40$ ($P=20$ mW) et $n=80$ ($P=100$ mW) à une densité $D = 2 * 10^{10} \text{cm}^{-3}$, avec une durée d’excitation de 300 ns. Le nombre moyen d’ions formés est inférieur à 2.

états np , où le nombre d’atomes de Rydberg présents à la fin de l’excitation est donné en fonction du décalage à résonance. Les paramètres sont proches de ceux décrit dans [Vogt et al., 2007]. La figure 3.2 B) montre le résultats de l’expérience.

3.4.2 Rôle des ions

À une distance de $10 \mu\text{m}$ le champ électrique dû à un ion est 150mV/cm ce qui crée un décalage d’énergie de 190 MHz pour un atome dans l’état $70p$. La contribution au

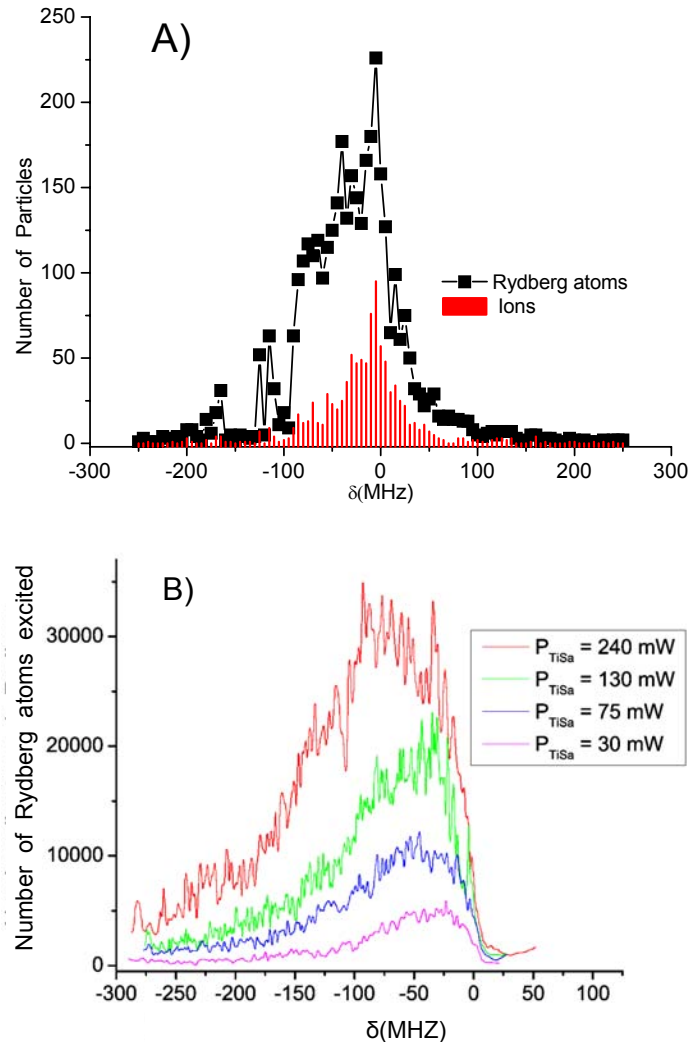


FIGURE 3.3 – (A) Simulation Monte Carlo. Nombre d’atomes de Rydberg et d’ions formés en fonction du décalage de la fréquence d’excitation autour de la résonance. Pour $n = 81$, une durée d’excitation de $20\mu s$, 2000 atomes, $D = 2 * 10^{10} cm^{-3}$, $I=10*Isat$. B) Résultat expérimental, voir [Mudrich et al., 2005] pour les détails du schéma d’excitation. Nombre d’atomes de Rydberg en fonction de la fréquence d’excitation du laser dans une excitation de l’état $37p1/2$ qui combine laser pulsé ($7ns, 15\mu J$) et continu (Ti:Sa) à différentes puissances. Durée d’excitation (Ti:Sa) = $400ns$.

blocage de l’excitation d’un tel ion dans l’échantillon durant l’excitation est si importante qu’elle cache complètement l’observation du blocage dipolaire. Dans l’expérience les ions présents avant et pendant l’excitation peuvent être séparés des atomes de Rydberg par temps de vol. Dans la simulation, nous allons simplement suivre le nombre d’ions à la fin du temps d’excitation. Cet effet des ions est montré sur la figure 3.3.

Sur la figure 3.3 A) on augmente numériquement l’intensité du laser à dix fois l’intensité de saturation et nous appliquons l’excitation laser pendant $20\mu s$ en l’absence de champ électrique externe. On peut voir que le nombre d’atomes excités est important, mais aussi que la résonance est élargie dans la partie basse fréquence de la résonance

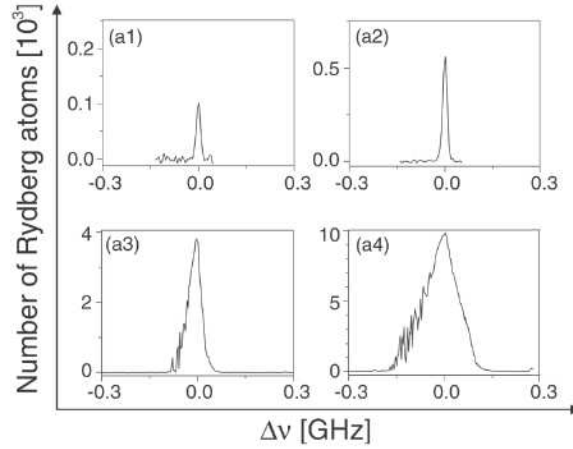


FIGURE 3.4 – Figure extraite de [Singer et al., 2004]. Excitation d’atomes de rubidium à partir d’un piège magnéto-optique. L’excitation à deux photons est $5s \rightarrow 5p_{3/2} \rightarrow ns, nd$. La durée d’excitation est de $20\mu s$. Spectres de l’état $8s$ pour plusieurs intensités du laser d’excitation : $6 W/cm^2$ pour (a1) et (a2), $500W/cm^2$ pour (a3) et (a4) et des densités initiales avant excitation de $1.5 \cdot 10^9 cm^{-3}$ (a1) et (a3), $1.10^{10} cm^{-3}$ (a2) et (a4).

atomique. Ce résultat est similaire à celui obtenu dans l’expérience [Singer et al., 2004] reproduit sur la figure 3.4. Les ions sont formés en raison de la forte puissance du laser, mais aussi par les collisions pendant le temps d’interaction en raison de l’attraction dipolaire à longue portée entre les atomes. Le nombre d’ions produits au cours de l’excitation est si important qu’il permet l’excitation des atomes de Rydberg sur 100MHz, décalé vers le rouge du centre de la résonance. Cela est dû au fait que les états np ne peuvent être déplacés que vers le rouge de la résonance en l’absence de champ électrique externe. Sur la figure 3.3 B) est montrée une courbe expérimentale obtenue dans notre groupe, avec une excitation combinée pulsée et continue. Dans ce cas, la source principale d’élargissement est le champ électrique non homogène en raison des ions formés par le laser pulsé.

3.4.3 Rôle du plus proche voisin

Comme le terme d’interaction dipôle-dipôle V_{ij} dépend fortement de la distance entre deux atomes, le décalage en énergie dû à l’atome de Rydberg plus proche voisin doit être distingué du décalage dû au champ moyen créé par tous les autres atomes de Rydberg. Dans certains cas, la contribution du plus proche voisin peut être dominante et c’est cette hypothèse que nous avons utilisée dans le modèle précédent. La simulation MCC nous permet de tester cette hypothèse.

Sur la figure 3.5 est représenté pour deux densités différentes, sans ions pour éviter les effets complexes, le décalage dû à l’atome de Rydberg plus proche voisin par rapport à la somme des décalages de tous les atomes de Rydberg dans l’échantillon. Sous la ligne rouge, la contribution de l’atome de Rydberg plus proche voisin au blocage est dominante. Le décalage dû à l’atome de Rydberg plus proche voisin est deux fois plus important que le décalage de tous les autres atomes de Rydberg pour 66% des atomes à une densité de $D=5 \times 10^9 cm^{-3}$ (calculé à partir du rapport du nombre de

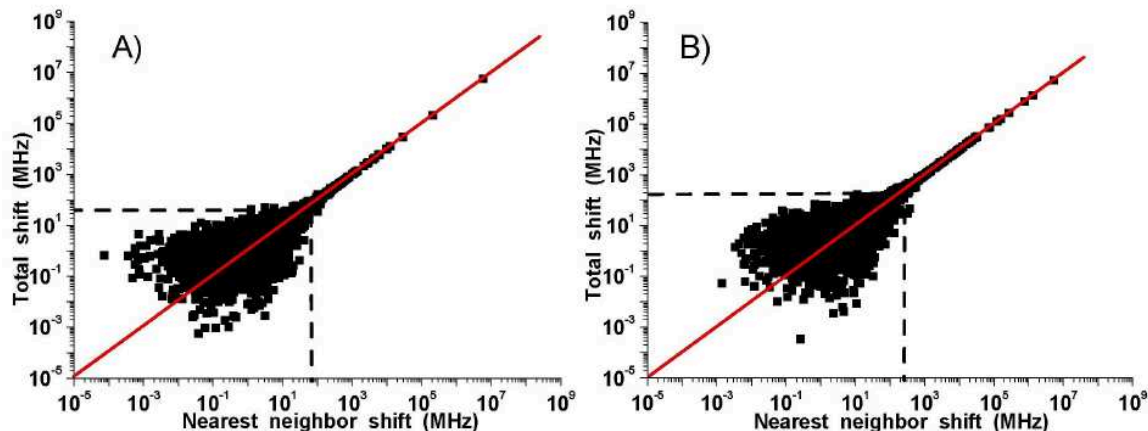


FIGURE 3.5 – Décalage du niveau Rydberg dû au plus proche atome de Rydberg voisin comparé au décalage induit par l'ensemble des atomes de Rydberg présent durant la simulation Monte Carlo. Les simulations sont faites avec 2000 atomes dans un volume gaussien, avec une durée d'excitation de 300ns de l'état $n = 70$, et une intensité laser de $0.7 I_{\text{sat}}$. A) $D=5 \times 10^9 \text{cm}^{-3}$, B) $D=5 \times 10^{10} \text{cm}^{-3}$. Le long de la ligne rouge la contribution du plus proche voisin à l'effet de blocage vaut 1. L'intersection avec la ligne en pointillé donne une valeur à partir de laquelle l'interaction dipôle-dipôle est principalement le fait de l'atome de Rydberg plus proche voisin.

points qui se trouvent sous la courbe rouge par le nombre de points au dessus de la courbe rouge figure 3.5 A), tandis que pour $D=5 \times 10^{10} \text{cm}^{-3}$ (figure 3.5 B)), il est de 73%. Cela confirme le fait que le changement d'énergie est dominé par l'effet du plus proche voisin. Ce résultat a été utilisé pour dériver l'approximation de champ local moyen de la matrice densité à un atome précédemment décrit.

On peut également voir sur la figure 3.6a que l'effet géométrique lié à la dépendance angulaire de l'excitation est correctement reproduit, les atomes alignés en champ formant un angle d'environ 54.7 degrés ne participent pas au blocage car on a $1-3\cos^2\theta=0$. De la même façon la dépendance en distance du plus proche voisin est visible sur la figure 3.6b.

3.5 Conclusion

Dans cette partie, nous avons présenté différentes méthodes utilisées pour modéliser l'effet de blocage dipolaire induit par champ électrique d'une manière aussi proche que possible de la situation expérimentale. Nous avons d'abord montré que l'approche analytique du champ moyen de l'atome de Rydberg plus proche voisin, basée sur la résolution des équations de la matrice densité réduite d'un atome donne des résultats en bon accord avec l'expérience.

La simulation Monte Carlo cinétique basée sur des équations taux est en mesure d'introduire toutes les interactions dipolaires électriques. En outre, nous avons inclus la dynamique spatiale à N-corps en utilisant l'intégrateur de Verlet, l'ensemble du code

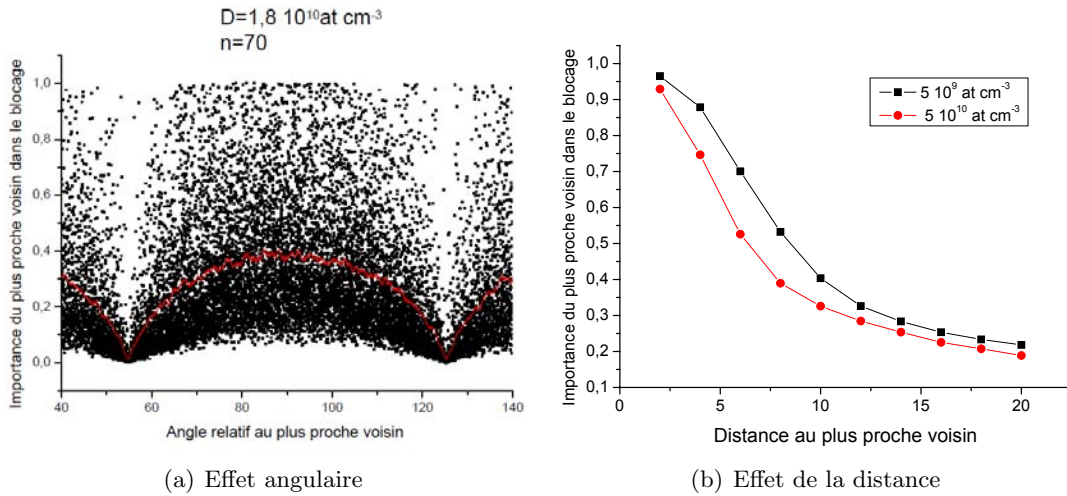


FIGURE 3.6 – a) Importance du plus proche voisin dans l’interaction dipôle-dipôle en fonction de l’angle entre les dipôles alignés par un champ électrique. Les interactions sont calculées pour 275 atomes. La courbe rouge est la moyenne prise sur l’ensemble des points. $D=1,8 \cdot 10^{10} \text{ at/cm}^3$, $n=70$. b) Importance du plus proche voisin dans l’interaction dipôle-dipôle en fonction de la distance en μm pour deux densités, $n=70$.

restant très simple. Cela nous a permis d’examiner le rôle important des ions formés au cours de l’excitation. S’il y a présence d’ions au cours de l’excitation ils peuvent mimer l’effet de blocage dipolaire et le conduire, dans les cas extrêmes de forte densité, à un élargissement des transitions.

Nous observons que pour un état donné le nombre d’atomes excités pour une densité initiale diminue avec le nombre quantique principal et avec l’intensité du champ électrique qui crée le dipôle permanent. Les effets associés à l’expérience, tels que le déplacement de la résonance, l’effet de densité, l’élargissement des transitions, l’artefact expérimental en raison du blocage par les ions sont reproduits dans les simulations. Pour plusieurs densités atomiques initiales, l’amplitude du décalage de la résonance par le plus proche voisin est contrôlée, ce qui confirme son rôle dominant. Nous avons utilisé le modèle Monte Carlo cinétique pour analyser d’autres expériences que la notre comme dans la figure 3.3 A) et la figure 3.4. Le nombre d’atomes excités dans un état de Rydberg dans notre simulation peut également être analysé en utilisant le paramètre Q de Mandel qui suit une distribution statistique sub-Poissonienne (figure 3.7) comme décrit dans les références [Liebisch et al., 2005, 2007; Robicheaux and Hernandez, 2005; Ates et al., 2006]. Notre simulation permet de mettre en évidence le phénomène statistique de la figure 3.7 qui indique que les fluctuations du nombre d’atomes excités diminuent lorsque le nombre quantique principal augmente. Cette approche est bien adaptée au cas que nous avons considéré dans l’expérience en champ électrique et s’applique aussi à une interaction van der Waals entre atomes. Nous ne l’avons pas généralisée au cas des résonances de Förster car les équations de taux sont ici insuffisantes pour décrire correctement les cohérences.

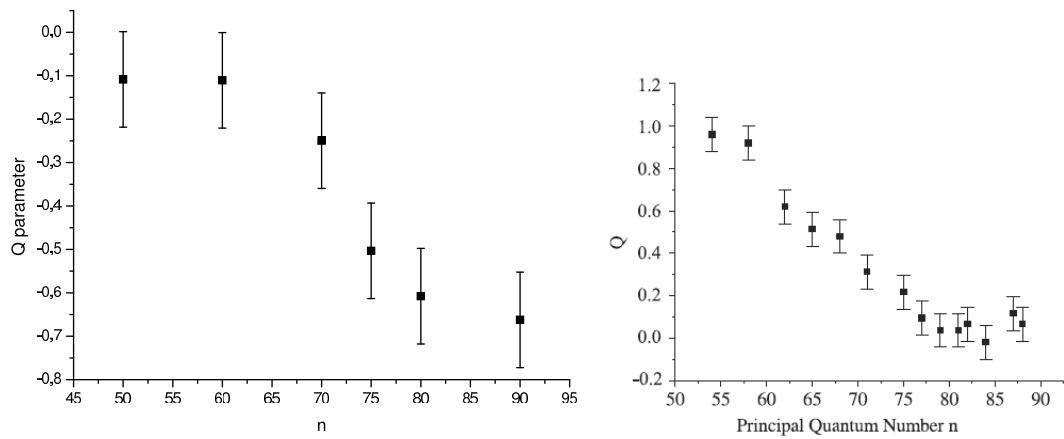


FIGURE 3.7 – Paramètre de Mandel Q , calculé dans la simulation pour différentes valeurs du nombre quantique principal du césium. Une valeur négative indique une distribution sub-Poissonienne du nombre d’atomes. À gauche modèle Monte Carlo, densité $2 \cdot 10^9$ at/cm³, $I=0.7I_{\text{sat}}$, $F=100\text{V/cm}$, 2000 atomes. Les barres d’erreurs sont obtenues après 3 simulations et traduisent l’amplitude des valeurs de Q calculées. À droite expérience de [Liebisch et al., 2005, 2007] avec du rubidium.

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

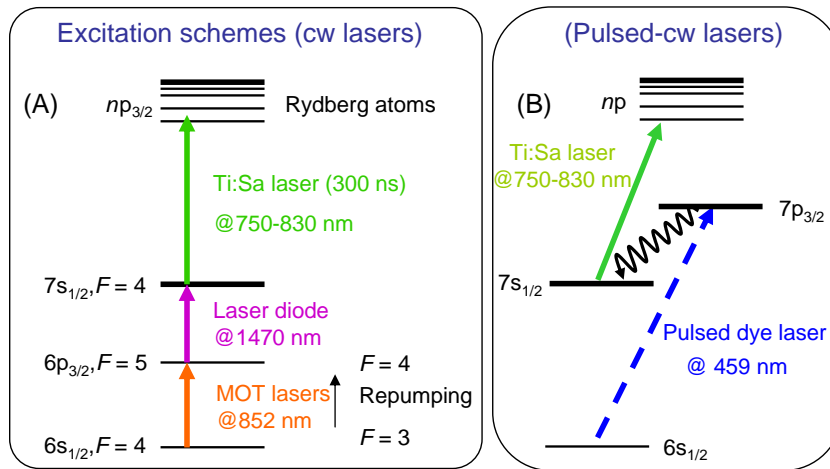


Figure 1. (A) Three-step excitation scheme for Cs Rydberg atoms. (B) Combined pulsed and cw-excitation.

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 3×10^{-10} 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 $n = 25-300$), 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 5–6 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

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 $\rho_{i,jge,ee} = \rho_{ige} \times \rho_{jee}$.

Thus, the interaction term can be written as

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

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) $\int_0^\pi V_{ij} \sin \Theta d\Theta$ 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 $f(k, r) = \frac{3}{4\pi k!} \frac{(r^3)^{k-1}}{(Rd^3)^k} e^{-(r/Rd)^3}$ and $Rd = (\frac{4\pi\rho_0}{3})^{-1/3}$.

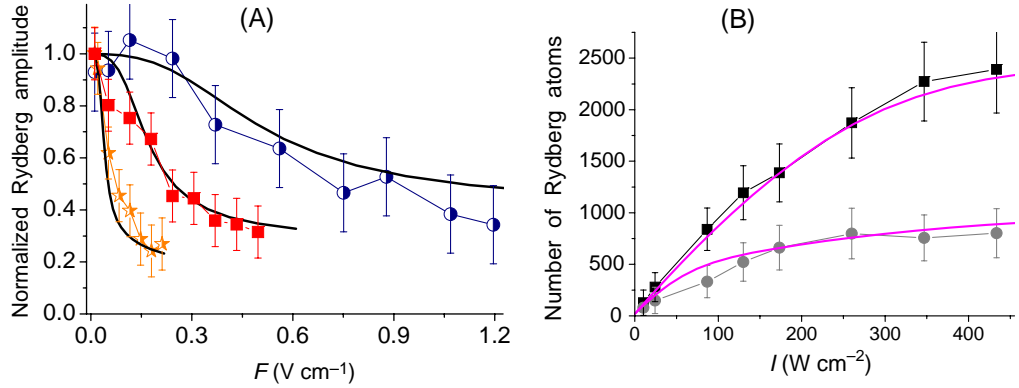


Figure 2. (A) Probability in our sample, as a function of the electric field \vec{F} , of an atom to be excited in Rydberg state compared to the isolated atom probability excitation; n is equal to 60 (circles), 70 (squares) and 85 (stars). The Ti : Sa laser intensity is given by $(n/85)^3 \times 560 \text{ W cm}^{-2}$. 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 $\sigma_v = \sqrt{k_b T / m_{at}}$, 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 $\delta_{dd}(i)$ 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

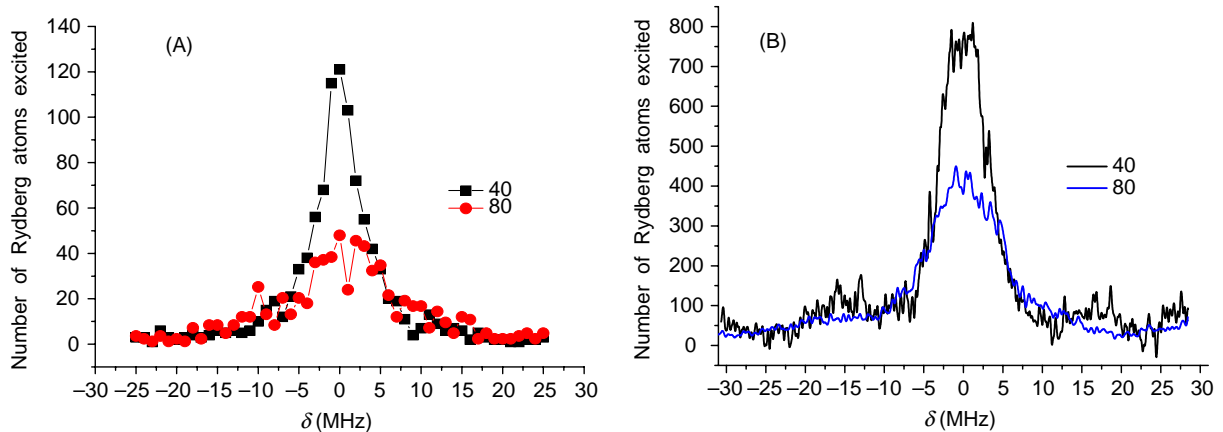


Figure 3. (A) Number of Rydberg atoms excited versus the detuning of the excitation laser for $n = 40$ and 80 . Monte Carlo simulations with 2000 atoms at a density $D = 2 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ and an external electric field of 50 mV cm^{-1} . This result is taken after a laser excitation time 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.

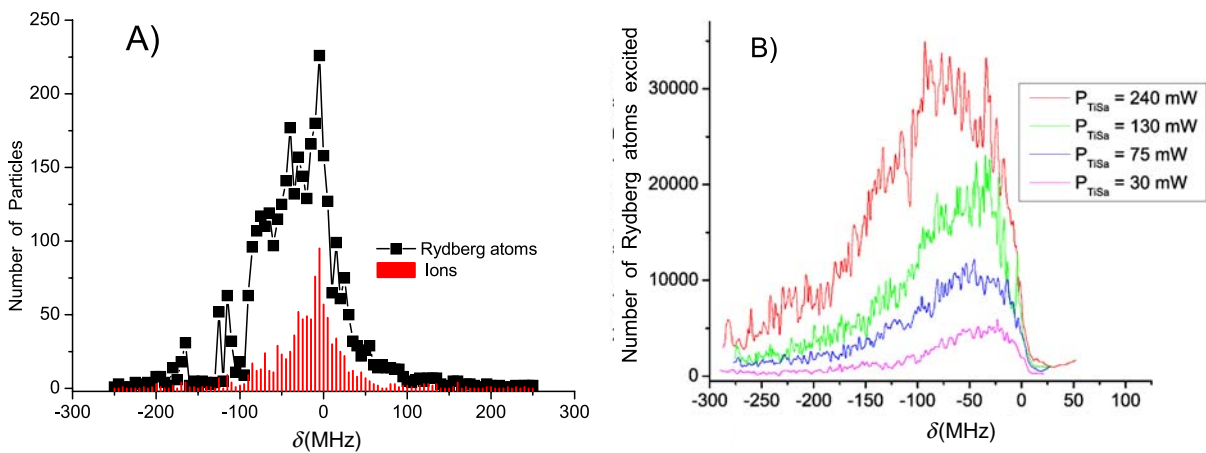


Figure 4. (A) Monte Carlo simulation. Number of Rydberg atoms and ions versus the laser detuning. For $n = 81$, excitation time $20 \mu\text{s}$, 2000 atoms, $D = 2 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$, $I = 10 I_{\text{sat}}$. (B) The experimental result, see figure 1(B) and [11] for details on the excitation 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 .

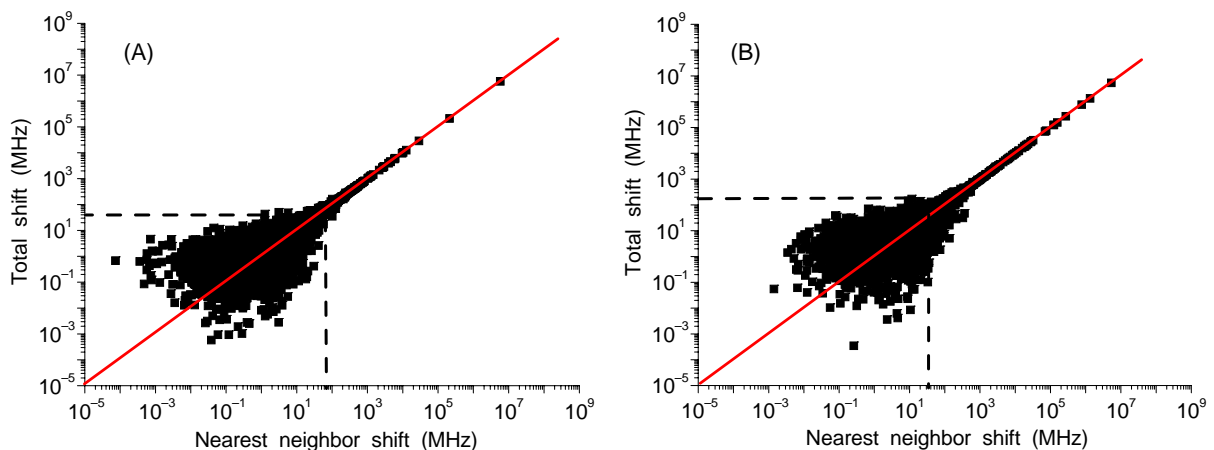


Figure 5. Shift of the level of a randomly chosen ground state atom due to the nearest neighboring Rydberg atom compared to the total shift due to all the Rydberg atoms in the Monte Carlo simulation. Simulations are realized for 2000 atoms in a Gaussian volume, for an excitation time of 300 ns in $n = 70$, 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'_1 , and the corresponding reaction number l , from the formula $\int_t^{t'_1} \Gamma_{lk}(\tau) d\tau = -\ln r_1$ where the $r_1 \in]0, 1]$ 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, Bohloulou-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 (Jülich: 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 (Jülich: 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] Fichtorn 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

Chapitre 4

Effets des interactions dipolaires sur la dynamique du gaz gelé de Rydberg

4.1 Des atomes de Rydberg aux plasmas ultra-froids

Les atomes de Rydberg sont particulièrement fragiles. Ils peuvent facilement être ionisés par collision entre atomes de Rydberg ou par absorption de photons peu énergétiques, par exemple fournis par le rayonnement du corps noir). Les effets des collisions dépendent de la densité d'atomes de Rydberg, et peuvent être contrôlés via l'excitation de paires d'atomes proches voisins sur une courbe de potentiel attractive qui mène à l'ionisation des atomes de Rydberg ou répulsive qui dans ce cas la prévient.

L'étude reportée dans la référence [Vitrant et al., 1982] montre l'évolution d'un gaz d'atomes chauds de Rydberg vers un plasma. Le résultat principal présenté sur la figure 4.1 permet de voir l'effet de la densité d'atomes excités. A faible densité seul apparaît une résonance correspondant à l'excitation par laser. Lorsque la densité augmente un élargissement de la raie atomique devient visible. Ces effets sont dus aux interactions de type van der Waals ou dipôle-dipôle et aux collisions qui en résultent en même temps qu'une redistribution vers d'autres états de Rydberg. En augmentant encore la densité les premiers électrons libres apparaissent, résultat des collisions ionisantes Rydberg-Rydberg. À plus haute densité la charge d'espace créée par les ions, plus lents que les électrons, forme un piège électrostatique pour les électrons qui entrent en collision avec le gaz de Rydberg donnant naissance à un plasma. La distance interatomique moyenne à partir de laquelle il devient énergétiquement favorable que l'électron Rydberg de valence ne soit plus lié à l'atome mais forme une charge libre dans le plasma dépend de la limite classique du champ d'ionisation F donnée au chapitre 1. Ainsi on a en unités atomiques $r \approx 1/\sqrt{F} \approx 4n^{*2}$. Cependant expérimentalement l'avalanche électronique se produit pour des distances interatomiques moyennes de $15n^{*2}$, et intervient bien donc avant d'atteindre la distance interatomique moyenne de la transition isolant conducteur qui n'est donc pas observable dans ces conditions comme il a été noté dans la référence [Vitrant et al., 1982] rapportant ces expériences.

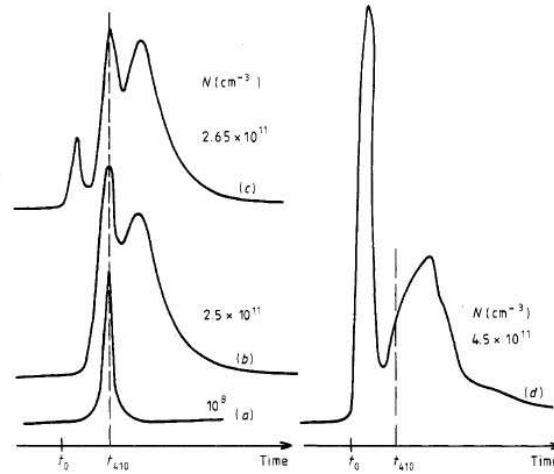


Figure 1. Time-resolved ionisation signals for various initial Rydberg densities. (a) $N = 10^8 \text{ cm}^{-3}$, (b) $N = 2.5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$, (c) $N = 2.65 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ and (d) $N = 4.5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$.

FIGURE 4.1 – Tirée de [Vitrant et al., 1982]. Étude de l'évolution d'un gaz de Rydberg vers un plasma en fonction de la densité. Des atomes de césium provenant d'un jet atomique sont excités à deux photons (lasers pulsés à 852 nm et 510 nm) $6s \rightarrow 6p_{3/2} \rightarrow nd$ vers des états nd. Les atomes sont ionisés par champ après $1 \mu\text{s}$ et détectés par temps de vol. Sur la figure ci-dessus lorsque la densité d'atomes de Rydberg 41d augmente, la détection indique successivement l'état 41d à une densité de 10^8 at/cm^{-3} , auquel s'ajoute un transfert vers des états voisins à $2.5 \cdot 10^{11} \text{ at/cm}^{-3}$ et la présence d'électrons à partir de $2.6 \cdot 10^{11} \text{ at/cm}^{-3}$ causée par des collisions entre atomes de Rydberg. Enfin à $4.5 \cdot 10^{11} \text{ at/cm}^{-3}$ il y a formation d'un plasma.

Les expériences avec des atomes de Rydberg froids ont permis de reprendre ces expériences dans des conditions beaucoup mieux contrôlées. L'évolution spectaculaire d'un gaz froid et dense d'atomes de Rydberg vers un plasma ultra-froid quasi-neutre a pu être observée [Robinson et al., 2000].

4.1.1 Formation de plasmas ultra-froids

Voyons à présent quelles peuvent être les caractéristiques de plasmas formés à partir d'atomes froids. Une voie de recherche a été ouverte avec la formation par photoionisation de plasmas dits ultra-froids. De façon générale, un plasma est caractérisé par la force des interactions mises en jeu dépendant de la température électronique T_e et de la densité n_e des électrons. La température T_e permet de connaître l'énergie cinétique moyenne $E_{cin} \propto k_B T_e$ d'un électron alors que la densité est reliée à l'interaction potentielle coulombienne $E_{pot} \propto \frac{e^2}{a}$ entre deux électrons dépendant essentiellement de la distance moyenne entre plus proches voisins $a = (4\pi n_e / 3)^{-1/3}$. T_e et n_e sont donc les deux paramètres à la base de la classification des plasmas présentée sur la figure 4.2. Pour en savoir plus sur les plasmas en général on peut se référer aux ouvrages [Delcroix and Bers, 1994] ou [Rax, 2005].

Un plasma peut être neutre comme dans ceux que l'on considère (qui possèdent néanmoins un léger excès d'ions), la densité moyenne des ions et des électrons vérifie donc l'égalité $n_i \approx n_e$. Les plasmas de très basse température doivent permettre d'appro-

cher en laboratoire une situation extrêmement intéressante d'un état fortement corrélé où l'énergie de Coulomb domine l'énergie thermique. Dans ce type de plasma le paramètre plasma $\Gamma_e = E_{pot}/E_{cin}$, qui compare l'énergie de Coulomb et l'énergie thermique, devient beaucoup plus grand que l'unité. De par la nature même des mécanismes conduisant à la formation d'un plasma - ionisation lors de collisions suffisamment énergétiques - cette situation corrélée n'est pratiquement jamais réalisée dans un plasma naturel. Indiquons dès à présent qu'un tel état fortement corrélé n'a pas encore été réalisé en laboratoire avec des plasmas ultra-froids et c'est l'une des motivations principale pour l'étude de ce nouveau type de plasma.

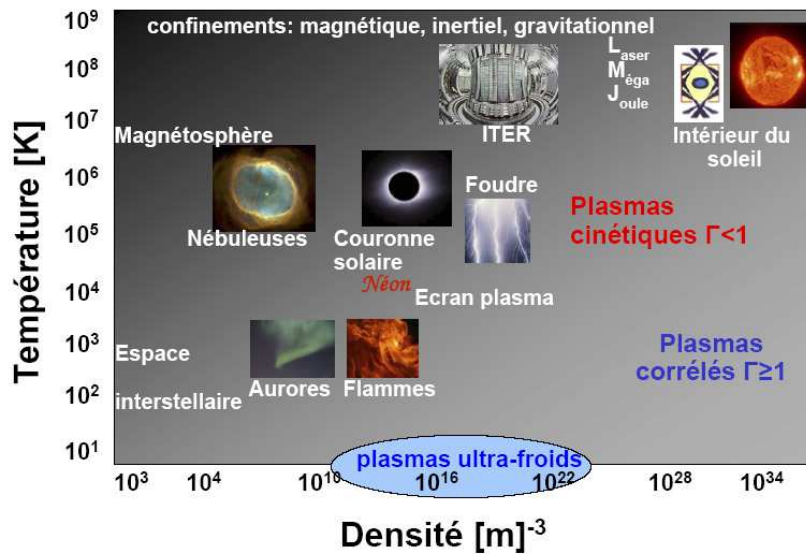


FIGURE 4.2 – Classification des plasmas naturels ou de laboratoire, repérés par leur température en Kelvin et par leur densité exprimée en nombre de particules chargées par mètre cube. Dans la zone foncée le plasma est dit cinétique ($\Gamma < 1$), tandis que dans la zone claire le plasma est dit fortement corrélé ($\Gamma \geq 1$) (Γ est le rapport de l'énergie de Coulomb à l'énergie thermique.)

L'une des premières tentatives pour atteindre un état de plasma 'ultra-froid' a eu lieu à Orsay dans les années 1970 [Delpech and Gauthier, 1972] et consistait à ioniser de l'hélium superfluide à la température d'environ 4.2 K en lui appliquant une impulsion de champ électrique. Malheureusement, ce plasma, dit cryogénique, n'est pas à l'équilibre et une recombinaison à trois corps électron-ion chauffe les électrons. Dans un plasma formé, par exemple, d'électrons e^- et d'ions M^+ , des collisions entre deux électrons et un ion (on parle de recombinaison à trois corps), peuvent mener à une recombinaison électron-ion formant un atome neutre via la réaction $e^- + e^- + M^+ \rightarrow M + e^-$. Par conservation de l'énergie, l'électron libre emporte l'énergie et l'impulsion libérée avec la formation de la paire. Cette recombinaison à trois corps augmente la température électronique par thermalisation des électrons et a interdit jusqu'à présent l'observation du régime corrélé dans ce type de plasma.

Le premier plasma ultra-froid fut donc réalisé en 1999 en photoionisant des atomes froids de xénon métastables [Killian et al., 1999]. Depuis, une dizaine de groupes de par

le monde étudient ces plasmas en partant d'atomes différents : rubidium, césium, ou strontium... En choisissant la longueur d'onde du laser au dessus du seuil d'ionisation, il semble a priori possible de choisir la température électronique du plasma, où les ions quasi immobiles ont une température à priori voisine de celle des atomes froids. Le phénomène de recombinaison à 3 corps a également été observé dans un plasma ultra-froid avec la formation d'atomes neutres dans des états de Rydberg [Killian et al., 2001]. Cette recombinaison contribue à élever la température électronique (et ionique par expansion du nuage) au delà du Kelvin, loin du régime corrélé.

Lors de l'évolution spontanée d'un gaz froid d'atomes de Rydberg vers l'état plasma le phénomène inverse de la recombinaison à 3 corps est observé par [Robinson et al., 2000]. Le plasma formé a des caractéristiques ($n_i \approx n_e \approx 10^{15} \text{ m}^{-3}$, $T_e \approx 10 \text{ K}$, $T_i \approx 1 \text{ K}$) similaires à celle du plasma formé par photoionisation laser et son évolution finale est donc la même, l'expansion sous l'effet de pression des électrons. L'ignition du processus d'évolution d'un gaz d'atomes de Rydberg froids vers un plasma ultra-froid est complexe et plusieurs phénomènes entrent en jeu. Un atome de Rydberg peut être ionisé en absorbant le rayonnement infrarouge du corps noir ou bien s'ioniser par collision avec un autre atome de Rydberg. Dans ce dernier cas les interactions entre atomes de Rydberg proches voisins créent des forces attractives ou répulsives, les forces attractives pouvant conduire à l'ionisation Penning dans laquelle un atome est ionisé et le second est ramené vers un état moins excité. Les électrons produits s'échappent immédiatement de la zone où ils sont créés. Le processus d'ionisation se poursuit jusqu'au point où la charge d'espace créée par l'excès d'ions est suffisante pour piéger les électrons. Il s'ensuit des collisions entre ces électrons piégés et les atomes de Rydberg restant. Les atomes de Rydberg dont l'énergie de liaison est inférieure à l'énergie cinétique $\approx k_B T_e$ d'un électron libre du plasma sont ionisés. Les atomes plus liés, quant à eux, voient ici leur nombre quantique principal diminuer (ou augmenter) jusqu'à la possibilité de se désexciter par émission spontanée dans leur état fondamental (ou sont ionisés) ; ils deviennent alors spectateurs de l'évolution ultérieure du système. Le mécanisme total est donc le résultat de processus d'ionisation par collisions d'électrons avec des atomes de Rydberg mais également de chauffage des électrons qui par collisions avec des atomes de Rydberg peuvent acquérir de l'énergie cinétique. Ce dernier processus permet aux électrons d'acquérir l'énergie nécessaire pour ioniser la quasi totalité des atomes de Rydberg. Une faible part $\approx 10\%$ des atomes se retrouvent finalement dans l'état fondamental [Li et al., 2004]. Une étude faite par [Vanhaecke et al., 2005] propose de réduire la température électronique en ajoutant des atomes de Rydberg froids dans le plasma ultra-froid déjà formé. Expérimentalement le refroidissement du plasma n'a pas été observé. Une étude théorique a montré que le refroidissement se produit mais que le chauffage des électrons acquière rapidement un effet dominant sur la cinétique du gaz [Pohl et al., 2006].

Dans ce chapitre nous nous sommes focalisés sur le contrôle des forces dipolaires conduisant à l'ionisation Penning, en considérant les états de Rydberg np dont l'interaction entre atomes voisins passe de répulsive à attractive lorsque $n > 42$ au paragraphe 4.2. Nous analysons également la contribution du rayonnement du corps noir dans les processus d'ionisation. Dans le paragraphe 4.3 nous comparons nos résultats à ceux obtenus pour différentes expériences de collisions ionisantes dans un gaz d'atomes de

Rydberg froids. Dans le paragraphe 4.4 nous regardons les effets pouvant conduire à des taux d'ionisation plus élevés, en particulier nous analysons le rôle du transfert radiatif de type superradiant capable de modifier complètement les taux de collisions entre atomes de Rydberg. Nous reportons des expériences faites en collaboration avec l'université de Virginie de mise en évidence d'un effet de superradiance limitée entre états de Rydberg dans le cas où les atomes de Rydberg sont contenus dans un volume petit devant la longueur d'onde au cube de la transition.

4.2 Expérience de contrôle des forces dipolaires menant à l'ionisation du gaz gelé

Nous avons observé une variation du taux d'ionisation dans [Vogt et al., 2006] de part et d'autre de la résonance de Förster. Nous poursuivons cette étude en nous focalisant sur les taux d'ionisation observés et en essayant de leur apporter des explications. Dans l'expérience [Viteau et al., 2008b] nous excitons les états de Rydberg de part et d'autre d'une résonance collisionnelle (résonance de Förster). Cela nous a permis de confirmer l'effet des potentiels attractifs autour de la résonance à l'origine des forces dipolaires responsables de la collision d'atomes de Rydberg, pouvant éventuellement mener à l'état plasma. L'évolution du nombre d'ions ainsi que de la population d'atomes de Rydberg est mesurée par la technique d'ionisation sélective suivi d'une phase de temps de vol. Dans un premier temps nous montrons que l'initiation d'un plasma est possible pour des états dont les potentiels d'interaction sont attractifs. Dans un deuxième temps nous proposons des interprétations au nombre d'ions particulièrement élevé que nous mesurons pour des états dont les potentiels d'interaction sont répulsifs.

4.2.1 Expérience et résultats

Le montage expérimental est décrit dans le chapitre 2. L'excitation du césium vers des états de Rydberg est réalisée par excitation à trois photons dont le dernier étage est présent durant 300ns :



Le troisième laser fait un angle de 67.5° avec le deuxième laser (focalisation sur $70\mu m$ et $100\mu m$, respectivement), l'intersection faisant alors un volume de $2 \cdot 10^{-3} \text{ mm}^3$. Les modulateurs acousto-optique permettent de superposer temporellement les lasers de deuxième et troisième étage d'excitation à une cadence de 80Hz.

Le système évolue librement pendant une durée comprise entre 450ns et $50\mu s$. Nous appliquons ensuite une impulsion de champ électrique (500V/cm en 50ns) entre deux grilles de part et d'autre du nuage atomique. Les ions présents dans le nuage atomique ainsi que les atomes de Rydberg ionisés par l'impulsion de champ électrique sont accélérés vers le détecteur. La résolution temporelle de l'arrivée de chacun des paquets d'ions est obtenue jusqu'au nombre quantique $n=80$.

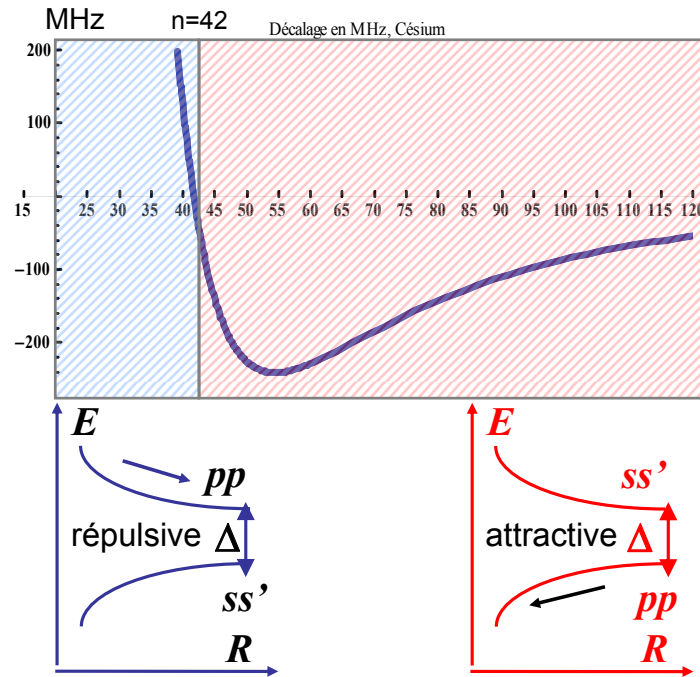


FIGURE 4.3 – Haut. Décalage en MHz à la résonance de Förster $np+np \rightarrow ns+(n-1)s$. Dans le cas où la paire pp à une énergie supérieure à la paire ss' la courbe de potentiel de pp est répulsive (en bas à gauche), et inversement (en bas à droite). Les forces dipolaires sont plus importantes au voisinage de la résonance.

4.2.2 Collisions ionisantes, forces dipolaires

Dans un premier temps nous nous intéressons au comportement obtenu de part et d'autre de la résonance de Förster qui se trouve à $n=42$. Ces comportements sont compatibles avec la représentation qui est faite figure 4.3 des courbes de potentiels pour les états $n < 42$ et $n \geq 42$. En effet, à la traversée de la résonance de Förster, la différence d'énergie entre états nnp et $ns(n+1)s$ change de signe. Les atomes excités sur un état np passent d'un potentiel répulsif à un potentiel attractif en fonction du champ électrique appliqué comme indiqué sur la figure 4.4.

Nous indiquons le profil spectral obtenu expérimentalement pour deux densités d'atomes en faisant varier la puissance du laser Ti:Sa (figure 4.5). La détection intervient $10 \mu s$ après la fin de l'excitation laser. A faible densité le nombre d'ions formés représente environ 7% des atomes excités pour l'état $40p_{3/2}$ et 10% pour l'état $43p_{3/2}$ (figure 4.5). Lorsqu'on augmente la densité (en augmentant la puissance du laser Ti:Sa) le nombre d'ions varie peu pour $40p_{3/2}$, environ 9% mais pour $43p_{3/2}$ il se produit à résonance une ionisation complète des atomes excités, indiquant la formation d'un plasma.

La différence, visible sur la figure 4.5, entre $n=40$ et $n=43$ vient du fait que les atomes en $n=43$ sont excités sur une courbe de potentiel attractive (on peut voir un phénomène similaire dans [Li *et al.*, 2005] pour les états $48d$ et $48s$ du rubidium).

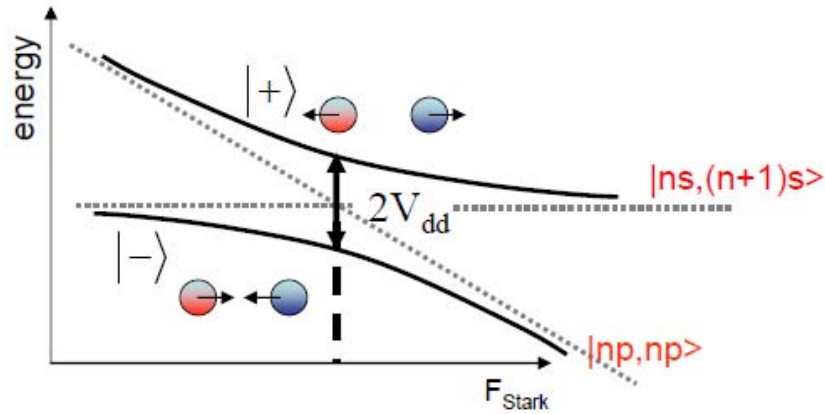


FIGURE 4.4 – Dans le cas d’une distance interatomique fixée, le couplage dipôle-dipôle entre les états pp et ss’ conduit à un croisement évité. L’écart en énergie à résonance vaut $2\Delta V(R)$. Dans le cas où la paire pp à une énergie, à champ nul, supérieure à la paire ss’ ce diagramme indique que de part et d’autre de la résonance, la paire pp a un caractère attractif ou répulsif.

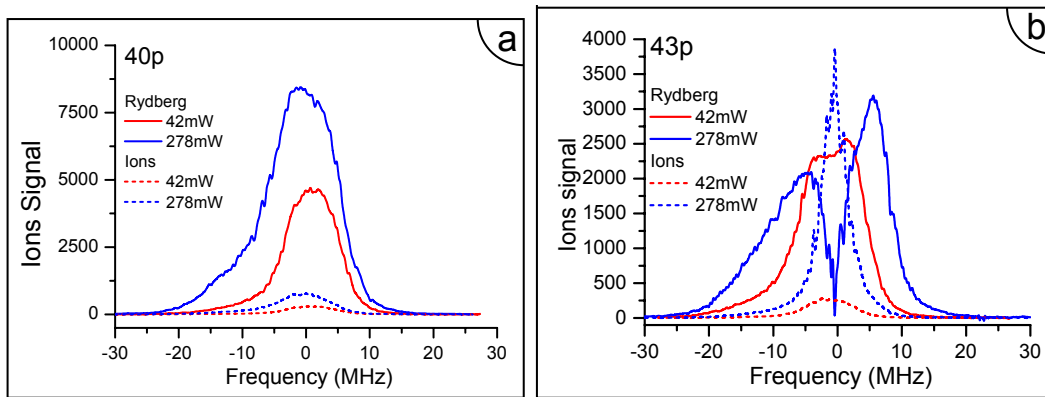


FIGURE 4.5 – Signal d’ions et de Rydberg pour deux intensités lasers différentes (42 mW et 278 mW) pour (a) 40p (répulsif) et (b) 43p (attractif). L’impulsion laser est de 300 ns , puis il y a un délai de $10\mu s$, entre la fin de l’impulsion laser et l’impulsion de champ ionisante. Nous pouvons noter l’asymétrie sur le rouge du profil, due à l’excitation à 3 étages dans laquelle une excitation directe à 2 ou 3 photons peut avoir lieu.

Les forces dipolaires sont déjà présentes à résonance de Förster. Nous avons vu que de part et d’autre de la résonance le nombre d’ions formés n’est pas le même [Vogt et al., 2006]. Nous étudions ici les collisions et l’ionisation résultant de l’influence des forces interatomiques. Sur les données de la figure 4.6 sont représentés la densité d’ions détectés en fonction de la densité d’atomes dans des états de Rydberg $np_{3/2}$, où n varie de 40 à 45. Les données sont présent avec un délai de $0.45\mu s$, $5\mu s$ et $10\mu s$ après l’excitation. Après un délai de $0.45\mu s$ l’ionisation est similaire pour l’ensemble des états considérés. Cependant, après $5\mu s$ nous observons un comportement différent pour les courbes $n=(40,41)$, et pour les courbes $n=(42,43,44,45)$.

Après $10\mu s$ trois comportements distincts sont identifiés qui permettent de regrouper les états $n=(40,41)$, $n=42$ et $n=(43,44,45)$. La densité d’ions en fonction de la densité

initiale d'atomes des états $n=40$ et 41 est linéaire tandis que pour les états $n \geq 42$, la densité d'ions est linéaire puis devient quadratique. Lorsque la densité d'ions évolue de façon quadratique avec la densité initiale d'atome il y a formation d'un plasma par avalanche électronique. La présence de 400 ions dans le volume d'excitation permet de piéger des électrons qui possèdent une énergie cinétique inférieure à $2.48 \cdot 10^{-13} \text{eV}$ (60cm^{-1}).

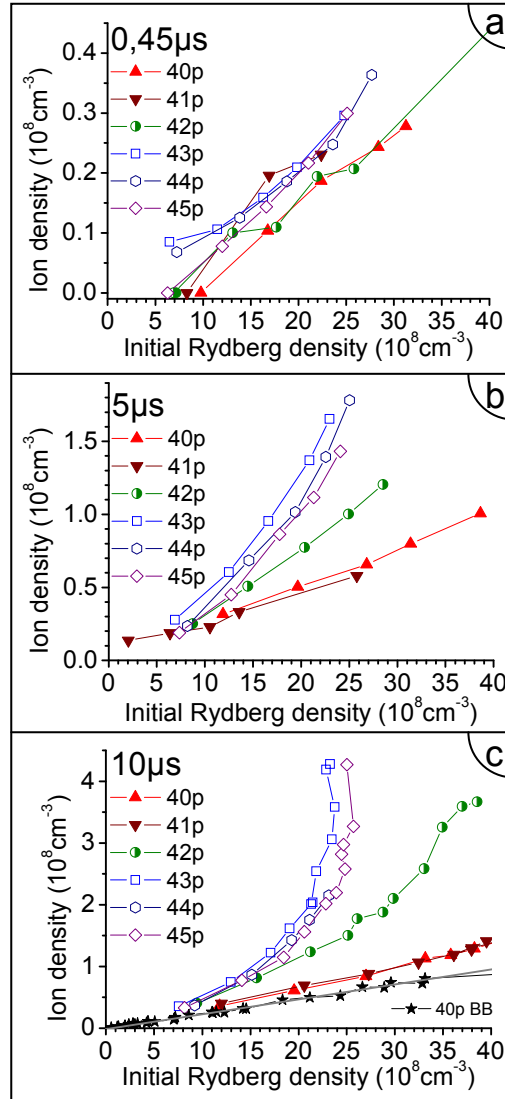


FIGURE 4.6 – Densité d'ions en fonction de la densité initiale d'atomes excités pour différentes valeurs de n et 3 délais entre l'excitation et la détection de (a) $0.45 \mu\text{s}$ (b) $5 \mu\text{s}$ et (c) $10 \mu\text{s}$. À $10 \mu\text{s}$ les étoiles notées '40p' indiquent une mesure faite en minimisant la présence d'atomes dans l'état 6p (voir texte). Chaque point correspond au maximum d'un profil spectral, tel que ceux présentés à la figure 4.5

On considère une collision classique prenant en compte le terme en C_3/R^3 du potentiel d'interaction (les distances initiales entre atomes sont de plusieurs microns). Le temps de collision est simplement obtenu par la résolution de l'équation horaire du

mouvement à force centrale entre deux atomes :

$$t = \int_{4n^2 a_0}^{r_{initial}} \frac{dr'}{\sqrt{\frac{2}{m} \left(\frac{\mu_{ps}^2}{4\pi\epsilon_0 r_{initial}^3} - \frac{\mu_{ps}^2}{4\pi\epsilon_0 r'^3} \right)}} \quad (4.1)$$

Deux atomes excités sur l'état $43p_{3/2}$ et séparés de $5\mu m$ collisionnent en $\sim 5\mu s$ (voir figure 4.7). Lorsque la densité d'atomes excités est de $25 \cdot 10^8$ at/cm³, ou encore quand il y a 5000 atomes dans le volume d'excitation, 10% des atomes sont à une distance suffisamment proche ($5\mu m$) pour qu'il soit possible d'observer des collisions pour $n \geq 42$. Expérimentalement (figure 4.6b), après un délai de $5\mu s$ et à une densité de $25 \cdot 10^8$ at/cm³ nous observons effectivement plus d'ions pour les états $n \geq 42$ que pour les états $n < 42$, que nous pouvons attribuer aux collisions sous l'effet de forces attractives.

La différence entre les états se trouvant sur des courbes attractives ou répulsives est donc bien comprise.

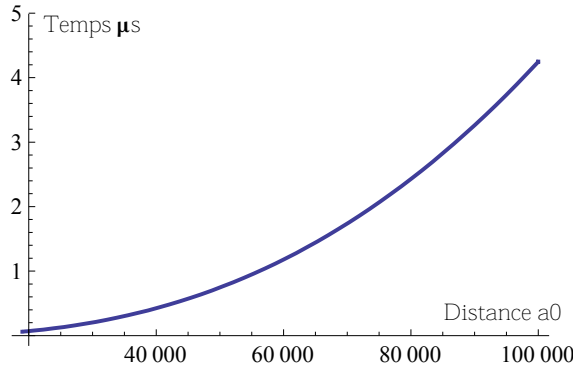


FIGURE 4.7 – Temps de collisions de deux atomes excités dans un état de Rydberg np pour différentes distances initiales. Les dipôles sont supposés alignés $\uparrow\uparrow$.

4.2.3 Redistribution des états atomiques par le rayonnement du corps noir

L'analyse des résultats expérimentaux pour les états $n < 42$ est cependant moins évidente que pour les états $n \geq 42$ car les paires pp se trouvent sur des potentiels répulsifs. On s'attend alors naïvement à une ionisation par les photons du corps noir uniquement. Une partie des ions est due au fait que les atomes chauds $6s$ sont résonants avec les lasers du premier étage d'excitation (faisceaux du piège) lorsqu'ils traversent perpendiculairement à l'axe d'un faisceau laser, car dans ce cas ils ne sont pas sensibles à l'effet Doppler. Il peuvent donc être portés dans l'état $6p_{3/2}$ et entrer en collisions avec les atomes de Rydberg comme nous l'avons constaté. Dans le cas de l'état $40p$, des mesures ont été faites en décalant en fréquence les lasers du piège avant l'excitation et en utilisant une diode indépendante pour le premier étage de l'excitation, qui traverse le nuage dans une seule direction. Nous mesurons un taux d'ionisation apparent de $2400s^{-1}$ (en divisant le nombre d'ions par le nombre d'atomes de Rydberg puis en rapportant le résultat au délai d'évolution libre). Le même taux est mesuré pour $n > 42$ à faible densité.

Pour expliquer cette valeur de 2400s^{-1} nous allons à présent étudier les différentes causes possibles. Nous nous intéressons à présent à l'ionisation d'atomes excités sur des potentiels répulsifs ainsi qu'aux ions présents à faible densité. Dans un premier temps, calculons le taux d'ionisation direct par les photons du rayonnement thermique. Nous utilisons la formule donnée par [Gallagher, 1994] avec des éléments de matrice radiale prolongée au delà de la limite d'ionisation (en unité atomique) $\langle \epsilon l' | r | nl \rangle = (\beta (0.41 \frac{(n^*)^{-3/4}}{w^{-5/3}})^2)$ où w est l'énergie du niveau nl et β est un paramètre de normalisation de l'élément de matrice radiale par l'énergie w calculé dans [Hoogenraad and Noordam, 1998]. Le distribution des photons du corps noir est donnée $\bar{n} = \frac{1}{e^{h\nu/kT}-1}$, avec ν la fréquence de la transition. Dans le calcul du taux d'ionisation τ_{ion} [Gallagher, 1994], l'énergie des photons est prise du seuil d'ionisation à l'infini.

$$\frac{1}{\tau_{ion}} = \int_{1/2n^*}^{\infty} \frac{4l}{3(2l+1)} w^3 \alpha^3 (0.66 \frac{0.41(n^*)^{-3/4}}{w^{5/3}})^2 \bar{n} + \frac{4(l+1)}{3(2l+1)} w^3 \alpha^3 (1 \frac{0.41(n^*)^{-3/4}}{w^{5/3}})^2 \bar{n} dw \quad (4.2)$$

avec α la constante de structure fine. Pour l'état $40p$ le taux d'ionisation direct que nous calculons est d'environ 700s^{-1} .

Dans [Beterov et al., 2008] un calcul pour le césium prend en compte l'ionisation indirecte en prenant en compte le champ d'extraction. Commençons par calculer le taux d'ionisation direct pour le césium qui est donné par la formule

$$W_{direct} = 1.1 \frac{11500T^{7/3}}{n^*} (\cos[0.458701\pi - \pi/6]^2 + \cos[1.12661\pi + \pi/6]^2) \log[1/(1 - \exp[-157890/(Tn^*)])] \quad (4.3)$$

soit avec $n^* = 40 - 3.55$ et $T=300\text{K}$ $W_{direct}=700\text{s}^{-1}$.

Le taux d'ionisation obtenu, 700s^{-1} , en suivant [Beterov et al., 2008] est en bon accord avec le taux calculé en suivant [Gallagher, 1994] et [Hoogenraad and Noordam, 1998].

La prise en compte du champ d'extraction des électrons va modifier cette valeur. En effet il faut ajouter au signal d'ions formés durant l'évolution libre la possibilité d'ioniser par champ électrique des atomes sur des états de Rydberg plus élevés (donc moins liés) que le seuil de détection ions/Rydberg. Ainsi ces atomes dans des états de Rydberg arrivent temporellement avec les ions libres et contribuent au signal d'ions. En prenant la formule du seuil classique d'ionisation $V = \frac{1}{16nc^4} * 5.14 \cdot 10^9 (V/cm)$ on revient à la valeur de nc minimum des atomes ionisés. Les atomes dans des états $nc = (V/(3.2 * 10^8))^{-1/4}$ avec V le champ électrique en V/cm arrivent dans la fenêtre temporelle des ions. Pour $n=40$ le champ classique d'ionisation est de $142V/cm$. Expérimentalement la rampe de champ électrique permet une séparation en temps de vol entre ions et atomes à $70V/cm$ cela signifie que de $0V/cm$ à $70V/cm$ les ions détectés peuvent également provenir de l'ionisation par champ électrique d'atomes de Rydberg jusqu'à l'état $n=46$. La prise en compte de ces ions conduit à un taux corrigé

$$W_{indirect} = 1.1 \frac{11500T^{7/3}}{n^*} (\cos[0.458701\pi - \pi/6]^2 + \cos[1.12661\pi + \pi/6]^2) \quad (4.4)$$

$$(\log[1/(1 - \exp[\frac{157890}{Tnc^2} - \frac{157890}{Tn^{*2}}])] - \log[1/(1 - \exp[-\frac{157890}{Tn^{*2}}])])$$

soit une réévaluation due à l'ionisation par champ $W_{indirect}=550s^{-1}$. Le taux d'ionisation calculé est $W_{direct} + W_{indirect}=1250^{-1}$, soit la moitié du taux d'ionisation mesuré d'environ $2400s^{-1}$.

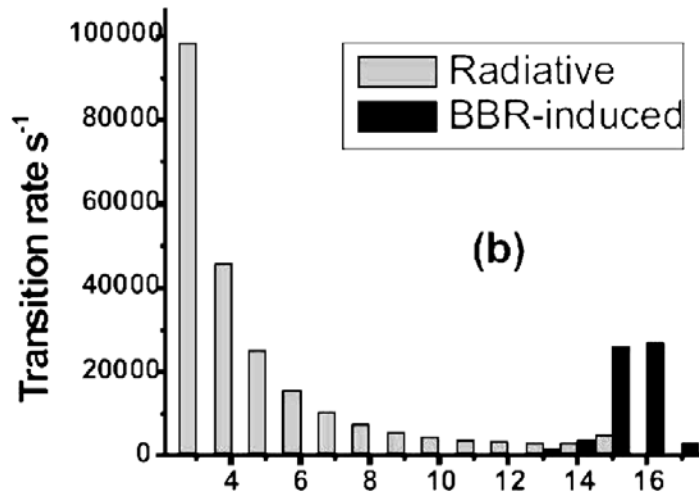


FIGURE 4.8 – Taux de transition spontané et par le corps noir calculé pour un état 16s du sodium vers des états n'p. Tirée de [Beterov et al., 2008]

Les atomes absorbant des photons du rayonnement thermique ne sont pas uniquement ionisés. Ils sont également redistribués sur des états voisins 4.8. Le calcul de cet effet est donné par le taux d'émission spontanée multiplié par le taux d'occupation des photons, soit $\bar{n}A_{n'l',nl}$ [Gallagher, 1994]. Nous pouvons évaluer le taux de transition entre états voisins à environ $12000s^{-1}$, ce chiffre peut être comparé à celui donné par [Amthor et al., 2007] pour l'état 40s du rubidium ($12730s^{-1}$). Les états sur lesquels sont transférés les atomes de la population initialement excitée peuvent à leur tour être ionisés par absorption des photons du rayonnement thermique. Les états sur lesquels sont transférés les atomes produisent des paires ns-np et nd-np dont la moitié se trouvent sur des courbes attractives en C_3/R^3 (l'autre moitié se trouve sur des courbes répulsives). Ces collisions assistés par les photons du corps noir contribuent à réévaluer le nombre d'ions formés durant l'évolution libre.

Évaluons sur les courbes expérimentales le pourcentage d'atomes qui collisionnent en $10\mu s$ suite à la redistribution par les photons du corps noir vers des états attractifs. La différence de densité d'ions formées entre 43p (cas attractif) et 40p (cas répulsif) divisé par la densité d'atomes 43p, donne un pourcentage du nombre d'atomes excités qui sont ionisés sous l'effet des forces attractives. Ainsi pour une densité initiale de $20 \cdot 10^8$ at/cm³ nous trouvons $(1.5-1)/20$ soit un pourcentage d'ionisation de 10% à $10\mu s$ par

des potentiels attractifs. Le taux correspondant, environ 150s^{-1} n'est pas assez élevé pour compenser l'écart qui existe entre le calcul 1400s^{-1} ($1250+150$) et l'expérience 2400s^{-1} . Il nous faut avancer d'autres hypothèses pour comprendre le taux d'ionisation mesuré pour les états répulsifs.

4.2.4 Effets des ions

Concernant le nombre d'ions détectés à temps long¹, une possibilité qui nécessite encore une vérification expérimentale est que les ions présents dans le nuage atomique créent un champ électrique qui provoque l'accélération d'atomes de Rydberg attirés par un gradient positif de champ électrique (dit high-field seeker) et les attirent vers eux. Un calcul de type équation horaire comme celui de l'équation 4.1 permet de d'obtenir une évaluation du temps nécessaire à la collision entre un ion et un atome excité (voir figure 4.9).

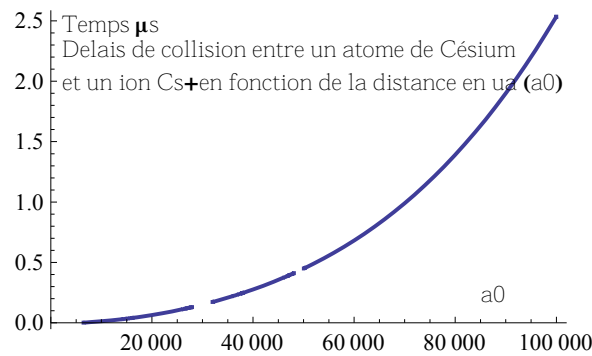


FIGURE 4.9 – Temps de collisions d'un atome excité dans un état de Rydberg $40p_{3/2}$ avec un ion pour différentes distances initiales en unité atomique.

Cet effet est simulé dans le programme Monte Carlo. Il apparaît une augmentation du nombre d'ions d'un facteur inférieur à 2 par rapport à ceux qui sont formés par photoionisation laser ou du rayonnement thermique, lorsque la densité et le délai sont ajustés selon les valeurs indiquées sur la figure 4.9. Pour que la collision aboutisse à l'ionisation de l'atome de Rydberg il faut qu'un troisième corps, cède une partie de son énergie. Cependant la présence d'un troisième corps (atome ou électron) durant la collision n'a pas été considéré dans la simulation et rend probablement cet effet assez faible dans l'expérience.

Nous n'avons pas totalement résolu le problème du taux d'ionisation mesuré à 2400s^{-1} . Une évaluation des différents processus que nous avons évoqué jusqu'à présent, l'ionisation directe par les photons du rayonnement thermique 700s^{-1} , l'ionisation indirecte qui est la contribution d'atomes de Rydberg plus excités que l'état d'intérêt au signal d'ions 550s^{-1} et enfin le transfert d'atomes sur des états attractifs (150s^{-1}) permet d'expliquer un taux de 1400s^{-1} . Nous analysons quelques expériences qui sont en relation avec cette étude avant d'avancer d'autres hypothèses.

1. Nous voyons qu'un certain nombre d'ions sont présents dès $0.45\mu\text{s}$ suivant l'excitation. Ces ions sont certainement formés durant l'excitation par le laser Ti:Sa.

4.3 Expériences complémentaires

D'autres études que les nôtres ont apporté des résultats avec un éclairage supplémentaire sur la formation d'un plasma à partir d'un gaz d'atomes de Rydberg gelé. Dans [Li *et al.*, 2005] la description en terme d'états moléculaires attractifs et répulsifs est très clairement exposé et le modèle est testé par couplage micro-onde (voir figure 4.10).

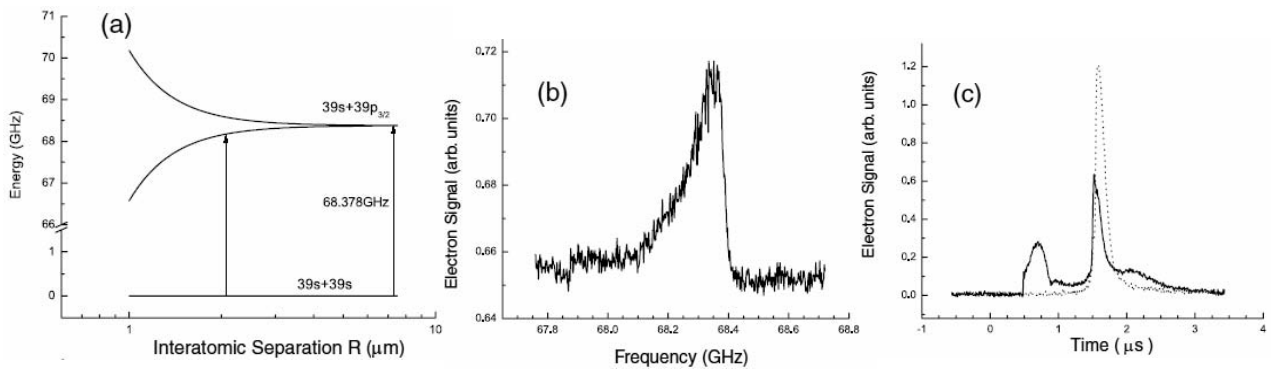


FIGURE 4.10 – Tirée de [Li *et al.*, 2005]. a) Niveaux d'énergie pour la transition 39s39s-39s39p du rubidium. b) Signal d'électron en fonction de la fréquence de couplage micro-onde. Seule la partie attractive de la courbe a) produit un signal. c) Ionisation suivie d'un temps de vol avec micro-ondes (trait continu) ou sans micro-ondes (trait pointillé). Sans micro-ondes seul l'état 39s est détecté. Il apparaît en plus un plasma lorsque le couplage micro-onde est présent à cause du potentiel attractif entre paires.

Il est possible de changer le moment angulaire l ou bien le nombre quantique principal d'un état de Rydberg pour obtenir une interaction attractive ou répulsive. Dans l'expérience [Amthor *et al.*, 2007] le comportement attractif ou répulsif des courbes de potentiels est changé en excitant les atomes sur des états de moment angulaire l différents. cette expérience est ensuite analysée dans [Amthor *et al.*, 2007] où un modèle est construit pour expliquer la présence d'ions lorsque les atomes sont excités sur des potentiels répulsifs. La principale contribution aux effets observés est la redistribution atomique par le rayonnement du corps noir vers des états de moment angulaire $l \pm 1$, où l est l'état de départ, permettant des interactions attractive en C_3/R^3 comme indiqué sur la figure 4.11. Les collisions qui s'en suivent ionisent un des deux atomes. Cet effet est le même que celui que j'ai considéré pour tracer la figure 4.7.

Dans [Day *et al.*, 2008] une étude complète est faite sur la dynamique d'un gaz d'atomes de Rydberg à faible densité. Les auteurs s'intéressent à l'excitation d'états nd et ns du rubidium à faible densité (10^7at/cm^{-3} , il n'y a donc pas de blocage fort) et comparent l'évolution de ces états de trois façons. Ils mesurent les taux de pertes de fluorescence dans leur piège magnéto-optique (avec une sensibilité de 0.01s^{-1}), ils comptent les photons sur la transition $6p_{3/2}-5s$ via laquelle une partie des atomes dans les états de Rydberg D et S se desexcitent, et enfin ils comptent les photons sur la transition $6p_{3/2}-5s$ en stimulant la desexcitation des états de Rydberg via le $6p_{3/2}$. le schéma est indiqué sur la figure 4.12.

Les taux mesurés de desexcitations spontanées sont d'environ 50% des taux atten-

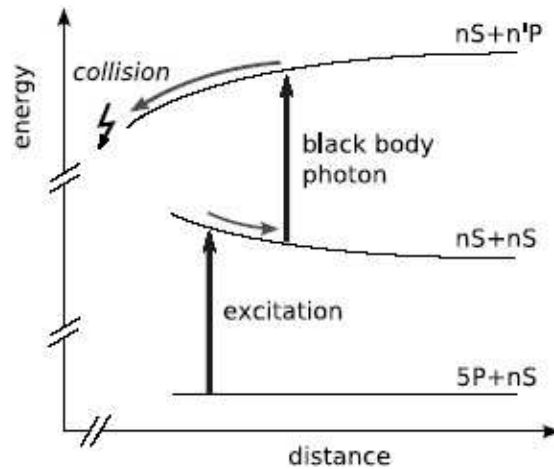


FIGURE 4.11 – Tirée de [Amthor et al., 2007]. Les atomes excités sur des courbes répulsives peuvent, en absorbant des photons du corps noir, se trouver sur des courbes attractives.

dus alors que les taux de pertes de fluorescence sont très faible. Lorsque la desexcitation est stimulée les pertes mesurées par fluorescence des atomes du piège peuvent être comparées aux pertes mesurées par le comptage de photons provenant de la desexcitation des atomes de Rydberg. Ces deux mesures permettent de déterminer le taux de transfert γ de l'état de Rydberg excité vers d'autres états de Rydberg et le taux de pertes de fluorescence Γ_s . Les atomes sont transférés à un taux γ supérieur (d'un facteur 2 à 10) au taux d'émission spontanée et au taux de redistribution par le corps noir. Il est intéressant de noter que ce taux de transfert diminue lorsque n augmente, ce qui n'est pas compatible avec le fait que ce transfert est lié à des interactions dipôle-dipôle. La diminution du nombre d'atomes de Rydberg est principalement causée par le transfert par émission superradiante vers des états voisins (les états nd sont transférés vers des états nf qui ne se désexcitent pas par le $6p_{3/2}$).

Le taux de perte de fluorescence (quelque centaines par seconde) est faible et provient de l'ionisation des atomes de Rydberg par les photons du rayonnement thermique.

La conclusion de cette étude est que le transfert superradiant est un mécanisme de population rapide d'états de moment angulaire $l = \pm 1$ (relativement à l'état l dans lequel l'atome est excité) favorisant une interaction résonnante en C_3/R^3 qui peut alors porter des états sur des potentiels initialement répulsifs sur des potentiels attractifs (le mécanisme est alors celui de la figure 4.11 dans laquelle les photons du corps noir déclenchent une superradiante limitée). Ce mécanisme peut aussi accélérer la formation d'un plasma car l'interaction entre atomes qui est en C_6/R^6 lors de l'excitation peut passer en C_3/R^3 après transfert.

Dans notre cas il est possible qu'un transfert superradiant soit à l'origine de la hausse du taux d'ionisation lorsqu'on excite des courbes répulsives. Nous allons indiquer dans la suite du chapitre les résultats que nous avons obtenus en modélisant une expérience faite par l'équipe de T.F. Gallagher en excitant des états de Rydberg du rubidium. La prise en compte des effets collectifs et des corrélations entre atomes indique que le

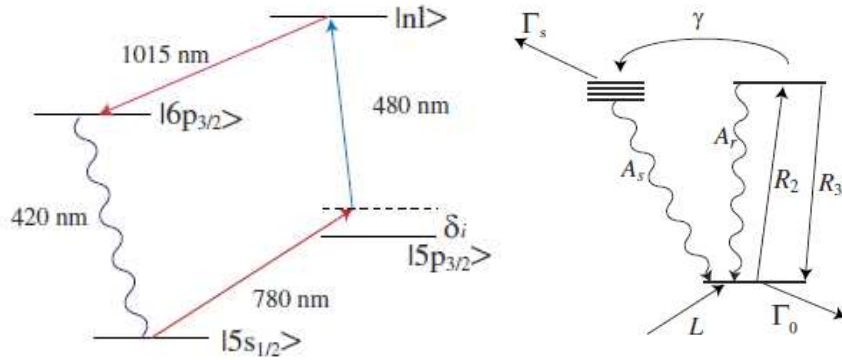


FIGURE 4.12 – Tirée de [Day et al., 2008]. À gauche l’excitation vers l’état de Rydberg est faite à deux photons. La desexcitation (spontanée ou stimulée par un laser sonde) via l’état $6p_{3/2}$ est détectée via un filtre compteur de photons et un filtre interférenciel (420nm). La fluorescence est observée sur le piège. À droite sont représentés les différents taux considérés dans le calcul de perte de fluorescence. L , Γ_0 , taux de chargement, et de perte dans l’état fondamental. A_r , A_s sont les taux d’émission spontanée à partir de l’état excité par laser et à partir d’états excités s . R_2 , R_3 les taux d’émission stimulés (excitation et sonde). γ est le taux de transfert vers des états excités s et Γ_s est un taux de perte d’atomes.

taux de desexcitation des atomes vers des états voisins est accéléré et proportionnel au nombre d’atomes en jeu. Une desexcitation vers des niveaux de Rydberg proches de l’états de départ peut permettre d’expliquer le taux élevé d’ions présents dans les expériences de collisions. En effet, comme nous l’avons vu, le rayonnement thermique explique une faible part du nombre d’ions détectés car il favorise la redistribution des atomes dans des états de nombre quantique principal voisins et de nombre quantique orbital $\delta l = \pm 1$. Les paires d’atomes se trouvant dans des états np - nd ou np - ns dans notre expérience peuvent collisionner sous l’effet de forces attractives et produire des ions. La superradiance favorise ce processus en accélérant la redistribution de l’état initial vers des états voisins.

4.4 Interactions collectives

4.4.1 Superradiance

Jusqu’à présent les atomes ont été considérés comme indépendants les uns des autres. Cette hypothèse n’est plus valable si la distance moyenne entre atome R , est inférieure à la longueur d’onde λ du photon de l’émission spontanée. Il faut alors traiter un volume inférieur à λ^3 dans lequel le couplage des atomes est pris en compte via le champ électromagnétique. Dans ce cas, le temps de vie des atomes dans l’état excité peut être fortement réduit et donne lieu à une desexcitation des atomes en un temps caractéristique inversement proportionnel au nombre N d’atomes dans le volume λ^3 , $\frac{1}{\Gamma N}$. Cet effet appelé superradiance a été prédit par [Dicke, 1954] et plusieurs références donnent des détails théoriques et expérimentaux très complets [Gross and Haroche, 1982; Gross, 1980; Pillet, 1982]. La mise en phase des dipôles atomiques est cependant limitée par l’interaction dipôle-dipôle qui tend à briser la symétrie de permutation

des atomes qui est à la base de cet effet.

Accélération de la cascade radiative.

Afin d'expliquer ce phénomène, considérons N atomes à 2 niveaux dans l'état excité e , contenus dans un volume inférieur à la longueur d'onde correspondant à la transition excité-fondamental ($e-f$). Une analogie peut être faite entre ces N émetteurs et une collection de N spins $1/2$. La cascade radiative est donc identique à celle d'un moment cinétique total $J=N/2$ partant de l'état $|J = N/2, M = J \rangle$ en allant à $|J = N/2, M = -J \rangle$. Le passage d'un état $|J, M \rangle$ vers l'état $|J, M - 1 \rangle$ est réalisé par application de l'opérateur J_- (voir [Cohen-Tanoudji et al., 2000]).

Le calcul du taux de desexcitation $\Gamma_{M \rightarrow M-1}$ d'un état $|J, M \rangle$ vers un état $|J, M - 1 \rangle$ donne

$$\Gamma_{M \rightarrow M-1} = \Gamma | \langle J, M - 1 | J_- | J, M \rangle |^2 = \Gamma(J + M)(J - M + 1)$$

avec Γ la largeur naturelle du niveau excité de l'atome. On en déduit que la cascade est de plus en plus rapide quand M décroît. Au début $\Gamma_{M=J \rightarrow M=J-1}$ vaut $N\Gamma$ et la cascade atteint un maximum pour les transitions $M=1 \rightarrow M=0$ et $M=0 \rightarrow M=-1$ avec un taux de $N(N + 4)/4 \propto N^2/4$. Les corrélations entre dipôles se font à mesure que la cascade radiative se poursuit et atteignent un maximum en $M=0$, lorsque la moitié des atomes se sont desexcités avant de ralentir et s'arrêter en $M=-J$. La valeur moyenne de chaque dipôle reste nulle à chaque étape mais les termes croisés entre dipôles augmentent.

Notons $S_i^+ = |e \rangle \langle f|$ et $S_i^- = |f \rangle \langle e|$ les opérateurs qui changent l'état de l'atome. Le taux de desexcitation d'un atome unique ($N=1$) ou du premier photon de la cascade s'écrit aussi $\Gamma_{M=J \rightarrow M=J-1} = \Gamma \langle e | S^+ S^- | e \rangle = \Gamma N$. De la même façon, durant la cascade on a $\Gamma_{M \rightarrow M-1} = \Gamma \langle JM | \sum_i (S_i^+) \sum_j (S_j^-) | JM \rangle$ qui s'écrit encore $\Gamma N(N - 1) \langle JM | S_i^+ S_j^- | JM \rangle + \sum_i \langle JM | S_i^+ S_i^- | JM \rangle$ (le deuxième terme est le nombre d'atomes $J+M$ dans l'état e). On trouve alors que $\langle JM | S_i^+ S_j^- | JM \rangle = \frac{J^2 - M^2}{N(N-1)}$ qui mesure les corrélations entre deux atomes i et j va de 0 au début de la cascade à $\frac{N}{4(N-1)} \approx 1/4$ quand la moitié des atomes se sont desexcités et diminue jusqu'à 0 à la fin de la cascade.²

Un exemple de superradiance dans un ensemble atomique excité est donné dans [Gounand et al., 1979]. Dans cette expérience des atomes de rubidium (520K) sont excités vers l'état de Rydberg 12s avec des lasers pulsés (d'une durée d'impulsion de 6 ns). Une analyse temporelle de la fluorescence vers des niveaux d'intérêt est faite via un monochromateur devant un photo-multiplicateur rapide. La population initiale est transférée vers des états voisins dans des temps bien plus court que par émission spontanée ($3\mu\text{s}$) comme le montre les données de la figure 4.13. Les premiers photons qui déclenchent l'émission superradiante sont ceux du rayonnement thermique. Dans le cas que nous présentons ici la superradiance se fait en cascade $12\text{s} \rightarrow 11\text{p} \rightarrow 9\text{d} \rightarrow 7\text{f}$. Par exemple, l'émission spontanée aurait mis près de $3\mu\text{s}$ à peupler l'état 7f alors que la

2. Dans le cas où les atomes ne sont plus couplés de façon symétrique au champ, alors les dipôles individuels évoluent avec une phase différente et ils émettent leurs photons à des instants différents.

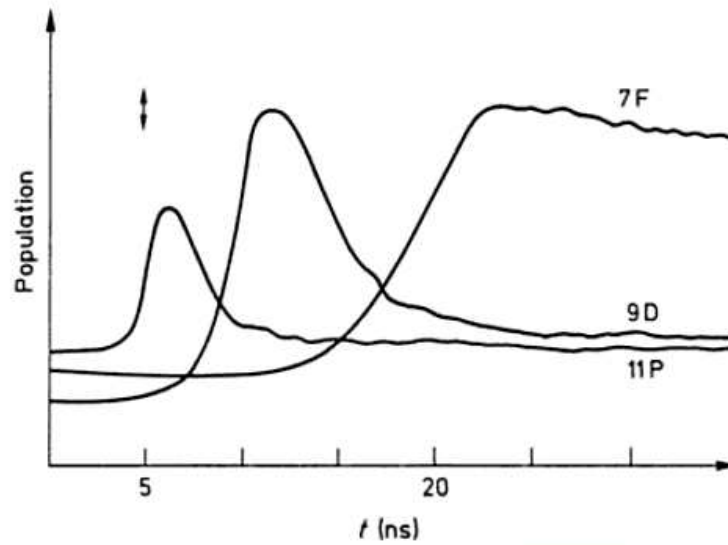


FIGURE 4.13 – Cascade superradiante $12s \rightarrow 11p \rightarrow 9d \rightarrow 7f$, tirée de [Gounand et al., 1979]. Dépendance temporelle des populations de chaque état Rydberg rapidement peuplés après l'excitation de l'état 12s.

cascade superradiante ne met que 20ns.

Réduction du temps de vie dans un état de Rydberg.

De façon similaire la diminution du temps de vie de l'état $40p$ peut être vue sur nos données de la figure 4.14 qui indique l'effet de la densité d'atomes de Rydberg dans la désexcitation radiative. À partir de cette figure on peut supposer que l'on observe de la superradiance dans nos expériences. Le temps de vie calculé de l'état $40p_{3/2}$ du césium est de $47\mu s$ qui prend en compte la désexcitation radiative ($172\mu s$) et le temps caractéristique dû à la relaxation par le corps noir ($65\mu s$). Ce résultat a été obtenu dans l'expérience du Connecticut [Wang et al., 2007] pour des temps longs et a été interprété comme de la superradiance. Les temps courts ont été observés dans notre expérience et montrent de manière plus directe l'effet de superradiance.

Transfert superradiant

D'autres données prises par l'équipe de T.F. Gallagher, à l'université de Virginie, montrent une redistribution de l'état initialement excité vers des états voisins par un transfert superradiant.

L'expérience consiste à exciter des atomes de rubidium dans un piège magnéto-optique à deux photons vers des états nd . Le premier laser (780 nm) transfère les atomes de l'état $5s$ à l'état $5p_{3/2}$, puis un deuxième laser (480 nm) transfère les atomes de l'état $5p_{3/2}$ vers les états $nd_{5/2}$. Après un délai variable compté à partir de l'instant de l'excitation à 480 nm les atomes sont ionisés sélectivement via une rampe de champ électrique et leur détection par temps de vol permet de déterminer l'état dans lequel ils étaient au moment de l'ionisation. Une fraction des atomes est transférée dans les états $(n-2)f_{5/2,7/2}$ et nous indiquons leur nombre sur la figure 4.15 après un délai de $4\mu s$. On peut voir que plus le nombre quantique principal nd est élevé plus le transfert

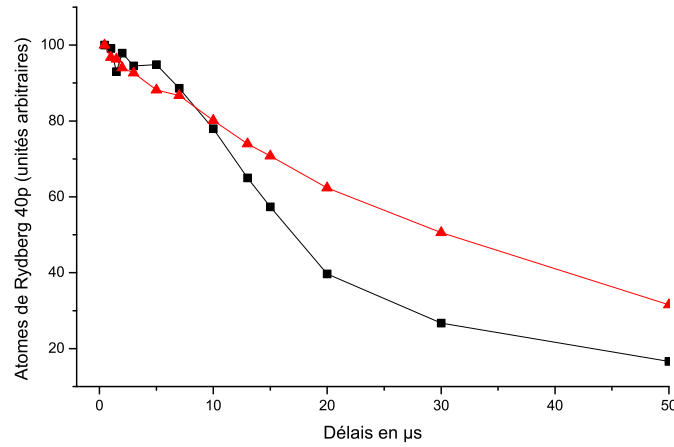


FIGURE 4.14 – Effet du nombre d’atomes 40p sur la durée de vie radiative de l’état $40p_{3/2}$. Nombre d’atomes de Rydberg en fonction du délai entre la fin de l’excitation (durée 300ns) et la détection, normalisés par la valeur à $t=0$. La courbe avec des triangles rouges est prise à une puissance du laser Ti:Sa de 25mW ($12 * 10^8 \text{at/cm}^3$), la durée de vie donnée par un ajustement est de $38\mu\text{s}$. La courbe avec des carrés noirs est prise à une puissance du laser Ti:Sa de 175mW ($35 * 10^8 \text{at/cm}^3$), la durée de vie donnée par un ajustement est de $14\mu\text{s}$.

vers $(n-2)f$ est rapide, ce qui n’est pas attendu puisque les délais de superradiance varient comme $\frac{1}{\Gamma N}$ et que Γ varie comme n^{-5} pour de telles transitions pour lesquelles le transfert demeure très faible. Ce transfert s’arrête beaucoup plus rapidement pour les grandes valeurs de n .

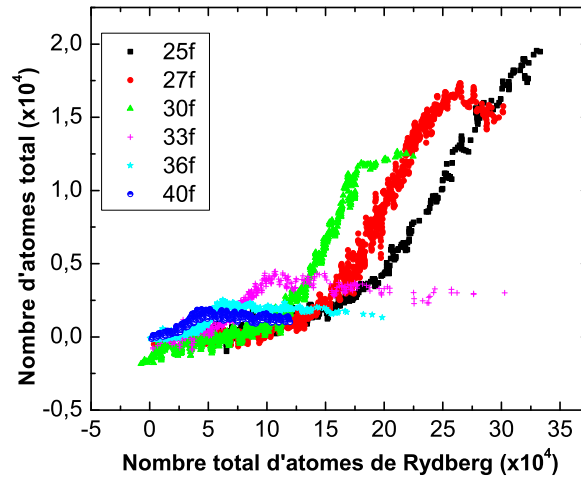


FIGURE 4.15 – Population d’atomes de Rydberg transférés de l’état $(n+2)d$ vers l’état nf après un délai de $4\mu\text{s}$.

4.4.1.1 Modélisation du transfert superradiant

Nous ne donnons pas ici un modèle complet de cet effet de superradiance, nous nous contentons de donner une interprétation des résultats expérimentaux obtenus. Les équations qui vont nous permettre de décrire les effets collectifs pour un système à

deux niveaux sont données en annexe A. Nous reprenons le développement contenant l'interaction dipôle-dipôle³.

La matrice densité réduite $\tilde{\sigma}(t)$ est obtenue en prenant la trace de la matrice densité $\tilde{\rho}$ sur le rayonnement $i\hbar\frac{d\tilde{\sigma}(t)}{dt} = Tr_R \left[\tilde{H}_{AR}(t), \tilde{\rho}(t) \right]$.

$$\begin{aligned} \frac{d\tilde{\sigma}(t)}{dt} = & -\frac{\Gamma}{2} \\ & \int_0^t \left[[R_k^+ R_k^-, \tilde{\sigma}(t)]_+ \cos((\omega_0 - ck)\tau) \right. \\ & - 2R_k^- \tilde{\sigma}(t) R_k^+ \cos((\omega_0 - ck)\tau) \\ & \left. + i[R_k^+ R_k^-, \tilde{\sigma}(t)] \sin((\omega_0 - ck)\tau) \right] d\tau \end{aligned} \quad (4.5)$$

avec ω_0 la fréquence de la transition entre l'état excité et l'état fondamental, k la norme du vecteur d'onde des photons, et :

$$\begin{aligned} R_k^+ &= \sum_{i=1}^N r_i^+ \exp(i\vec{k} \cdot \hat{R}_i) \\ R_k^- &= \sum_{i=1}^N r_i^- \exp(-i\vec{k} \cdot \hat{R}_i) \end{aligned} \quad (4.6)$$

où r_i^+ et r_i^- sont les opérateurs qui excitent et desexcitent l'atome i . De plus on a :

$$\Gamma = \frac{k^3 |d|^2}{3\pi\epsilon_0\hbar} \quad (4.7)$$

On a alors $\vec{d} \propto n^4$ et $\Gamma \propto n^{-5}$. Le terme réel traduit l'évolution d'une cascade radiative identique à l'émission spontanée d'un système de moment angulaire $J=N/2$. L'interaction dipôle-dipôle, présente dans le terme imaginaire de l'équation 4.11, contribue à briser la symétrie de permutation du système et une simulation complète nécessiterait de représenter spatialement l'effet de ce déphasage sur la cohérence atomique. Le calcul pourrait être inclus dans la simulation Monte Carlo, mais nous n'avons pas disposé d'assez de temps pour le faire. Traitons uniquement le cas sans déphasage, l'effet d'interaction dipôle-dipôle va être introduit de façon ad-hoc par la suite. En effet cette interaction ne peut pas être négligée tant que la distance entre atomes $r_{ij} < \lambda$ car le rapport entre l'inverse de la durée de vie Γ et l'interaction dipôle-dipôle $\propto n^4/r_{ij}^3$ varie comme (λ/r_{ij}) .

Approximation du champ moyen

3. L'équation pilote (ou maîtresse) de la superradiance décrit l'évolution temporelle des atomes par une matrice densité $\rho(t)$ est obtenue dans l'approximation dite de Born-Markov, pour laquelle la construction des corrélations entre les atomes et le réservoir, qui reste équivalent au vide de photons, sont négligés (Born) et les temps de corrélations des atomes au rayonnement sont considérés comme très court (Markov).

L'approche de champ moyen consiste à ne pas prendre en compte les effets de propagation. On peut alors s'intéresser à l'évolution de la population initiale en négligeant les corrélations spatiales et le terme imaginaire. Ici on se restreint à $k = k_0$. On a le système d'équation suivant (voir l'annexe A) pour la population du niveau excité $|\sigma_{22}|^2 = \sigma_{22}(1 - \sigma_{11})$ et la cohérence σ_{12} ($\sigma_{12}^{(j)}(t) = \sigma_{12}^{(i)}(t)$) :

$$\frac{d\sigma_{22}^{(i)}(t)}{dt} = -\Gamma\sigma_{22}^{(i)}(t) - (N - 1)\Gamma\left|\sigma_{12}^{(i)}(t)\right|^2 \quad (4.8)$$

$$\frac{d\left|\sigma_{12}^{(i)}(t)\right|^2}{dt} = -\Gamma\left|\sigma_{12}^{(i)}(t)\right|^2 + \Gamma(N - 1)\left[2\sigma_{22}^{(i)}(t) - 1\right]\left|\sigma_{12}^{(i)}(t)\right|^2 \quad (4.9)$$

Pour que le système traite l'effet collectif, il faut considérer l'émission du premier photon (la cohérence vaut alors $1/N$ et la population est entièrement dans l'état excité) et prendre :

$$\begin{aligned} \left|\sigma_{12}^{(i)}(0)\right|^2 &= \frac{1}{N} \\ \sigma_{22}^{(i)}(0) &= 1 \end{aligned}$$

Le système d'équations ci-dessus est calculé numériquement. Nous utilisons un taux dans le modèle : ga , est le taux de transfert entre les états nd et $(n-2)f$ (variant comme n^{-5}). Dans notre cas la transition superradiante ce fait de nd vers $(n-2)f$ ce qui implique que nous changions Γ , qui est l'inverse du temps de vie dans le modèle ci-dessus, par ga .

Dans l'expérience, il apparait que le transfert superradiant est plus rapide pour les atomes les plus excités. La difficulté du modèle phénoménologique que nous présentons est d'arriver à rendre compte cet effet correctement. Pour comprendre que l'émission apparait plus rapide pour les grands n nous faisons l'hypothèse que le nombre d'atomes qui émettent coopérativement correspond à ceux contenus dans le volume $\bar{\lambda}^3$. Il faut donc considérer $(ga\frac{\bar{\lambda}^3}{V})$ qui est proportionnel à $\frac{\mu^2}{V}$. De plus l'arrêt soudain du transfert superradiant est interprété comme le résultat du déphasage des dipôles émetteurs lié aux interactions dipôle-dipôle entre atomes de Rydberg. Nous supposons que ce déphasage apparait soudainement au temps t tel que $\frac{\mu^2}{R^3}t \approx 2\pi$. Nous n'utilisons qu'un seul paramètre dans 4.10 qui est la taille du piège de l'ordre de $600\mu m$ correspondant à $\bar{\lambda}$ pour $n=40$.

Le modèle s'écrit finalement :

$$\frac{d\sigma_{22}^{(i)}(t)}{dt} = -ga\sigma_{22}^{(i)}(t) - (N - 1)ga * \left(\frac{\bar{\lambda}^3}{V}\right)(1 - \Theta\left(\frac{\mu^2}{V}(N - 1)t - 2\pi\right)) \quad (4.10)$$

En reprenant un modèle de champ moyen pour une assemblée d'atomes en petit volume et en intégrant à ce modèle les hypothèses ci-dessus nous obtenons les résultats de la figure 4.16 et de la figure 4.17. De manière assez surprenante le modèle est en très bon accord avec les données expérimentales de la figure 4.15. Ce résultat semble indiquer que la superradiance dans un petit volume ne se produit pas pour tous les atomes dans $\bar{\lambda}$. Une superradiance limitée peut cependant être observée quand le volume excède $\bar{\lambda}$ avec un nombre de coopérativité de $\frac{\bar{\lambda}^3}{V}$. Lorsque la superradiance démarre elle est cependant

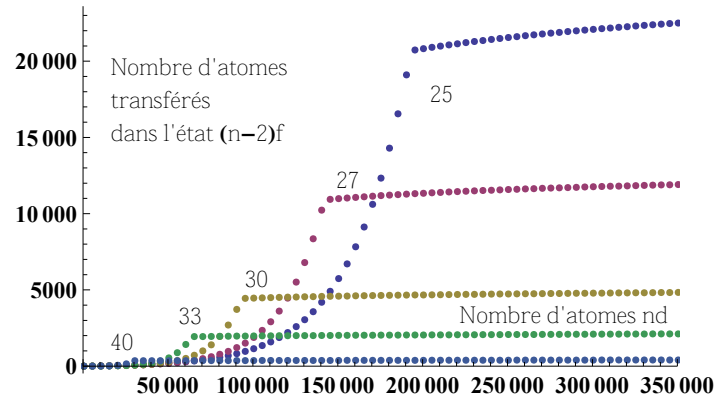


FIGURE 4.16 – Résultat de l’approche de type champ moyen. Chaque point est le résultat d’un calcul qui indique le nombre d’atomes transférés de l’état nd à l’état $(n-2)f$ au bout d’un temps fixe $t=4 \mu\text{s}$, pour $nd=25,27,30,33,40$ et un nombre d’atomes N variant de 0 à 350000. Dans ce calcul nous avons pris les paramètres suivant pour $n_{norm}=40$: $ga=53.10^{-6} \text{ s}^{-1}$.

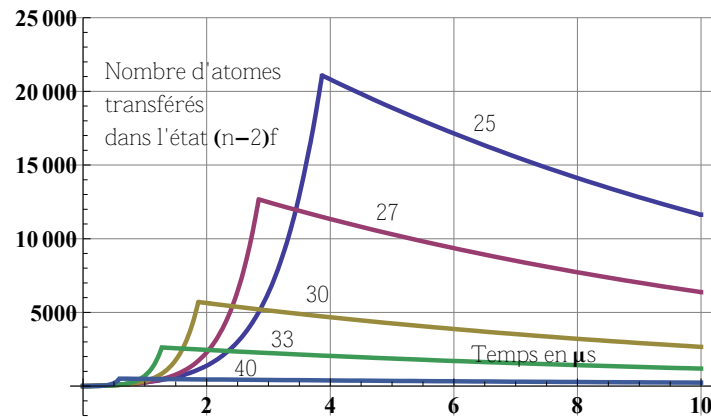


FIGURE 4.17 – Résultat de l’approche de type champ moyen. Chaque courbe est le résultat d’un calcul qui indique le nombre d’atomes transférés de l’état nd à l’état $(n-2)f$ en fonction du temps pour $nd=25,27,30,33,40$ et un nombre d’atomes N initial de 350000. Dans ce calcul nous avons pris les paramètres suivant pour $n_{norm}=40$: $ga=53.10^{-6} \text{ s}^{-1}$.

très vite brouillée à cause des interactions dipôle-dipôle. La justification complète du modèle reste difficile mais nous pouvons comprendre la physique des données observées.

Conclusions

Nous concluons ici l’étude de l’ionisation des atomes de Rydberg. L’analyse des taux d’ions mesurés dans notre expérience nous a conduit à une interprétation faisant intervenir les collisions avec les atomes chauds de la vapeur de césium, la redistribution sur des états de Rydberg différents de l’état excité par le rayonnement du corps noir et une superradiance limitée. Le modèle que nous avons développé est phénoménologique mais il permet déjà de comprendre pourquoi les états les plus excités sont les plus rapides à se désexciter en considérant le nombre d’atomes présents dans $bar\lambda^3$.

4.4.2 Effets à longue portée, terme d'échange

En développant les équations de la superradiance nous pouvons retrouver les termes de l'interaction dipôle-dipôle. La prise en compte des états non résonants dans l'équation d'évolution de la matrice densité réduite (voir l'annexe A) permet d'écrire, dans la limite où $k_0 R_{ij} \ll 1$:

$$\begin{aligned}
 \frac{d\tilde{\sigma}(t)}{dt} = & -\frac{\Gamma}{2} \sum_i [r_i^+ r_i^-, \tilde{\sigma}(t)]_+ - 2r_i^- \tilde{\sigma}(t) r_i^+ \\
 & - \sum_{i \neq j} \frac{\Gamma}{2} ([r_i^+ r_j^-, \tilde{\sigma}(t)]_+ - 2r_j^- \tilde{\sigma}(t) r_i^+) \\
 & - i \frac{1}{4\hbar\pi\epsilon_0} \left| \langle 2 | \vec{d} | 1 \rangle \right|^2 \left\{ \frac{1}{2} (1 + \cos^2 \theta) \frac{k_0^2}{R_{ij}} \right. \\
 & \left. - (1 - 3 \cos^2 \theta) \frac{1}{R_{ij}^3} \right\} \\
 & [r_i^+ r_j^-, \tilde{\sigma}(t)] \} \tag{4.11}
 \end{aligned}$$

Nous nous intéressons au terme imaginaire de l'équation 4.11 qui traduit l'interaction dipôle-dipôle. Comme nous avons une équation qui couple le champ de rayonnement aux dipôles atomiques, nous nous attendons à ce que des termes de cette équation traduisent la propagation du champ électromagnétique dans le milieu. Dans l'équation 4.11 apparaît un terme avec une dépendance en $1/R$. Il est équivalent au terme radiatif qui est obtenu pour un dipôle classique. Ainsi le champ dipolaire électrique prend la forme [Jackson, 1998] :

$$\mathbf{E} = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} (k^2 (\mathbf{n} \times \mathbf{p}) \times \mathbf{n} \frac{e^{ikr}}{r} + (3\mathbf{n}(\mathbf{n} \cdot \mathbf{p}) - \mathbf{p}) (\frac{1}{r^3} - \frac{ik}{r^3}) e^{ikr}) \tag{4.12}$$

avec \mathbf{n} le rayon vecteur et \mathbf{p} le dipôle classique. Dans la zone radiative on retrouve le terme en $1/R$ que nous retrouvons dans le développement des équations de la superradiance en plus du terme usuel en $1/R^3$ qui domine en champ proche.

Ce terme traduit un effet de retard, ou plus exactement il met en évidence un temps de propagation fini du champ entre les dipôles. On peut également remarquer que l'intégrale de $\int_0^\pi 2\pi(1 - 3\cos^2 \theta) \sin \theta d\theta = 0$ donc le potentiel non retardé est en moyenne angulaire nul alors que le potentiel retardé donne une contribution $\int_0^\pi 2\pi(1 + \cos^2 \theta)/2 \sin \theta d\theta = 8\pi/3$. L'interaction dipôle-dipôle moyennée sur tous les angles pourrait faire ressortir expérimentalement la contribution du terme en $1/R$.

Simulation

Nous avons introduit ce terme dans la partie du programme Monte-Carlo concernant l'échange résonnant d'excitation. Nous partons d'un ensemble ne contenant que des atomes dans l'état ns et nous plaçons une excitation np au centre du nuage avec les dipôles alignés sur l'axe vertical. Nous évaluons la distribution des sauts quantiques de l'atome dans l'état np dans le cas d'une interaction dipôle-dipôle avec et

sans le terme en $1/R$. La probabilité de saut quantique donnée par la formule de Rabi $\frac{V^2}{V^2+\delta^2} \sin^2(\sqrt{V^2+\delta^2} \frac{t}{2})$ (V est la fréquence de Rabi associée à l'interaction dipôle-dipôle entre l'état initial et l'état final et δ est le décalage à résonance) ne donne pas un taux de transition et nous ne pouvons pas l'utiliser directement dans le programme. Nous considérons ici des taux de la forme $V^2/\sqrt{V^2+\delta^2}$ (unité s^{-1}), qui traduisent le fait que plus l'interaction est forte plus le taux est élevé et que plus le décalage à résonance est grand plus le taux est faible.

Il est important de noter que le décalage à résonance δ est obtenu en prenant l'énergie d'interaction de chacun des deux atomes considérés avec l'ensemble des autres atomes dans le cas où il n'y a pas échange d'excitation, moins l'énergie d'interaction de chacun des deux atomes considérés avec l'ensemble des autres atomes dans le cas d'un échange d'excitation. Ainsi l'échange d'interaction est pondérée localement par l'énergie d'interaction de l'ensemble des atomes et donc plus particulièrement par les atomes plus proches voisins. Nous pouvons observer dans certaines simulations que l'excitation np est piégée, ou localisée, dans une région de l'espace où les interactions des atomes ns avec l'excitation np forme un minimum local de potentiel.

Nous avons représenté les résultats sous la forme d'une distribution de la distance des sauts sur la figure 4.18. Les résultats que nous obtenons confirment un changement de la distribution à grande distance en présence du terme en $1/R$. La distance des sauts est effectivement plus importante avec le terme en $1/R$ ainsi qu'avec une densité d'atomes plus importante à volume constant.

Sur la figure 4.19 nous avons représenté la distribution de l'angle entre les atomes qui échangent leur excitation quand nous rajoutons le terme en $1/R$ au terme en $1/R^3$. On rappelle que les dipôles sont alignés sur l'axe vertical. L'échange d'excitation étant proportionnel à V on remarque que la distribution angulaire prend la forme $(1 - 3 \cos^2 \Theta)$ (en noir sur la figure 4.19) avec des zéros pour 54.7° et 125.2° . La somme des interactions en $1/R^3 + 1/R$ donne une distribution (en rouge sur la figure 4.19) qui est maximum à 90° . Dans ce cas les échanges d'interactions se font principalement dans un plan perpendiculaire à l'axe sur lequel les dipôles sont alignés.

4.5 Conclusions

Dans ce chapitre nous avons étudié la formation d'ions à partir d'un gaz froid d'atomes de Rydberg. Pour cela nous avons mesuré le nombre d'ions présent après l'excitation d'atomes de Rydberg np du césium pour des délais variant de quelques dizaines de nanosecondes à $10\mu s$. Lorsque des paires atomes sont excitées sur des potentiels attractifs pour $n \geq 42$ nous interprétons les taux d'ionisation observés comme provenant des collisions entre atomes de Rydberg soumis à une interaction dipôle-dipôle attractive conduisant à une ionisation Penning. L'observation d'ions formés lorsque des paires d'atomes proches sont excitées sur des potentiels dipôle-dipôle répulsifs nous a conduit à évaluer la contribution de plusieurs processus intervenant dans le signal d'ions. L'ionisation directe par les photons du rayonnement thermique est prise en compte. Un signal d'ionisation indirect par champ électrique d'atomes de Rydberg plus excités que

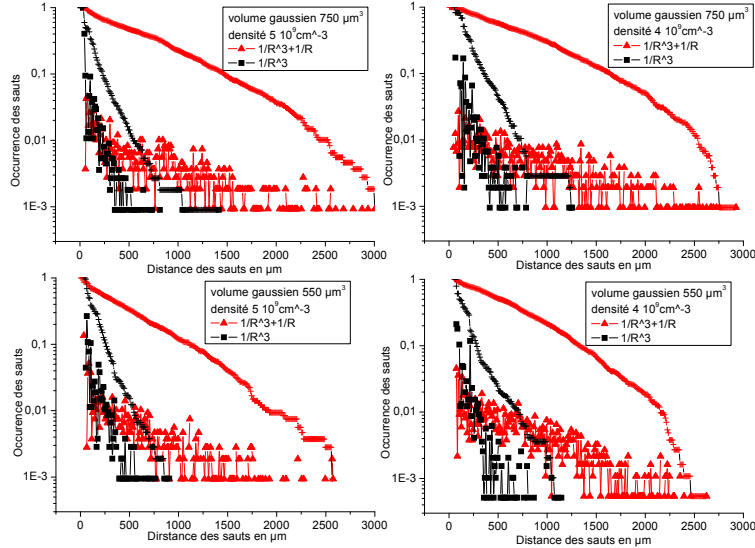


FIGURE 4.18 – Résultats de la simulation Monte Carlo sous la forme d’occurrences de sauts en fonction de la distance entre les atomes avec (triangles rouges) et sans (carrés noirs) le terme en $1/R$ lorsque un atome $15p$ est placé au centre d’un nuage gaussien d’atomes dans l’état $15s$ avec $\lambda_{ps}/2\pi=818.5\mu\text{m}$. Deux volumes sont testés, $550\mu\text{m}^3$ et $750\mu\text{m}^3$ avec deux densités $4\ 10^9\ \text{cm}^{-3}$ et $5\ 10^9\ \text{cm}^{-3}$. Nous avons également représenté la probabilité pour que l’atome $15p$ fasse un échange d’excitation au delà de la distance x avec (croix rouges) et sans (croix noires) le terme en $1/R$.

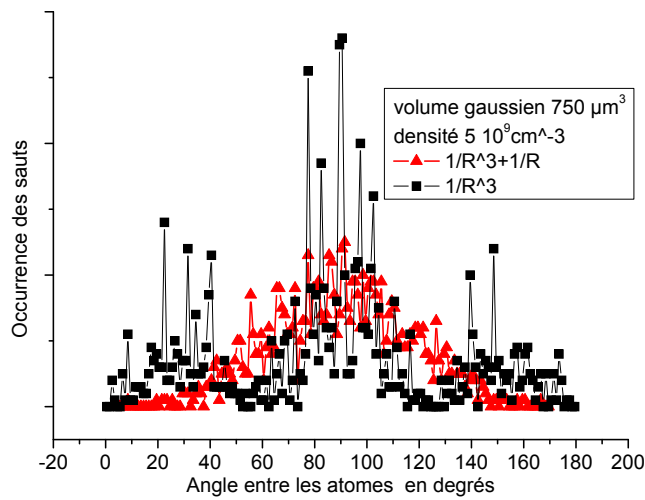


FIGURE 4.19 – Distribution angulaire de l’échange d’excitation entre un atome $15p$ et une assemblée d’atomes $15s$ avec (carrés noirs) et sans (triangles rouges) le terme $1/R$.

l'état de Rydberg initialement peuplé par laser contribue aussi au signal d'ions et nous avons évalué le transfert d'atomes par les photons du corps noir sur des états voisins qui permet à des paires d'atomes proches d'être sur des potentiels attractifs. Le bilan de ces différents processus reste néanmoins deux fois plus faible que le taux mesuré. Des expériences faites dans d'autres groupes ont suggéré qu'une accélération du transfert de l'état initialement peuplé vers des états voisins par un effet superradiant initié par le rayonnement thermique est à l'origine des taux mesurés sensiblement plus élevés qu'attendu.

Nous avons exposé dans le dernier paragraphe des effets pouvant s'interpréter en termes de superradiance limitée entre états de Rydberg. L'expérience menée à l'Université de Virginie est réalisée pour un système très proche du nôtre, en excitant des atomes froids de rubidium vers des états de Rydberg compris entre 25d et 40d. Nous avons modélisé ces expériences. Il semble raisonnable qu'un processus similaire de transfert superradiant se produise dans nos expériences. Si l'on met en perspective les différents travaux expérimentaux qui montrent de l'ionisation sur des états répulsifs et les études de transfert accélérés par la superradiance, nous pouvons avancer que celle-ci est à l'origine un transfert de population conduisant à des interactions de type dipôle-dipôle qui provoque l'ionisation Penning. La moitié des paires d'atomes (une moitié seulement puisque l'interaction résonante donne des potentiels d'interaction en $\pm C_3/R^3$) se retrouvent alors sur des courbes de potentiel attractives ce qui provoque une ionisation Penning. Il reste cependant à quantifier ces effets pour donner un taux d'ionisation.

Melting a frozen Rydberg gas with an attractive potential

Matthieu Viteau,¹ Amodsen Chotia,¹ Daniel Comparat,¹ Duncan A. Tate,² T. F. Gallagher,³ and Pierre Pillet¹

¹Laboratoire Aimé Cotton, CNRS, Université Paris-Sud, Bâtiment 505, Campus d'Orsay, 91405 Orsay, France

²Department of Physics and Astronomy, Colby College, Waterville, Maine 04901-8858, USA

³Department of Physics, University of Virginia, Charlottesville, Virginia 22904-0714, USA

(Received 19 June 2008; revised manuscript received 26 August 2008; published 22 October 2008)

We report clear evidence of the role of the attractive dipole-dipole interaction in Penning ionization of Rydberg atoms, leading to the formation of an ultracold plasma. Penning ionization of np Rydberg cesium atoms does not occur for states with $n < 42$, which have repulsive potentials, but it does occur for states of n larger than 42, which have attractive potentials. Blackbody radiation is mostly responsible for the background and initial ionization, although ion-Rydberg-atom collisions and population transfer due to limited superradiance may have to be considered.

DOI: 10.1103/PhysRevA.78.040704

PACS number(s): 32.80.Ee, 34.20.Cf, 37.10.De

A cold Rydberg gas is a fascinating system at the intersection of atomic, solid-state, and plasma physics. In a magneto-optical trap (MOT), at 100 μ K temperature, the atoms move less than 3% of their typical separation, 10^{-3} cm, on the 1- μ s time scale of the experiments, and such a sample resembles an amorphous solid. Since Rydberg atoms have large dipole moments, scaling as the square of the principal quantum number n , dipole-dipole interactions in the frozen Rydberg gas have a significant effect, even though the atoms are far apart [1–3]. For this reason, binary dipole-dipole interactions have been proposed as the basis for quantum gates [4,5]. Specifically, the dipole-dipole interaction between a pair of Rydberg atoms can preclude the excitation of the second atom in a sample once the first is excited, a phenomenon termed the dipole blockade. Local, or partial, blockades have been observed in many experiments, such as in the van der Waals case [6] and in the dipole-dipole case [7]. In addition to binary interactions, there is evidence for many-body interactions roughly analogous to the diffusion of spins in a glass [8,9]. This phenomenon is particularly apparent in the dipole-dipole energy transfer tuned into resonance with an electric field, a process often termed the Förster resonance energy transfer (FRET) reaction [10].

In addition, a cold Rydberg gas can spontaneously evolve into a plasma. If there is even a very slow ionization process, cold ions are produced, and at some point their macroscopic space charge traps all subsequently produced electrons [11–13]. The trapped electrons lead to a collisional avalanche which rapidly redistributes the population initially put into a single Rydberg state. Typically two-thirds of the atoms are ionized and one-third are driven to lower states to provide the requisite energy [11,14]. The origin of the initial ions is not, however, completely understood [15–17]. With a pulsed laser it is possible to excite atoms close enough to each other that they interact strongly, resulting in ionization on a 100-ns time scale, too fast to be the result of motion of the atomic nuclei [18,19].

With narrow bandwidth, quasi-continuous-wave (quasi-cw) excitation, it is improbable, due to the energy shift produced by the dipole-dipole interaction, to excite atoms which are close together, yet ionization still occurs, although on a time scale of microseconds [15]. One mechanism for this ionization is that pairs of atoms excited to attractive diatomic

potential curves collide, resulting in the ionization of one of the atoms. The much more rapid conversion of cold Rb nd atoms to a plasma than ns atoms was attributed by Li *et al.* to ionizing collisions of pairs of atoms excited to attractive potentials in the nd case, but not in the ns case [20]. Using a narrow-bandwidth laser Vogt *et al.* showed that ions are present following excitation to attractive Cs $npnp$ potentials [10]. A similar behavior was noticed by Amthor *et al.*, who demonstrated that pairs of atoms excited closer together on the Rb $60d60d$ attractive potential ionized more rapidly than those farther apart [15]. In general, atoms excited to the attractive $60d60d$ potential ionize more rapidly than those excited to the repulsive $62s62s$ potential. Although these ionization processes are attributed to motion of atoms on attractive potentials, motion has been observed on repulsive potentials as well. For example, Overstreet *et al.* have observed Cs $89d$ atoms with kinetic energy gained from dissociation along a repulsive potential [21].

In an effort to isolate the effect of attractive and repulsive potentials from other effects, we have examined the ionization of cold Cs np atoms excited with narrow-bandwidth excitation. The interest of the Cs np states is that for $n > 42$ a pair of Cs np atoms is on an attractive potential, while for $n < 42$ the potential is repulsive. Thus by varying n from 40 to 45 we switch, at $n=42$, from excitation to a repulsive potential to an attractive one, with all other parameters of the system changing only slowly. The results show unambiguously the difference between attractive and repulsive potentials. We observe in the case of excitation to an attractive potential a fast ionization, while in the case of repulsive potential a slower ionization, which is nearly linear in the number of excited atoms. Surprisingly, this ionization occurs at a rate that is twice that due to blackbody photoionization and excitation. Although it is not completely understood, the observation of higher than anticipated ionization rates is not unprecedented. Amthor *et al.* have also observed higher than expected ionization rates for the repulsive Rb $62s62s$ case [15]. In the remainder of the paper we describe the Cs system we have studied, present our experimental results, and compare them to our expectations.

For convenience we consider the molecular state composed of a pair of Cs Rydberg atoms separated by distance R . A pair of $np_{3/2}$ atoms we term the pp state, and the nearly

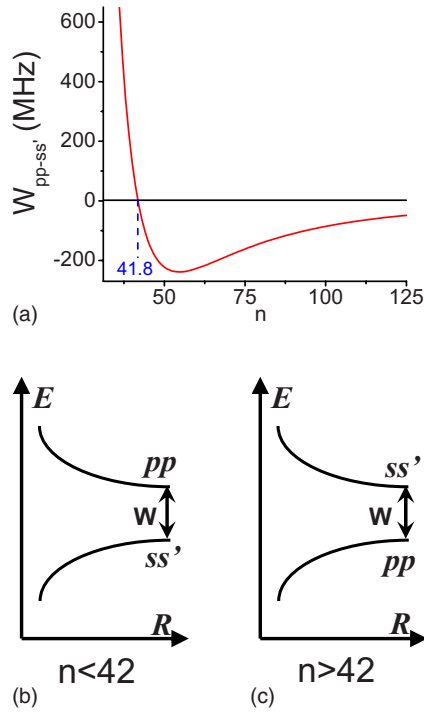


FIG. 1. (Color online) (a) The energy difference (W) between the molecular pp and ss' states at $R=\infty$ for different n . (b) and (c) Schematic potential curves of pair of atoms as function of internuclear distance.

degenerate pair of ns and $(n+1)s$ atoms we term the ss' state. The energy difference between the molecular pp and ss' states at $R=\infty$ is given by

$$W_{pp-ss'} = 2W_{np} - W_{ns} - W_{(n+1)s}, \quad (1)$$

where W_{nl} is the energy of the Cs nl state. As shown by Fig. 1(a), $W_{pp-ss'}$ crosses zero at $n \sim 42$. For $n > 42$ the pp state lies below the ss' state, while for $n < 42$ the reverse is true. If we ignore the fine structure and the angular distribution, the pp and ss' states are coupled by the dipole-dipole interaction and can be written as $\frac{\mu\mu'}{R^3}$, where μ and μ' are the dipole matrix elements connecting the np state to the ns and $(n+1)s$ states, and at finite R the eigenstates are attractive and repulsive linear superpositions of pp and ss' . The resulting potential curves are schematically shown in Figs. 1(b) and 1(c). As $R \rightarrow \infty$ the potentials are $1/R^6$ van der Waals potentials, but at small R they become $1/R^3$ dipole-dipole potentials. We excite Cs atoms to the atomic $np_{3/2}$ state, or pairs of atoms to the molecular pp state. The repulsive potential is excited for $n < 42$, the attractive potential for $n > 42$, while for $n=42$ at high atomic density, both potentials are excited.

In the experiment Cs atoms are held in a MOT at a temperature of $100 \mu\text{K}$ and a number density of up to $5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$. The atoms are excited to the $np_{3/2}$ states via the route

$$6s_{1/2} \rightarrow 6p_{3/2} \rightarrow 7s_{1/2} \rightarrow np_{3/2} \quad (2)$$

using three cw single-frequency lasers. The first laser is the 852-nm trap laser, a diode laser which is typically left on

continuously. Using acousto-optic modulators we form the outputs of the second and third lasers into temporally overlapping pulses at an 80-Hz repetition rate. The second laser is a 1470-nm diode laser with a typical power of 20 mW. It is focused to a beam waist of $100 \mu\text{m}$. The third laser is a titanium:sapphire laser operating near 830 nm. It has a beam waist of $70 \mu\text{m}$, and it crosses the second laser at 67.5° , producing a $2 \times 10^{-3} \text{ mm}^3$ volume of Rydberg atoms. The second and third laser pulses have 300-ns durations. The inherent limitation of the linewidth of the final transition is imposed by the 54-ns lifetime of the Cs $7s$ state, the 1-MHz laser linewidth, and the Fourier transform of the pulse duration. Subsequent to its production by the laser pulses, the cold Rydberg gas is allowed to evolve for times from 450 ns to 50 μs . At a given evolution time we analyze the population with a field ionization pulse which rises to 500 V/cm in 450 ns, applied using two grids 1.57 cm apart. Any ions present are ejected from the MOT at the beginning of the field ionization pulse, the Rydberg atoms are ionized, and the resulting ions are ejected later. Both sets of ions strike a microchannel plate detector, producing time-resolved ion and Rydberg atom signals, which are registered with two gated integrators and stored in a computer. We note that the ion signal always contains contributions from any high-lying Rydberg states which are ionized at the beginning of the field ionization pulse.

The data are taken by scanning the frequency of the third laser while recording the ion and atom signals, with all other parameters held fixed. In Figs. 2(a) and 2(b) we show typical recordings of the ion and atom signals for the $40p_{3/2}$ and $43p_{3/2}$ states, respectively, for two different laser powers. The time delay between the end of the laser pulse and the field ionization pulse is 10 μs . We note the asymmetric shoulder on the red side of the line, due to the three-step excitation, where direct two- and three-photon excitations of process (2) can occur. Thus, depending on the precise tuning of the first and second lasers, the shape of the resonance observed by scanning the third laser changes in the wings. These changes, however, do not affect the center of the line. At low power—i.e. at low Rydberg density—we observe in both cases a small number of ions (7% of Rydberg atoms excited for $40p$ and 10% for $43p$). By density we mean the average density in the volume excited by the lasers. The relative and absolute uncertainties in the density are $\pm 5\%$ and $\pm 40\%$, respectively. When we increase the density, for $40p$ the number of ions is still small (9%), but for $43p$ we observe, at resonance, complete ionization of the Rydberg sample, the signature of the formation of a plasma. The differences between $n=40$ and $n=43$ in the frequency and magnitude of the ionic signals are due to the excitation of atoms to the attractive potential in the latter case, as suggested by Li *et al.* and Amthor *et al.* [15,20].

The maxima of spectral scans, at a fixed frequency, such as those shown in Fig. 2 for a range of densities, delay times, and quantum states give a more comprehensive picture. In Fig. 3 we show the density of ions versus density of Rydberg atoms initially excited, for 0.45, 5, and 10 μs delay times. The number of Rydberg atoms was varied by changing the intensity of the Ti:sapphire laser. We note that there is a significant number of ions present at a delay of 0.45 μs , and

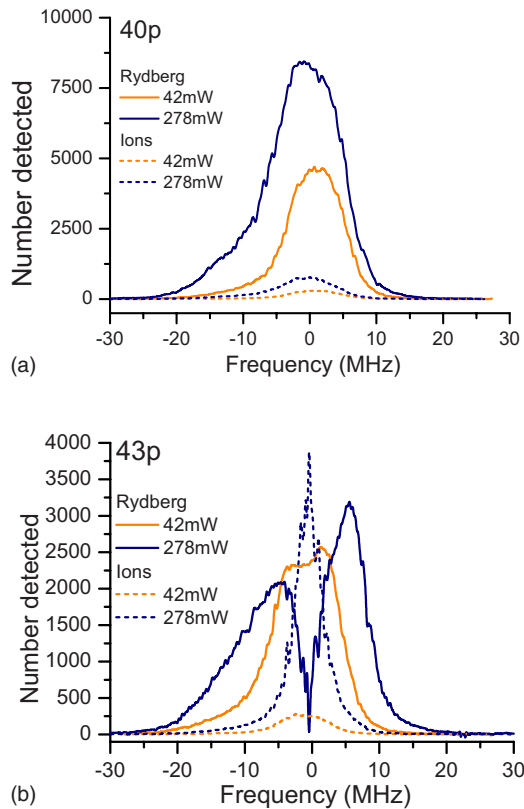


FIG. 2. (Color online) Rydberg and ion signal with two different laser powers (42 and 278 mW) for (a) $40p$ state (repulsive) and (b) $43p$ (attractive). Data are taken after a time delay of $10 \mu\text{s}$, between the end of the laser pulse and the field ionization pulse.

we believe they are formed during the 300-ns laser excitation. The central features of Fig. 3 are the following. With a $0.45\text{-}\mu\text{s}$ delay the ionization yields for all n states are essentially the same, but with 5- and $10\text{-}\mu\text{s}$ delays there is a clear difference between the $n < 42$ and $n > 42$ states. The only difference between these two cases is that the atoms are excited to a repulsive potential in the former case and an attractive one in the latter case. The appearance of ions on a $5\text{--}10\text{-}\mu\text{s}$ time scale is consistent with the time required for two atoms to move together along an attractive potential. Specifically, we find that two atoms excited to the $43p43p$ state with a separation of $5 \mu\text{m}$ collide and ionize in $6 \mu\text{s}$ [22]. For a Rydberg density of $25 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$, corresponding to 5000 Rydberg atoms in the trap, 10% of the atoms are this close together, so the difference between the $n < 42$ and $n > 42$ behaviors is evidently due to the dipole-dipole-induced collisions.

For the $10\text{-}\mu\text{s}$ delay the ion production, for $n > 42$, starts to become very nonlinear for an ion density of $2 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$ (~ 400 ions), which we attribute to the trapping of the electrons by the ions and the subsequent ionizing collisions of the electrons with the Rydberg atoms. For 5- and $10\text{-}\mu\text{s}$ delays, the $42p$ data points lie between the two sets of curves, corresponding to an excitation to both the repulsive and attractive potentials. While the difference between the attractive and repulsive curves of Fig. 3(c) is understood, the source of the ionization for the $n < 42$ states is less evident.

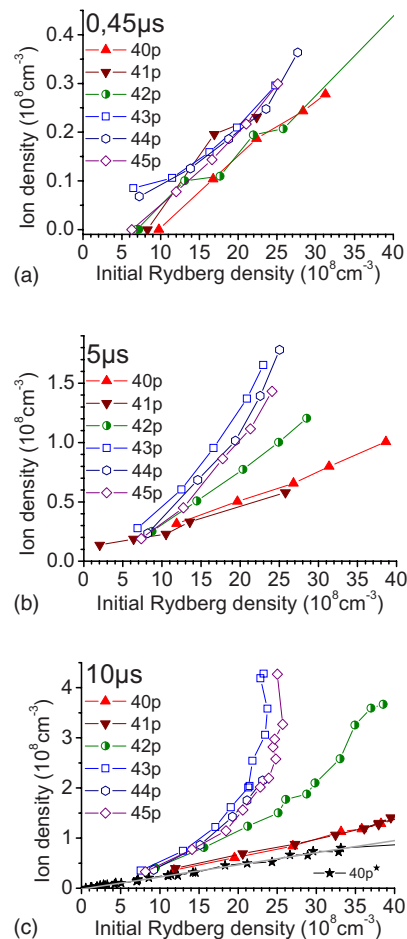


FIG. 3. (Color online) Ion density as function of initial Rydberg density for different n states and three delay times: (a) $0.45 \mu\text{s}$, (b) $5 \mu\text{s}$, and (c) $10 \mu\text{s}$. At $10 \mu\text{s}$ the “ $40p^*$ ” is without $6p$ cold and hot atoms. Each point corresponds to the maxima of spectral scans, such as those shown in Fig. 2.

We show two kinds of data for the repulsive case ($n < 42$). For the $40p$ and $41p$ data, $6p$ cold and hot atoms are present due to the trap lasers [11]. For the data labeled “ $40p^*$ ” the $6s\text{--}6p$ excitation is turned off at the same time as the second and third lasers are turned off, so there are no $6p$ atoms with which to interact. In the case of the $40p$ state with no $6p$ atoms, “ $40p^*$ ” data, we observe an apparently density independent ionization rate of 2400 s^{-1} . This linear rate also appears to be present in the $n > 42$ states at low density. Using a modification of the method of Hoogenraad and Noordam we have calculated the 300-K blackbody photoionization rate to be 800 s^{-1} [23]. As mentioned earlier, it is impossible to discriminate between photoions and high-lying Rydberg atoms using ramped field ionization, and this problem is most acute using ion, as opposed to electron, detection. We estimate that with our field pulse the ionization signal contains atoms from states as low as $n^* = 56$ when the field is set to ionize $40p$ atoms ($n^* = 36.5$). Here n^* is the effective quantum number. When the excitation to $n^* > 56$ states is taken into account, the calculated blackbody-induced ionization rate is 1250 s^{-1} , far less than the observed rate of 2400 s^{-1} .

It is useful to consider possible sources of the discrepancy between the calculated and observed ionization rates for $n < 42$. Our calculation of the blackbody photoionization rate may be in error, but we note that it agrees with the recently published value of Beterov *et al.* [24]. Our estimate of how low an n^* state might be included in the photoionization signal could be wrong, but we note that states as low as $n^*=46$ would have to be included to produce an apparent ionization rate of 2400 s^{-1} for the $40p$ state, which is highly unlikely with our current ramp field.

Real physical processes can lead to ions even if the atoms are excited to a repulsive potential. For example, blackbody transfer of population from the np states to the nearby ns and nd states produces ns - np and nd - np pairs, at a rate $\sim 6000 \text{ s}^{-1}$. Roughly half the pairs will be on attractive $1/R^3$ potentials and half on the repulsive potentials. Only 5% of those on attractive potentials can collisionally ionize on a $10\text{-}\mu\text{s}$ time scale, corresponding to a rate of ion formation of 150 s^{-1} , which is not fast enough to explain our observations. This rate could be increased by superradiance, which would quickly, on a $1\text{-}\mu\text{s}$ time scale, transfer some of the population from the np to the nearby ns and nd states. Rapid population decay in cold Rydberg gases has recently been reported and attributed to superradiance [16,25]. In this connection we note that, for some conditions (medium density), the Cs $40p$ state exhibits a rapid initial decay, with a $\sim 10\text{-}\mu\text{s}$

decay time, far faster than the 300-K $40p$ lifetime of $47 \mu\text{s}$. Under the conditions of this experiment the presence of the dipolar and ionic dephasing would probably limit superradiance. Finally, the presence of ions is important [7], and the following process, not considered up to now, could play a role. Rydberg atoms which are in a high-field-seeking state, such as $40p$, can be attracted to and collide with ions to produce more ions. In addition, stray fields from ions or other sources shift the pp pairs closer to resonance with ss' pair, which could contribute to an increased ionization rate, as noted by Schwettmann *et al.* [26]. We note that for the low-field-seeking $39d$ state, the ionization rate, 1000 s^{-1} , is close to the calculated blackbody photoionization [27]. However, all such processes should be nonlinear in the number of Rydberg atoms excited, so the observed apparently linear rapid ionization of the $n < 42$ states remains a puzzle.

In summary, the measurements reported here demonstrate clearly that excitation to an attractive, as opposed to a repulsive, potential dramatically increases the initial ionization rate due to dipole-dipole-induced collisions. These measurements underscore the notion that the dipole-dipole interaction is the dominant feature of the cold Rydberg gas.

The authors acknowledge fruitful discussions with Vladimir Akulin. This work is in the frame of "Institut Francilien de Recherche sur les Atomes Froids" (IFRAF).

-
- [1] I. Mourachko *et al.*, Phys. Rev. Lett. **80**, 253 (1998).
 [2] W. R. Anderson, J. R. Veale, and T. F. Gallagher, Phys. Rev. Lett. **80**, 249 (1998).
 [3] A. Fioretti, D. Comparat, C. Drag, T. F. Gallagher, and P. Pillet, Phys. Rev. Lett. **82**, 1839 (1999).
 [4] D. Jaksch *et al.*, Phys. Rev. Lett. **85**, 2208 (2000).
 [5] M. D. Lukin *et al.*, Phys. Rev. Lett. **87**, 037901 (2001).
 [6] D. Tong *et al.*, Phys. Rev. Lett. **93**, 063001 (2004).
 [7] T. Vogt *et al.*, Phys. Rev. Lett. **99**, 073002 (2007).
 [8] J. S. Frasier, V. Celli, and T. Blum, Phys. Rev. A **59**, 4358 (1999).
 [9] W. M. Akulin *et al.*, Physica D **131**, 125 (1999).
 [10] T. Vogt *et al.*, Phys. Rev. Lett. **97**, 083003 (2006).
 [11] M. P. Robinson, B. Laburthe Tolra, M. W. Noel, T. F. Gallagher, and P. Pillet, Phys. Rev. Lett. **85**, 4466 (2000).
 [12] T. C. Killian *et al.*, Phys. Rev. Lett. **83**, 4776 (1999).
 [13] T. C. Killian *et al.*, Phys. Rep. **449**, 77 (2007).
 [14] A. Walz-Flannigan, J. R. Guest, J. H. Choi, and G. Raithel, Phys. Rev. A **69**, 063405 (2004).
 [15] T. Amthor, M. Reetz-Lamour, S. Westermann, J. Denskat, and M. Weidemuller, Phys. Rev. Lett. **98**, 023004 (2007).
 [16] J. O. Day, E. Brekke, and T. G. Walker, Phys. Rev. A **77**, 052712 (2008).
 [17] A. Reinhard, T. Cubel Liebisch, K. C. Younge, P. R. Berman, and G. Raithel, Phys. Rev. Lett. **100**, 123007 (2008).
 [18] W. Li *et al.*, Phys. Rev. A **70**, 042713 (2004).
 [19] P. J. Tanner, J. Han, E. S. Shuman, and T. F. Gallagher, Phys. Rev. Lett. **100**, 043002 (2008).
 [20] W. Li, P. J. Tanner, and T. F. Gallagher, Phys. Rev. Lett. **94**, 173001 (2005).
 [21] K. R. Overstreet, A. Schwettmann, J. Tallant, and J. P. Shaffer, Phys. Rev. A **76**, 011403(R) (2007).
 [22] F. Robicheaux, J. Phys. B **38**, S333 (2005).
 [23] J. H. Hoogenraad and L. D. Noordam, Phys. Rev. A **57**, 4533 (1998).
 [24] I. I. Beterov *et al.*, e-print arXiv:0807.2535v3.
 [25] T. Wang *et al.*, Phys. Rev. A **75**, 033802 (2007).
 [26] A. Schwettmann, J. Crawford, K. R. Overstreet, and J. P. Shaffer, Phys. Rev. A **74**, 020701(R) (2006).
 [27] B. Laburthe-Tolra, Ph.D. thesis, Univ Paris-Sud XI, 2001.

Chapitre 5

Production de molécules ultra-froides

5.1 Introduction

Depuis presque 30 ans la physique des atomes refroidis par laser a permis des avancées dans le domaine tels que les horloges atomiques, les condensats de Bose-Einstein, les gaz dégénérés de Fermi ainsi que les collisions ultra-froides. Ces dix dernières années le domaine de recherche des atomes froids s'est enrichi de l'étude des molécules froides. L'obtention de molécules froides dans leur état fondamental de vibration et de rotation est entre autre motivée par les perspectives envisagées pour la spectroscopie, l'étude de possible variation de constantes fondamentales, le contrôle des collisions ultra-froides ainsi que l'étude de systèmes dipolaires, par exemple dans des réseaux optiques pour l'information quantique.

La production de molécules froides suit généralement l'une des deux voies suivantes : partir de molécules 'chaudes' et les refroidir, ou bien partir d'atomes froids puis les assembler en molécules.

Parmi les exemples (non exhaustif) partant de molécules 'chaudes' translationnellement on peut notamment citer les expériences de refroidissement par collisions avec un gaz tampon d'hélium 3 froid obtenu par cryogénie [Weinstein et al., 1998] qui ont permis le piégeage de CaH. L'utilisation de gradients de champ électrique dépendant du temps dans les ralentisseurs de type Stark [Bethlem et al., 1999] permet de créer une colline de potentiel le long de la trajectoire du jet moléculaire et a notamment permis de ralentir et piéger OH. D'autres techniques sont possible comme le refroidissement 'mécanique' [Gupta and Herschbach, 1999], ou encore la sélection en vitesse de molécules polaires dans un guide électrostatique courbe (ND_3) [Rangwala et al., 2003]. La plupart de ces techniques permettent d'atteindre des températures de l'ordre du sub Kelvin au milli-Kelvin.

Jusqu'à présent les molécules dites ultra-froides, c'est à dire dans le domaine du micro ou nano Kelvin n'ont été produites qu'à partir d'atomes froids. Deux méthodes sont couramment employées pour former des molécules froides à partir d'atomes froids. A partir d'un gaz quasi-dégénéré, il est possible d'amener à résonance le potentiel associé à l'onde de diffusion atomique avec un niveaux lié du potentiel moléculaire

en appliquant une rampe de champ magnétique [Donley et al., 2002]. Les molécules ainsi formées par passage adiabatique ont la même température que les atomes et peuplent les derniers états vibrationnels du potentiel moléculaire (cette technique s'appelle magnéto-association Feshbach). Notons toutefois que les résonances de Feshbach ne sont pas toujours accessibles expérimentalement. Enfin, en partant d'un gaz thermique il est possible d'utiliser un processus de collision assisté par un photon appelé photoassociation [Fioretti et al., 1998a]. Nous utilisons cette technique de formation de molécules froides dans nos expériences.

Les difficultés pour transposer le refroidissement laser des atomes vers les molécules sont notamment liées à l'absence de schémas isolés et fermés dans les systèmes moléculaires. Depuis la première mise en évidence de la formation de molécules froides stables, des solutions ont été proposées pour transposer les techniques de refroidissement laser d'atomes vers les systèmes moléculaires. Dans ce chapitre nous développons le travail que nous avons effectué pour obtenir des molécules froides de Cs_2 dans l'état électronique fondamental et l'état vibrationnel fondamental $v=0$.

5.1.1 Formation de molécules froides par photoassociation

5.1.1.1 Remarques générales

Le principe de la photoassociation d'atomes froids est de réaliser une collision assistée par la lumière entre deux atomes d'un nuage thermique vers un état moléculaire excité. L'énergie du photon soit être égal à la différence d'énergie entre l'état fondamental et l'état lié d'un potentiel excité. Les molécules peuvent alors se desexciter et se dissocier en deux atomes ou bien se desexciter vers un état lié d'un potentiel fondamental. Les molécules formées sont dans un état stable, le plus souvent à grande distance, favorisant ainsi le peuplement de niveaux peu lié. Comme on peut le voir sur la figure 5.1, lorsqu'on photoassocie vers un potentiel ne présentant pas de particularités, l'amplitude de probabilité des noyaux au point tournant interne est faible (figure 5.1 (a)). Le recouvrement de la fonctions d'onde excitée et de celle du fondamental est faible d'où la difficulté de former des molécules fortement liée.

Plusieurs possibilités peuvent permettre d'améliorer la production de molécules froides stabilisées dans l'état fondamental, comme partir d'un échantillon d'atomes froids le plus dense possible pour compenser le taux de formation faible. Une autre possibilité est d'augmenter la probabilité de présence à courte distance pour améliorer le recouvrement des fonctions d'ondes excitée et fondamentale. Une possibilité pour contourner ce problème est offerte par les couplages entre différentes courbes de potentiels qui va alors permettre la formation de potentiels plus complexes que le simple puits précédemment décrit (figure 5.1 (b) et (c)). Dans le cas d'un double puits comme pour le cas particulier de l'état $0_g^-(6s + 6p_{3/2})$ de la molécule de Cs_2 , la fonction d'onde est plus importante autour de l'extremum de potentiel entre les deux puits favorisant un meilleur recouvrement des fonctions d'ondes excitée et fondamentale et ainsi la formation de molécules liées.

Pour les molécules diatomiques, les potentiels moléculaires vont suivre à grande dis-

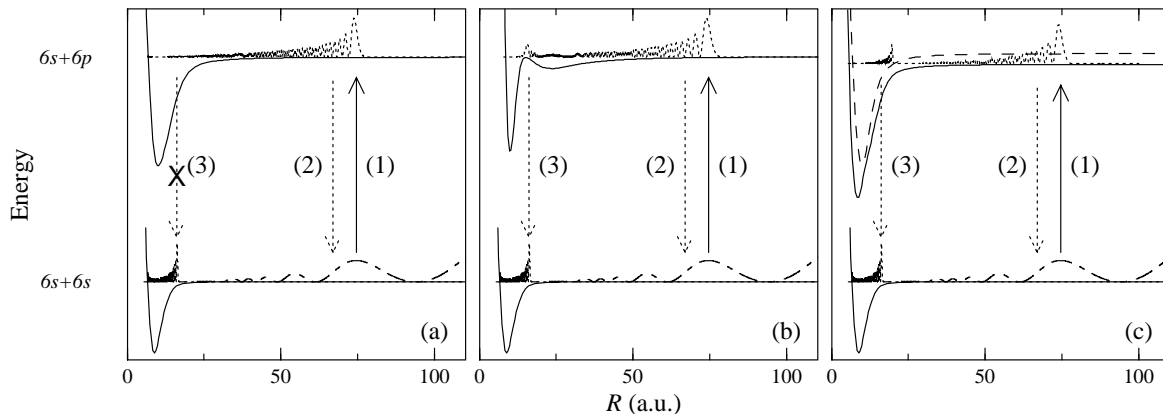


FIGURE 5.1 – (1) Photoassociation à grande distance depuis l'état $6s+6s$ vers un état excité. (2) Les molécules se déséxcitent dans le continuum en deux atomes. (3) La désexcitation spontanée vers un état lié du fondamental est généralement faible (a) et nécessite l'augmentation de la fonction d'onde de l'état excité à courte distance. Cet effet est possible via les couplages entre potentiels de type double puits (b) ou résonant (c).

tance les propriétés déjà évoquées dans le premier chapitre lors de l'étude de l'interaction dipolaire entre atomes. Les figures présentes dans le premier chapitre peuvent également servir de support pour l'étude de la partie asymptotique des potentiels moléculaires. En effet les potentiels vont dépendre des interactions multipolaires entre atomes. A grande distance, c'est à dire à plusieurs centaines d'unités atomiques (a_0) seuls les termes les plus bas du développement multipolaire $V(R) = D - \sum_n \frac{C_n}{R^n}$ vont intervenir, où D est l'énergie de dissociation. Lorsqu'on exclu les interactions avec des particules chargées, le premier terme est de type dipôle-dipôle induit ou résonant soit des termes en C_6/R^6 ou C_3/R^3 respectivement. Dans l'état fondamental, en l'absence de champ électrique permettant d'induire un moment dipolaire permanent aux atomes, ceux-ci interagissent au deuxième ordre en C_6/R^6 et l'interaction est uniquement attractive. En ne prenant en compte que le premier potentiel excité, l'interaction est proportionnelle à $-\frac{(\mu_1\mu_2)^2}{\Delta R^6}$, où μ_i est le dipôle de transition associé à l'atome i et Δ est l'énergie de la transition fondamental-excité.

Dans le cas de deux atomes identiques (cas homonucléaire), l'excitation de l'un des deux atomes vers un potentiel excité dont l'état d'énergie est dégénéré conduit au cas dipôle-dipôle résonant en C_3/R^3 , qui est proportionnel à $\frac{\mu_1\mu_2}{R^3}$. Dans le cas de deux atomes différents (cas hétéronucléaire), en dehors de possible coïncidences en énergie de type Förster, le niveau d'énergie de la paire d'atome est non dégénéré et conduit à un potentiel d'interaction en C_6/R^6 , qui peut être attractif ou répulsif en fonction de l'atome excité. Il se peut toutefois que la différence d'énergie Δ entre paires dégénérées soit suffisamment faible pour que, toujours dans la partie asymptotique, il y ait une distance à partir de laquelle l'interaction deviennent plus importante que Δ , ce qui conduit à un cas en C_3/R^3 .

Nous comprenons alors qu'il existe une différence dans la forme asymptotique du potentiel entre paires d'atomes homonucléaire et hétéronucléaire. Les probabilités de

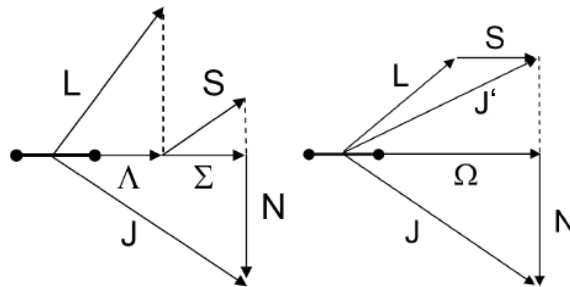


FIGURE 5.2 – Couplage des moments angulaires d’une molécule diatomique. A gauche cas a selon Hund, à droite cas c selon Hund.

présence associées aux niveaux liés vont donc être plus faibles à grande distance pour les paires d’atomes hétéronucléaires (à distance constante). En revanche le recouvrement entre états liés excité et fondamental, une fois la photoassociation faite, est meilleur dans le cas hétéronucléaire puisque les potentiels sont tous contenus à petite distance du fait de leur dépendance asymptotique en C_6/R^6 .

Dans le cas homonucléaire du fait du caractère en C_3/R^3 du potentiel, le recouvrement (au carré) de ces fonctions d’ondes est meilleur à grande distance et l’excitation sera suivi d’une désexcitation à grande distance, généralement vers un état dissociatif ou vers un état très faiblement lié.

5.1.1.2 Niveaux moléculaires

Les molécules diatomiques possèdent des niveaux électronique, vibrationnels et rotationnels. La description de molécules diatomiques est donnée dans plusieurs ouvrages dont [Landau and Lifchitz, 1988], [Hertzberg, 1944], [Atkins and Friedman, 2004] et j’ai bénéficié des thèses expérimentales réalisées au Laboratoire Aimé Cotton. De nombreux calculs, détails et références sont donnés dans la thèse de Daniel Comparat [Comparat, 1999], ainsi que dans [Drag, 2000], [Vanhaecke, 2003], [Jelassi, 2007], et celle de [Viteau, 2008]. Nous introduisons ici les notations utilisées pour nommer les états moléculaires.

Le choix des nombres quantiques utilisés pour nommer les états moléculaires dépend du couplage de différents moments angulaires. Au moins trois sources de moment angulaire existe dans une molécule diatomique (auquel il faut ajouter le moment nucléaire, que nous omettons ici et qui est responsable de la structure hyperfine) : le spin électronique, le moment orbital et la rotation autour de l’axe internucléaire. La classification des différents cas de couplage est faite selon F. Hund, voir [Hertzberg, 1944] ou [Atkins and Friedman, 2004].

Lorsque le moment orbital total \vec{L} est fortement couplé à l’axe internucléaire, sa projection sur l’axe internucléaire donne le nombre quantique Λ qui prend les valeurs $|\Lambda|=0, 1, 2, \dots$ ce qui amène à des états notés $\Sigma, \Pi, \Delta, \dots$. Dans le cas où $\Lambda \geq 1$ le champ magnétique crée par la rotation des électrons fait précesser les spins autour de l’axe internucléaire. La projection du spin électronique total \vec{S} notée Σ prend les valeurs

$\Sigma = -S, -S+1, \dots, S$. Les nombres quantiques Λ et Σ se composent pour former le moment électronique total $\Omega = \Lambda + \Sigma$. La notation décrivant ce premier cas (cas a selon Hund) est alors $^{2S+1}|\Lambda|_{u/g, |\Lambda+\Sigma|}^{\pm}$. \pm indique la parité de la fonction d'onde par symétrie par rapport à un plan perpendiculaire à l'axe internucléaire et (u/g) la parité de la fonction d'onde par échange de noyaux (symétrie centrale), qui n'existe que dans le cas homonucléaire.

Le moment de rotation des noyaux autour de l'axe internucléaire \vec{N} se couple finalement à Ω pour former le moment angulaire total $\vec{J} = \vec{L} + \vec{S} + \vec{N}$ qui prend les valeurs $J = \Omega, \Omega + 1, \dots$. Dans le cas où le couplage spin-orbite est très faible mais que le moment orbital est toujours couplé à l'axe internucléaire (e.g. $\Lambda=0$) on ne considère \vec{S} qu'après couplage de Λ avec \vec{N} (cas b selon Hund).

Une lettre précédant la notation que l'on vient de donner indique l'état électronique : X pour l'état fondamental ; A, B, C, ..., pour des états non accessibles à partir de l'état fondamental (en allant vers des énergies croissantes) (cette règle est généralement vraie, mais une erreur d'interprétation a conduit à un contre exemple dans le cas de l'azote moléculaire N_2 , le fondamental X est singulet mais le A est triplet) ; a, b, c pour des états accessibles à partir de l'état fondamental (en allant vers des énergies croissantes).

Lorsqu'à grande distance le couplage spin-orbite est plus important que le couplage avec l'axe internucléaire, l'addition de $\Sigma + \Lambda$ est ensuite projeté sur l'axe internucléaire pour former Ω (qui reste un bon nombre quantique). Ces états sont notés $|\Omega|_{u/g}^{\pm}$ et $|\Omega|$ prend les valeurs 0, 1, 2, ... (cas c selon Hund).¹

Nous verrons par la suite que nous avons utilisés les notations des cas a et c selon Hund.

Pour finir, indiquons seulement que pour les transitions moléculaires entre les états ν et ν' , le coefficient d'Einstein d'émission spontanée $A_{\nu, \nu'}$ est proportionnel au rapport du facteur de Franck-Condon $FC_{\nu, \nu'}$ (recouvrement au carré des fonctions d'ondes) au cube de la longueur d'onde λ ,

$$A_{\nu, \nu'} \propto \frac{FC_{\nu, \nu'}}{\lambda_{\nu, \nu'}^3} \quad (5.1)$$

5.1.1.3 Montage expérimental

Les dimères de césium sont formés par photoassociation dans le piège magnéto-optique. Le laser de photoassociation est un titane-saphir continu (Coherent), de puissance maximale de 2W, et de largeur spectrale de l'ordre du MHz, qui nous servait de troisième étage d'excitation dans les expériences avec des atomes de Rydberg décrites précédemment. Le piège magnéto-optique à n rayon gaussien à $1/\sqrt{e}$ de $300\mu m$ et le laser Ti:Sa est focalisé sur une taille de $200\mu m$ dans l'enceinte à vide au travers d'une lentille de focale 300mm. Le signal de photoassociation sature au delà de $300W/cm^2$. Le schéma global est donné sur la figure 5.3.

1. Le cas d selon Hund est appliqué dans le cas où le couplage à l'axe internucléaire est négligeable et où finalement l'électron est très peu affecté par la molécule diatomique (e.g. niveaux de Rydberg).

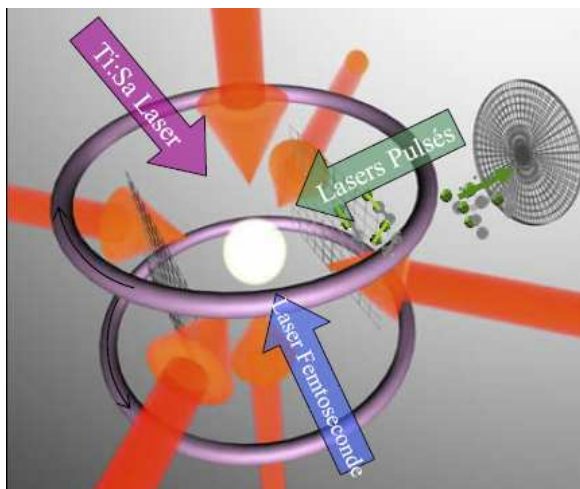


FIGURE 5.3 – Schéma du dispositif expérimental.

Certaines des molécules formées autour d'une limite de dissociation sont stabilisées par émission spontanée et se retrouvent dans des états liés du potentiel triplet ou singulet à la limite $6s+6s$. La détection est alors faite par un processus d'ionisation REMPI (Resonance Enhanced Multi-Photon Ionization). Les molécules formées sont ionisées en Cs_2^+ par deux photons d'un laser à colorant pulsé LDS722 (13500cm^{-1} - 14500cm^{-1}) pour la détection de molécules dans l'état triplet, DCM (14500cm^{-1} - 16500cm^{-1}) ou LDS751 (12500cm^{-1} - 14000cm^{-1}) pour une détection des molécules dans l'état singulet en passant par des états moléculaires de potentiels excités dont la signature est visible sur les spectres de photoionisation. Les schémas REMPI employés sont indiqués sur la figure 5.4.

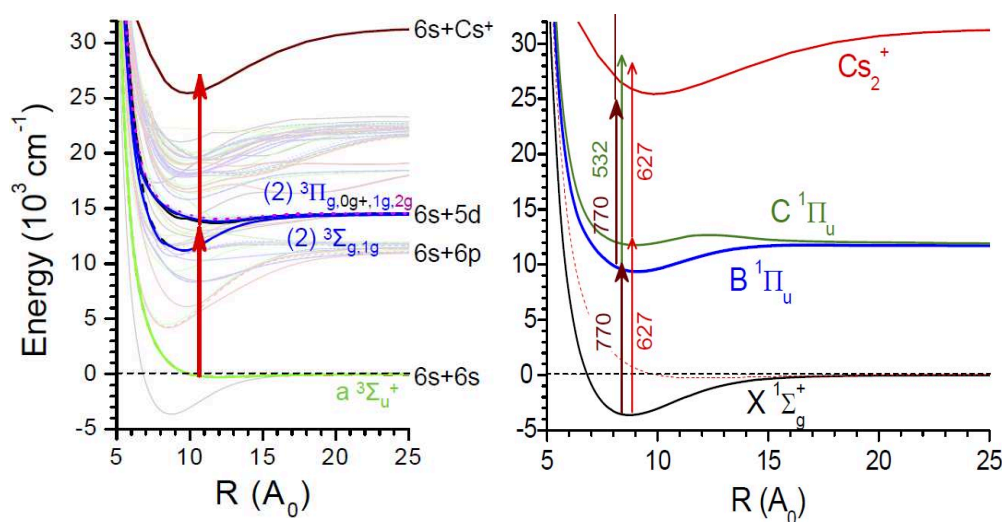


FIGURE 5.4 – Schéma indiquant trois voies d'ionisation par REMPI, pour les molécules du triplet à gauche, pour les molécules du singulet à droite en passant par l'état B ou l'état C.

Les lasers à colorants pulsés permettent l'ionisation des molécules et sont chacun

pompés par un laser Nd :Yag doublé en fréquence (1064nm→532nm, durée des impulsions 7ns, 300mJ/impulsion à 532nm, cadence 10Hz). Le faisceau laser est envoyé dans la cavité du laser à colorant (DCM ou LDS722) lequel fournit des impulsions de plusieurs mJ. Les deux lasers pulsés arrivent par le même hublot après avoir été focalisés sous le piège magnéto-optique par deux lentilles séparées. Ils peuvent être utilisés simultanément et leur synchronisation aux autres lasers et leurs délais relatifs sont gérés par des boîtes à retard (Stanford) cadencées par une carte numérique (ViewPoint DIO64, 40MHz) et un programme informatique.

Les ions atomiques Cs^+ et moléculaires Cs_2^+ sont accélérés par application d'un champ électrique entre des grilles de part et d'autre du nuage froid vers les galettes de micro-canaux (Hamamatsu) et séparés par temps de vol dans l'axe du détecteur. Les données sont transmises vers un oscilloscope numérique qui intègre le signal arrivant des galettes après amplification. Les positions de Cs^+ et de Cs_2^+ après le temps de vol, sont séparées temporellement par un facteur $\sqrt{2}$.

Les ions atomiques formés lors de l'impulsion du laser à colorant sont assez nombreux pour saturer le signal des galettes et l'amplificateur. Le signal d'ions moléculaires est alors modifié car il se forme un signal indiquant une dépolarisation du détecteur ou un rebond dans le dispositif électronique. Afin de limiter l'exposition des galettes de micro-canaux au flux d'ions atomiques et ainsi d'améliorer le signal à intégrer nous poussons les ions dans le sens opposé au détecteur par une impulsion de champ électrique. Les ions moléculaires ont plus d'inertie que les ions atomiques qui quittent alors la zone où le champ est appliqué. Une seconde impulsion accélère les ions atomiques (moins nombreux) et moléculaires restant vers le détecteur.

Une autre source de saturation de la détection apparaît quelques centaines de nanosecondes après une impulsion du laser à colorant. Elle est dépendante de la puissance du laser et semble indiquer la présence d'atomes très légers qui sont désorbés de la surface puis viennent frapper les galettes. Pour éviter ces signaux parasites nous avons développé un commutateur haute tension rapide (de l'ordre quelques microsecondes) capable d'activer la tension aux bornes des galettes de micro-canaux dans une fenêtre temporelle comprise entre l'arrivée de Cs^+ et de Cs_2^+ . Le montage est indiqué en annexe. La principale limitation venait de l'impédance des câbles et des galettes. Nous avons par la suite utilisé un commutateur commercial (de marque Behlke).

5.2 Détection large bande d'états moléculaires

Contexte

Plusieurs techniques ont été envisagées afin de former des molécules froides dans l'état fondamental à partir de photoassociation. Nous indiquons pour information quelques publications (liste non exhaustive) sur la détection de molécules froides dans l'état de vibration $v=0$ faites avant cette thèse. Parmi les schémas de photoassociation suivis d'une désexcitation spontanée il y a la formation de K_2 à deux photons ($v=0$) [Nikolov et al., 1999]. Un schéma de photoassociation suivi d'une stimulation Raman a été utilisé pour

RbCs ($v=0$) dans [Sage et al., 2005]. Dans ces 2 cas le nombre de molécules formées dans l'état $v=0$ est de l'ordre de quelques centaines par seconde.

Nous avons produit des molécules froides de Cs_2 dans l'état fondamental $X^1\Sigma_g^+$ $v=0$ au début de l'année 2008 à un taux de l'ordre de 10^6 par seconde [Viteau et al., 2008a].

Cette publication a été suivie de publications d'autres groupes avec des méthodes ou des molécules différentes indiquant la formation de molécules dans l'état fondamental.

Un schéma de photoassociation suivi d'une desexcitation spontanée a permis la formation du dimère d'alcalins le plus polaire LiCs ($v=0, J=0$) [Deiglmayr et al., 2008].

La méthode consistant à partir d'un gaz quasi dégénéré suivi de la formation de molécules de Feshbach et d'une succession d'impulsions cohérentes (lasers dont la phase est fixée par une mesure de battement sur un peigne de fréquence femtoseconde) et temporellement contre intuitive (STIRAP) est techniquement complexe mais a récemment permis de démontrer la formation de Cs_2 [Danzl et al., 2008] ($v=0, J=72$, singulet), Rb_2 [Lang et al., 2008] ($v=0, J=0$, triplet) et enfin de KRb [Ni et al., 2008] ($v=0, J=0$ singlet et triplet) suivi d'une mesure du moment dipolaire de cette molécule.

Notre étude porte sur la formation de molécules de Cs_2 à partir d'un gaz froid thermique comme nous l'avons déjà mentionné. Nous souhaitons trouver un mécanisme de photoassociation dont la désexcitation spontanée conduise à la formation de molécule dans les états vibrationnels les plus liés du potentiel singulet. Les difficultés sont de détecter les molécules dans ces états profonds sans connaître exactement les niveaux peuplés. La perspective de balayer la détection sur l'ensemble des états vibrationnels du potentiel $X^1\Sigma_g^+$ pour chaque essai de photoassociation est quasiment sans fin.

Nous avons choisi de focaliser notre approche sur la détection de telle sorte que tous les schémas de formation de molécules froides que nous souhaiterions utiliser permettent une détection de molécules dans plusieurs niveaux vibrationnels à la fois. La largeur spectrale des lasers à colorant pulsés utilisés pour la détection ne permet pas de détecter plus d'un niveau vibrationnel de l'état fondamental $X^1\Sigma_g^+$ à la fois. Le balayage de la longueur d'onde de ces lasers est donc nécessaire car nous ne connaissons pas le schéma exact de formation de molécules qui nous permettrait de positionner la fréquence de détection sur un état vibrationnel en particulier.

Nous avons donc modifié la largeur d'un des laser pulsé de détection en changeant un des réseaux de la cavité de l'oscillateur par un ensemble constitué d'un prisme et d'un miroir. La taille du faisceau réfléchi sur le miroir de fond de cavité est plus petite que dans le mode d'utilisation conventionnel du laser et ainsi une plus grande plage spectrale est sélectionnée par la cavité. Le laser est élargi spectralement et passe de 0.2cm^{-1} à 25cm^{-1} . Nous disposons ainsi d'un moyen de détecter les états vibrationnels de l'état fondamental de $v=0$ à $v=75$ via une détection REMPI résonante avec le potentiel excité B, voir la figure 5.4. Notons que la largeur spectrale du laser est suffisante pour couvrir l'intervalle séparant les états les plus séparés en énergie du X et du B. Les caractéristiques de ce système sont représentées sur la figure 5.5.

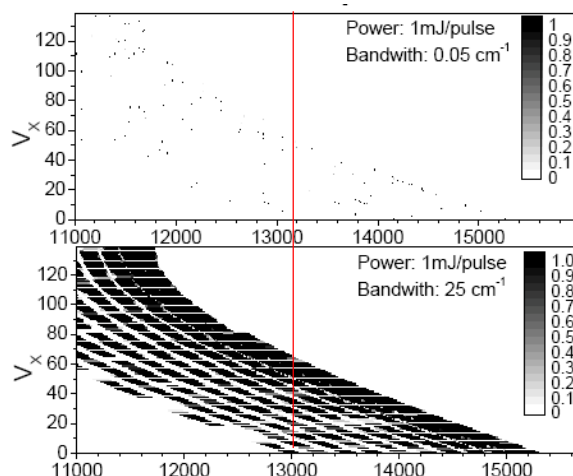


FIGURE 5.5 – Probabilité de détection des niveaux vibrationnels dans le potentiel X en passant par l'état B. Le calcul est fait avec une largeur spectrale est de 0.05cm^{-1} (haut). L'ionisation sélective permet alors la détection d'un niveau vibrationnel à la fois. Lorsque le laser pulsé est modifié, sa largeur spectrale est de 25cm^{-1} . L'ionisation large bande permet une détection de plusieurs niveaux vibrationnel à la fois (bas). La ligne rouge montre qu'à 13000cm^{-1} la détection large bande permet de détecter presque tous les niveaux inférieurs à $v_X=75$. Voir [Viteau, 2008] pour le calcul.

5.2.1 Détection de nouvelles raies de photoassociation

A l'aide du nouvel outil qu'est la détection large bande nous entreprenons de sonder la formation de molécules froides dans l'état singulet, dont les états vibrationnels sont $v_X \leq 75$, sous la limite $6s + 6p_{3/2}^{2,3}$.

Nous avons balayé une zone de quelques cm^{-1} sous la limite $6s + 6p_{3/2}$ avec le laser de photoassociation en gardant la détection large bande fixe à 13270cm^{-1} . Nous avons alors obtenons plusieurs raies moléculaires que nous avons comparé à la détection connue de molécules dans l'état triplet. Nous nous attendons à ce que les nouvelles raies proviennent de niveaux vibrationnels du singulet inférieure à $v_X=75$. Le résultat est présenté figure 5.6. Pour obtenir le spectre de détection large bande nous utilisons une astuce nous permettant de nettoyer le signal. En effet nous disposons de deux lasers pulsés indépendant. L'un d'eux est utilisé en détection large bande via l'état B, le second est quant à lui utilisé en détection conventionnelle sélective du triplet via les états $a^3\Pi_u$ à l'asymptote $6s + 5d_{5/2,3/2}$, indiqué sur la figure 5.4. Les photons du laser de détection du triplet arrivent sur les molécules après la séquence de photoassociation et contribue à enlever tous les états connus du triplet 500ns avant l'arrivée des photons de la détection large bande. Nous avons ainsi un spectre plus facile à lire.

De nombreuses raies sont nouvelles et ne sont pas présentes dans le spectre connu associé aux molécules dans l'état triplet, comme on peut le voir sur la figure 5.6. Afin de

2. La détection est ensuite faite par REMPI à 3 photons ($\text{LDS751}, 13270\text{cm}^{-1}$) ou 2 photons ($13270\text{cm}^{-1} + \text{laser de pompe } 17800\text{cm}^{-1}$).

3. Nous photoassocions généralement les niveaux proches de cette limite dans le pour en étudier les molécules qui se déséxcitent vers l'état $a^3\Sigma_u$ et nous en avons fait la spectroscopie (voir [Viteau, 2008]).

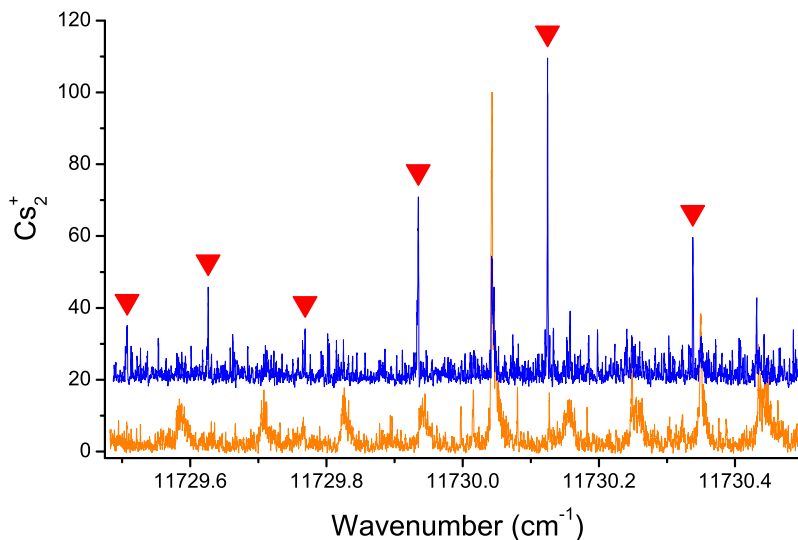


FIGURE 5.6 – Spectre d’ions moléculaires Cs_2^+ enregistré après avoir balayé le laser de photoassociation sous la limite de dissociation $6s + 6p_{3/2}$, en utilisant le schéma de détection large bande des molécules de Cs_2 . Le spectre orange obtenu par le schéma de détection conventionnel sélectif [Fioretti et al., 1998b] est également représenté pour comparaison avec un décalage de 20 ions pour plus de lisibilité.

déterminer les niveaux vibrationnels des molécules qui sont à l’origine des nouvelles raies de photoassociation, nous repassons le laser de détection large bande en mode sélectif (conventionnel). Pour cela nous photoassocions sur la raie la plus intense obtenue, à $11730.1245 \text{ cm}^{-1}$. Nous utilisons à présent le DCM comme colorant afin d’utiliser la détection REMPI des molécules du X via le potentiel C. La spectroscopie X-C est connue et nous sert de référence, voir [Raab et al., 1982].

Les nouvelles raies détectées (voir la figure 5.6) correspondent à des molécules formées dans l’état X comme nous le montre le spectre d’ionisation de la figure 5.7 sur lequel est également reporté la position des raies de transition connues entre l’état X et l’état C. L’ensemble des niveaux vibrationnels détectés sont compris entre $v_X=1$ et $v_X=10$ (avec quelques niveaux probablement au dessus de $v_X=30$, non visible sur la figure 5.7). Nous reviendrons sur le mécanisme de photoassociation pouvant conduire à la formation de ces molécules froides à la fin de ce chapitre. Comme nous l’avons déjà noté, nous souhaitons former des molécules dans l’unique état $v_X=0$. La méthode employée pour ‘refroidir’ la distribution vibrationnelle est décrite à la section suivante.

5.3 Pompage optique, refroidissement vibrationnel par un laser façonné en fréquence

Comme nous l’avons montré dans la section précédente, nous formons une distribution d’états moléculaires dans l’état $X^1\Sigma_g^+$. L’idée que nous avons suivie pour transférer les molécules des états vibrationnels excités vers $v_X=0$ est d’exciter les molécules formées par photoassociation vers un potentiel moléculaire qui permet la désexcitation spontanée vers un état vibrationnel plus lié. Nous allons pour cela utiliser un laser de

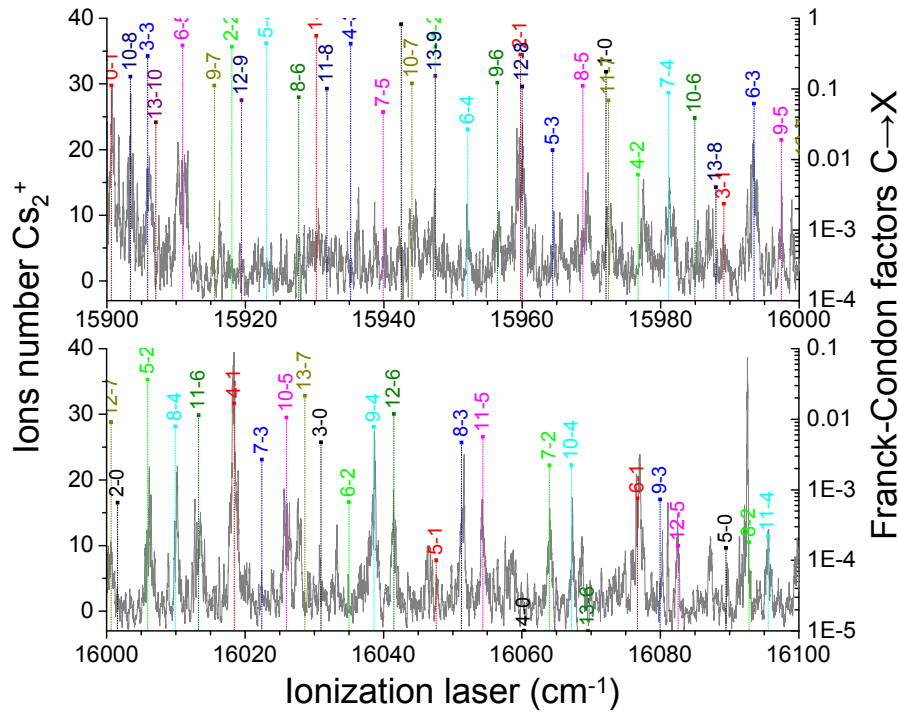


FIGURE 5.7 – Signal d’ions moléculaires Cs_2^+ enregistré après avoir balayé les fréquences du laser d’ionisation pulsé. La position des résonances et des facteurs de Franck-Condon sont indiqués pour les transitions vibrationnelles entre les niveaux v_X de l’état X et les niveaux v_C de l’état C. Le laser de photoassociation est positionné à $11730.1245 \text{ cm}^{-1}$.

grande largeur spectrale pour que le pompage optique soit possible sur le plus grand nombre d’états vibrationnels qui sont peuplés par photoassociation. Nous cherchons à refroidir l’état de vibration des molécules formés dans l’état fondamental, c’est à dire à réduire la distribution vibrationnelle, en réalisant un pompage optique. Nous ne nous intéresserons ici qu’à la vibration car la résolution du laser pulsé de détection n’est pas suffisante pour résoudre la structure rotationnelle. Ce travail a été publié dans [Viteau et al., 2008].

5.3.1 Effet d’un laser spectralement large

Un laser de grande largeur spectrale et compatible avec les transitions auxquelles nous nous intéressons est un laser Ti:Sa femtoseconde. Nous disposons de largeur de plusieurs dizaines de cm^{-1} avec des puissances moyennes de plusieurs dizaines à quelques centaines de mW. Deux études ont été faites par [Brown et al., 2006] et [Salzmann et al., 2006] montrant l’effet d’un laser femtoseconde sur des molécules froides, dans le but initial de montrer un signal de photoassociation femtoseconde. Elles indiquent toutes les deux une diminution du signal moléculaire sans en préciser la raison. Notre première étude fut donc d’appliquer un laser femtoseconde à différentes longueurs d’ondes sur des molécules froides. Les molécules sont photoassociées par le laser Ti:Sa sur un état connu puis nous appliquons le laser femtoseconde et enfin un laser pulsé à colorant est utilisé pour ioniser les molécules.

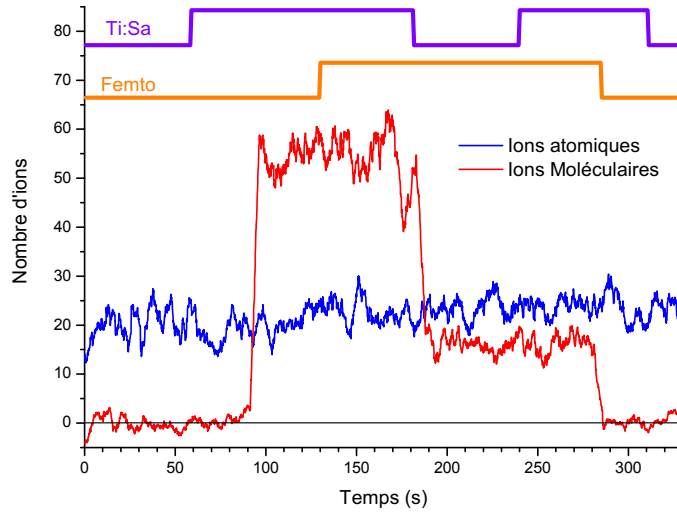


FIGURE 5.8 – Application d’un laser femtoseconde sur des molécules formées par photoassociation sur une raie du potentiel $0g^-$. Le laser femtoseconde fait fortement chuter le nombre de molécules détectés.

Les résultats dont un exemple est présenté figure 5.8 montrent, comme dans les études des groupes allemand et anglais sus-cité, que le signal moléculaire est fortement réduit dès qu’on applique le laser femtoseconde. Cet effet dépend de la longueur d’onde du laser femtoseconde. Lorsqu’on s’éloigne de la limite de dissociation l’effet de ‘destruction’ est moins intense. Une explication possible est que les molécules sont portées sur des états dissociatifs ou bien les molécules formées se désexcitent en deux atomes chauds. Il est également possible que ces molécules soit excités vers d’autres potentiels et qu’elles se désexcitent vers des états non sondés par la détection.

Pour trancher parmi ces différentes hypothèses nous avons cherché à observer une redistribution des niveaux moléculaires. Nous avons pour cela réalisé un balayage de la détection en présence du laser femtoseconde. Il y a alors disparition de plusieurs raies, non attribuées, et apparitions d’autres raies également non attribuées, voir figure 5.9. Nous pouvons penser à une redistribution des niveaux moléculaires sans toutefois pouvoir conclure faute d’assignation des raies moléculaires. Dans la thèse de [Viteau, 2008] sont également analysés les tests que nous avons fait avec un laser à fibre (Yb, 1074nm) et une séquence nous permettant d’envoyer l’un des deux lasers pulsés 500ns avant l’autre (même colorant, le premier laser est fixe en fréquence, le second est balayé en fréquence). Les résultats semblent également indiquer une redistribution des niveaux moléculaires.

5.3.2 Pompage optique vers $v_x=0$

L’idée à la base de l’expérience que nous allons décrire est de réexciter les molécules d’un état vibrationnel du potentiel X vers un état vibrationnel d’un potentiel excité. Le processus est suivi d’une désexcitation spontanée vers un état vibrationnel du potentiel

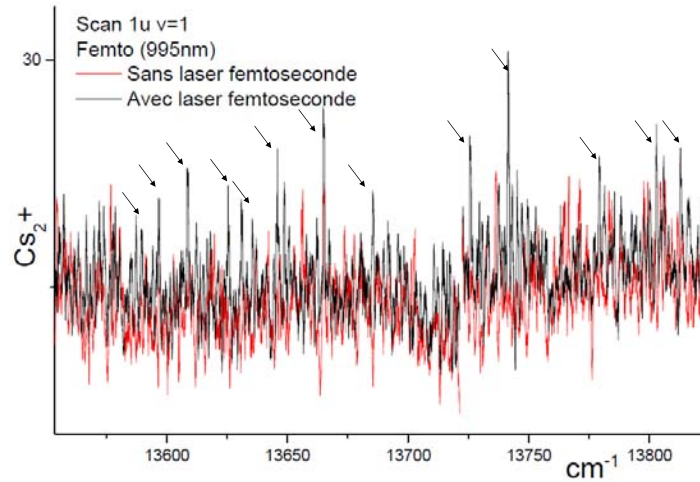


FIGURE 5.9 – Effet du laser femtoseconde. Le laser de photoassociation est positionné sur l'état $1u\ v=1$. Le laser de détection est balayé. Des raies apparaissent, indiquées par des flèches, lorsque le laser femtoseconde est utilisé.

X plus bas que l'état de départ. Le choix du potentiel adapté à ce cycle est fait en fonction des facteurs de Franck-Condon (et des règles de sélection). Ceux ci traduisent le recouvrement des fonctions d'ondes au carré associées aux niveau initial et final de la transition et sont sommés à 1. Le potentiel se prêtant bien à ce cycle est le $B^1\Pi_u$, noté B.

Nous pouvons donc résumer simplement l'idée énoncée ici par



où idéalement $v'_X < v_X$ pour réaliser du refroidissement vibrationnel.

Afin de supprimer toute réexcitation à partir de $v_X = 0$, nous façonnons spectralement les impulsions du laser femtoseconde par un passage sur une ligne de diffraction 4-f comme indiqué sur la figure 5.10.

Le faisceau est d'abord diffracté par un réseau (1800 traits par mm). Nous nous retrouvons dans ce cas avec le plan de Fourier (en fréquence) placé à l'infini, comme dans le cas de la diffraction Fraunhofer. Une lentille placée à sa distance focale $f = 500\text{mm}$ du réseau de diffraction projette dans son plan image, à distance focale f , la transformée de Fourier de l'impulsion diffractée.

Nous plaçons un miroir dans ce plan ainsi qu'un objet empêchant la réflexion de la lumière constitué d'un support rigide vertical sur lequel nous fixons une bande de papier noir. La lumière réfléchiée est alors renvoyée vers le réseau, puis le faisceau est dirigé vers l'enceinte à vide de telle façon à couvrir le nuage moléculaire.

Nous devons également nous rappeler que nous partons d'une distribution vibrationnelle dans le potentiel X. Il nous est alors impossible en pratique de faire des cycles de pompage optique-émission spontanée. Nous utilisons alors le caractère de largeur en fréquence des impulsions femtosecondes nous permettant d'effectuer le cycle de pom-

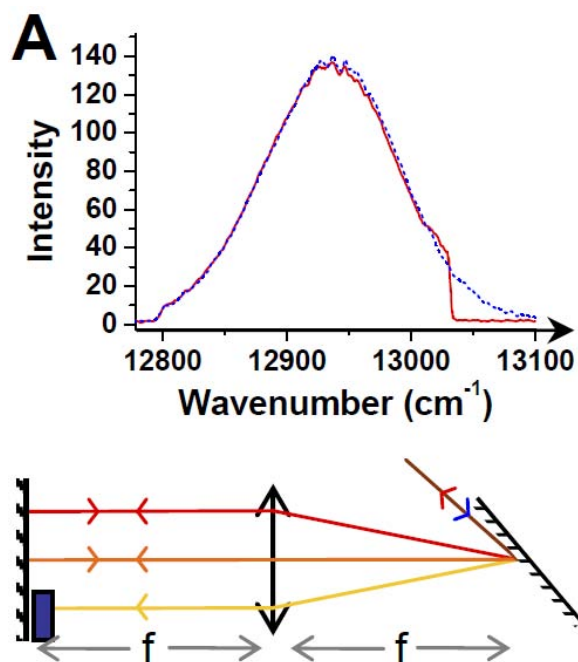


FIGURE 5.10 – Schéma de pompage optique avec des impulsions femtosecondes façonnées en fréquence. En haut, est tracé le profil spectral du laser avec façonnage, (comme sur la figure 5.11), proche d'un profil gaussien abruptement coupé à 13030 cm^{-1} . En bas, ligne 4-f (de gauche à droite : réseau (1800 traits par mm) : lentille cylindrique $f = 500\text{mm}$; bloqueur ; miroir).

page optique-émission spontanée pour les niveaux vibrationnels inférieur à $v_X=8$.

Le principe du pompage optique est illustré sur les figures 5.11 et 5.12. Le potentiel B est accessible par le laser femtoseconde et les probabilités de transitions sont favorables pour qu'une excitation d'un état vibrationnel du potentiel X vers un état vibrationnel du potentiel B soit suivi d'une désexcitation spontanée vers un état vibrationnel du potentiel X plus bas que l'état de départ.

Nous comprenons bien qu'une fois présente dans l'état $v_X = 0$, les molécules peuvent être réexcitées vers un état du potentiel B suivi d'une désexcitation dans le X, et tout cela avec les probabilités associées au facteur de Franck-Condon. C'est pour éviter toute réexcitation à partir de l'état vibrationnel $v_X = 0$ que nous avons retiré les fréquences correspondants aux transitions de $v_X = 0$ vers v_B .

Nous obtenons finalement un état noir pour $v_X = 0$, nous permettant d'accumuler les molécules dans l'état fondamental.

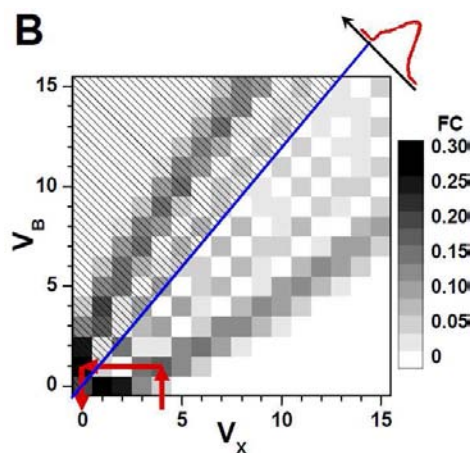


FIGURE 5.11 – Schéma de pompage optique avec des impulsions femtosecondes laser façonnées en fréquence. Parabole de Condon indiquant l'importance (niveau de gris) des facteurs de Franck-Condon (FC) (carré du recouvrement des fonctions d'ondes), correspondant aux probabilités de transition relative de l'état vibrationnel v_X à l'état vibrationnel v_B . La ligne diagonale correspond à la fréquence de coupure du laser (13030 cm^{-1}). La partie hachurée n'est pas accessible tant qu'il y a le bloqueur. Les flèches indiquent le pompage optique pour les molécules partant de $v_X = 4$.

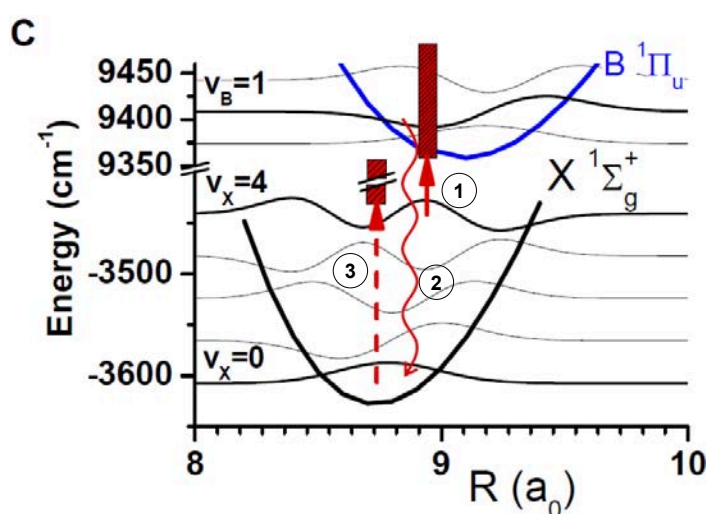


FIGURE 5.12 – Schéma de pompage optique avec des impulsions femtosecondes laser façonnées en fréquence. Les flèches indiquent le pompage optique pour les molécules partant de $v_X = 4$. Le schéma optique le plus probable pour atteindre $v_X = 0$ est de passer par $v_B = 1$. Étape (1), excitation vers $v_B = 1$. Étape (2), émission spontanée vers $v_X = 0$. Étape (3), les molécules dans $v_X = 0$ sont piégées car l'état noir incohérent formé par le façonnage de l'impulsion laser ne permet pas d'excitation à partir de $v_X = 0$ vers un quelconque niveau v_B .

5.3.3 Formations de molécules dans l'état fondamental

Nous appliquons le laser femtoseconde sur le nuage moléculaire après la photoassociation des atomes dans des états vibrationnels profonds du X. Ce laser (taux de répétition 80MHz, durée des impulsions 100 fs, largeur gaussienne 54 cm^{-1} , intensité

moyenne de 50 mW/cm^2 , longueur d'onde centrale 773 nm ou 12940 cm^{-1}) est réglé sur la transition électronique de $X^1\Sigma_g^+(v_X)$ à $B^1\Pi_u(v_B)$ (Fig.5.13).

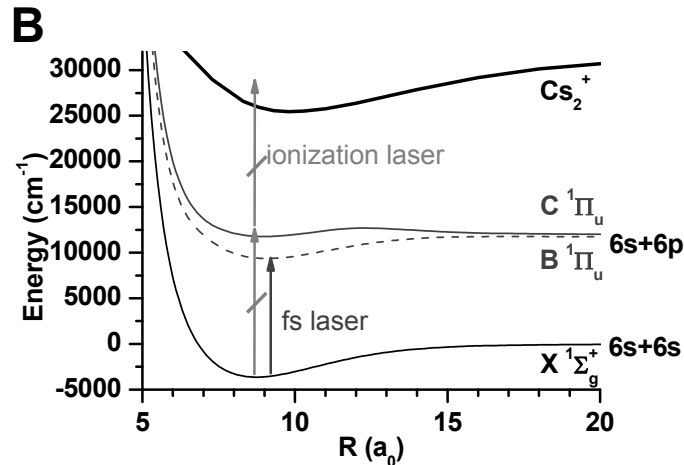


FIGURE 5.13 – Processus REMPI via l'état $C^1\Pi_u$ par le laser pulsé, et la transition électronique $X^1\Sigma_g^+$ vers $B^1\Pi_u$ induite par le laser femtoseconde.

Le résultat est présenté figure 5.14. Une évaluation du nombre de molécules avant et après refroidissement vibrationnel nous indique que 80% des molécules formés initialement entre $v_X = 1$ et $v_X = 8$ par photoassociation sont repompés dans l'état $v_X = 0$.

Nous avons suivi l'évolution temporelle du nombre de molécules formées dans $v_X = 0$ en contrôlant le nombre d'impulsions par un modulateur acousto-optique. Nous reproduisons donc le balayage du laser de détection de la figure 5.14 pour différent nombre d'impulsions. Le résultat présenté sur la figure 5.15 indique le transfert atteint quasiment la saturation après 5000 impulsions soit environ $60\mu s$. Le taux de formation de molécules dans l'état $v_X = 0$ atteint 1 % du taux de chargement du piège magnéto-optique soit environ 10^6 molécules par seconde.

Le processus dépend de la puissance du laser femtoseconde. Nous avons enregistré l'évolution temporelle de la population dans $v_X = 0$ pour deux puissances laser différentes, présenté sur la figure 5.16.

La modélisation du schéma de pompage optique est décrit dans la thèse de [Viteau, 2008]. Elle prend en compte les positions expérimentales des niveaux vibrationnels de l'état B ainsi que les facteurs de Franck-Condon associés et néglige l'accumulation des cohérences entre deux impulsions. La marche au hasard qui résulte du schéma de pompage optique est correctement modélisée. Le modèle indique que plus de 70% des molécules sont transférés dans l'état fondamental, voir figure 5.17. Un point intéressant est le nombre moyen de photons absorbés pour atteindre $v_X = 0$. Il est seulement de 5 pour la distribution initiale. L'absorption de 5 photons en moyenne sur environ 5000 impulsions donne une probabilité d'absorption d'environ 0.1% dans nos conditions expérimentales.

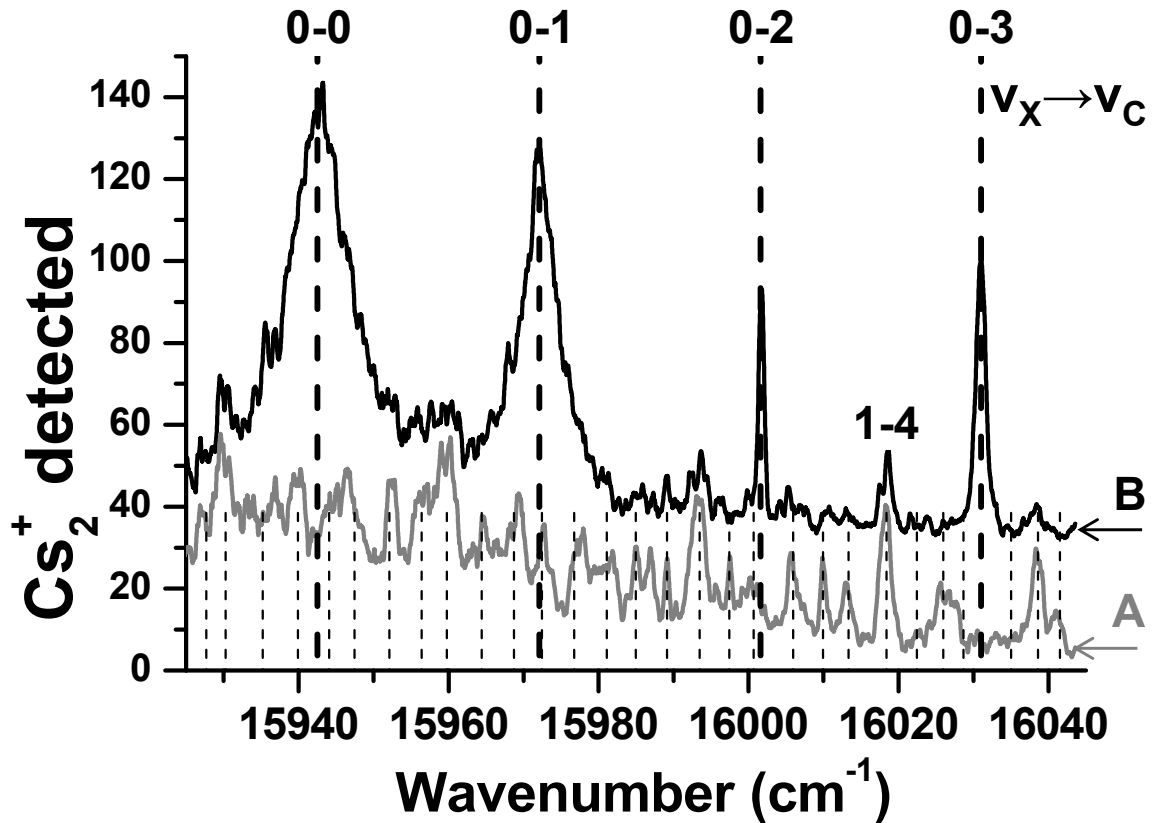


FIGURE 5.14 – Signal d’ions moléculaires Cs_2^+ obtenu en photoassociant sur la raie à $11730,1245 \text{ cm}^{-1}$. **A**, Spectre sans le laser façonné. Le spectre fait apparaître un niveau de fond dû à d’autres processus REMPI, qui ne masquent cependant pas les résonances. Les lignes en pointillé indiquent les positions de toutes les résonances pour des transitions entre le niveau fondamental $X^1\Sigma_g^+$ ($v_X = 0$ à 7) et le niveau électronique excité $C^1\Pi_u$ (v_C). **B**, Spectre réalisé avec le laser façonné appliqué en continu, décalé de 40 ions pour plus de visibilité. Les transitions observées à partir de $v_X = 0$ correspondent à $v_C = 0, 1, 2$ and 3. Leur élargissement correspond à la saturation par puissance du processus REMPI. La plupart des résonances présentes dans le spectre **A** sont fortement réduites tandis que les résonances associées à $v_X = 0$ poussent de façon intense. La résonance 1-4 indique un dépompage imparfait de $v_X=1$ dû au façonnage pas assez fin de l’impulsion femtoseconde.

5.3.4 Retour sur le mécanisme de formation

Lorsque nous utilisons la méthode de pompage optique moléculaire pour accumuler (par accumulation nous entendons la durée pendant laquelle le laser femtoseconde est appliqué) les molécules formées dans $v_X = 0$ nous bénéficions alors d’un signal suffisant pour refaire un balayage du laser de photoassociation sous la limite $6s + 6p_{3/2}$ afin de déterminer le chemin suivi en terme d’états moléculaires entre les atomes dans l’état $6s + 6s$ et les molécules dans $X^1\Sigma_g^+$.

Le résultat du balayage du laser de photoassociation est présenté sur la figure 5.18. Nous pouvons supposer, à la vue des écarts mesurés, que la progression observée

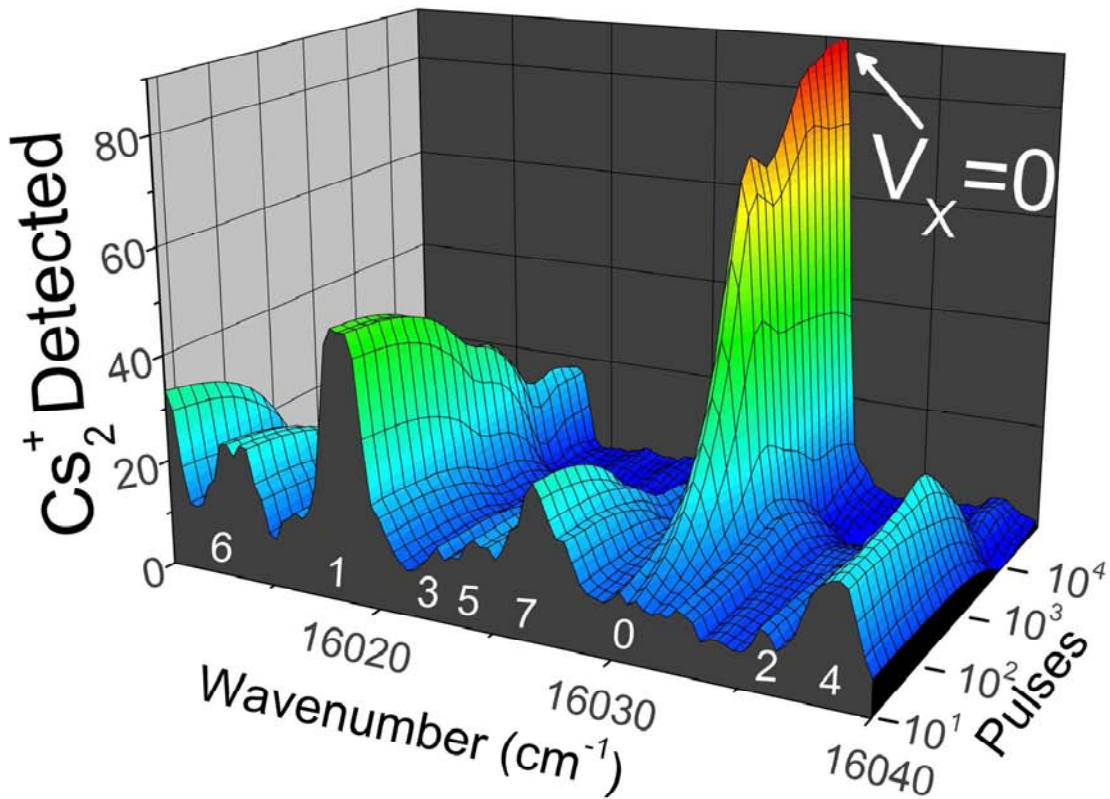


FIGURE 5.15 – Évolution temporelle (impulsions séparées de 12.5ns) des populations dans les différents niveaux vibrationnels de l'état fondamental. La probabilité d'excitation est seulement de 0.1% pour une impulsion. Population expérimentale en fonction du nombre d'impulsion femtosecondes appliquées, moyenné à partir de 5 spectres (identique à la figure 5.14 mais pris après un nombre contrôlé d'impulsions). Les fréquences correspondent aux transitions des niveaux $v_x = 0 - 7$ indiquées par les nombres en blanc sous le spectre.

est rotationnelle. Comme l'énergie quantifiée de rotation s'écrit $\frac{\hbar^2 J(J+1)}{2\mu R_e^2}$, où R_e est le point d'équilibre, le rapport entre les états de rotation successif ne dépend que de $(J+1)/(J-1)$. Un ajustement réalisé sur le rapport des positions mesurées permet de déterminer les états de rotation associés à chaque transition. Ainsi sur la figure 5.18 sont présents les états rotationnels allant de $J=4$ à $J=14$. Un ajustement permet de trouver la constante $B_v = \frac{\hbar^2}{2\mu R_e^2}$ et la position d'équilibre associée au potentiel à partir duquel à lieu la désexcitation vers l'état fondamental. Nous obtenons une valeur de $R_e = \frac{\hbar}{\sqrt{2\mu B_v}} = 8.73a_0$. Cette valeur correspond au fond du puit de l'état $1_g(6s + 6d_{5/2})$.

Le processus de photoassociation serait donc le suivant (voir figure 5.19) : nous excitions une paire d'atomes sur un niveau lié du potentiel $1_g(6s + 6p_{3/2})$; cet état est couplé à courte distance via spin-orbite à des courbes 1_g à la limite $(6s + 6p_{3/2})$ et $(6s + 6d_{5/2})$; Afin de respecter les règles de sélection ($g \leftrightarrow u$), la désexcitation vers $X^1\Sigma_g^+$ doit se faire à deux photons via le potentiel 0_u^+ .

Pour comprendre la présence de moments de rotation jusqu'à $J=14$ nous avons commencé par couper le piège magnéto optique 2ms avant la photoassociation jusqu'à

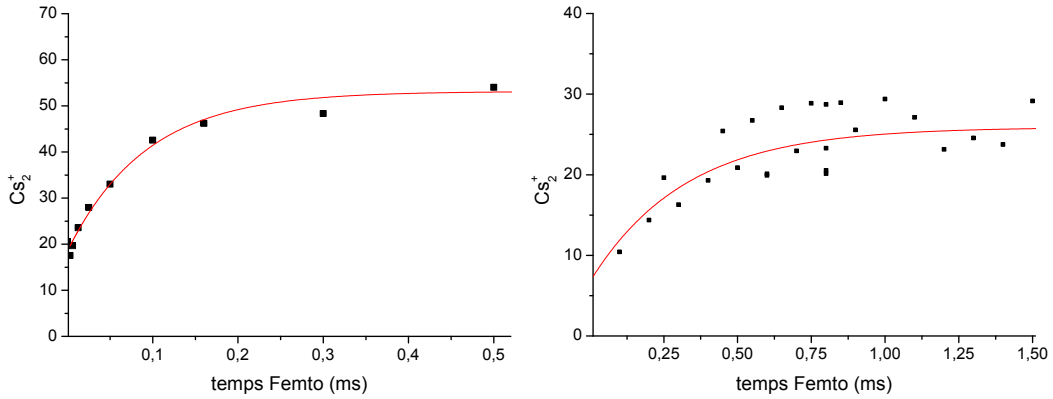


FIGURE 5.16 – Nombre de molécules détectés dans l'état $v_x = 0$ en fonction du temps, pour deux puissances du laser femtoseconde. A droite puissance de 10 mW (intensité de 12.5 mW/cm²), à gauche puissance de 125 mW (intensité de 50 mW/cm²). La constante de temps de l'ajustement exponentiel, en rouge, indique respectivement un temps caractéristique de 90 μ s et 290 μ s.

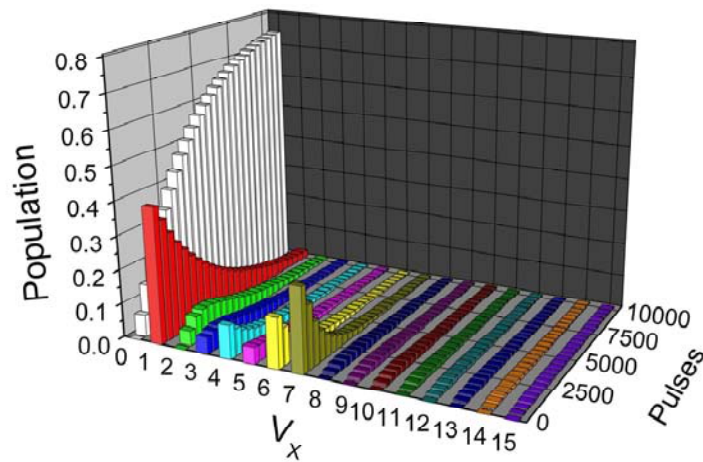


FIGURE 5.17 – Évolution temporelle théorique (impulsions séparées de 12.5ns) des populations dans les différents niveaux vibrationnels de l'état fondamental. Simulation où est représenté l'évolution temporelle de $v_x = 0$ to 15 en prenant des conditions initiales proches des conditions expérimentales.

1ms après. Il n'est pas apparu de changement, ce qui indique que les lasers de piègeage ne jouent pas de rôle dans l'apparition de grands moments de rotation. Une autre hypothèse pour expliquer la présence de moments de rotation jusqu'à $J=14$ fait appel à un couplage entre structure rotationnelle et structure hyperfine comme décrite pour le $1_u(6s + 6p_{3/2})$ dans [Comparat et al., 2000]. Un premier couplage entre structure hyperfine ($I=2*7/2$, moment nucléaire) et rotation à grande distance ($\mathbf{J}=0$, avec une onde de collision $l=0$) $\mathbf{F} = \mathbf{I} + \mathbf{J}$, permet d'atteindre $F_{initial}=I \leq 7$ pour l'état $1_g(6s + 6p_{3/2})$.

A courte distance le couplage entre l'état $1_g(6s+6p_{3/2})$ et l'état $1_g(6s+6d_{5/2})$ permet de coupler le moment hyperfin acquis durant la première étape au moment de rotation

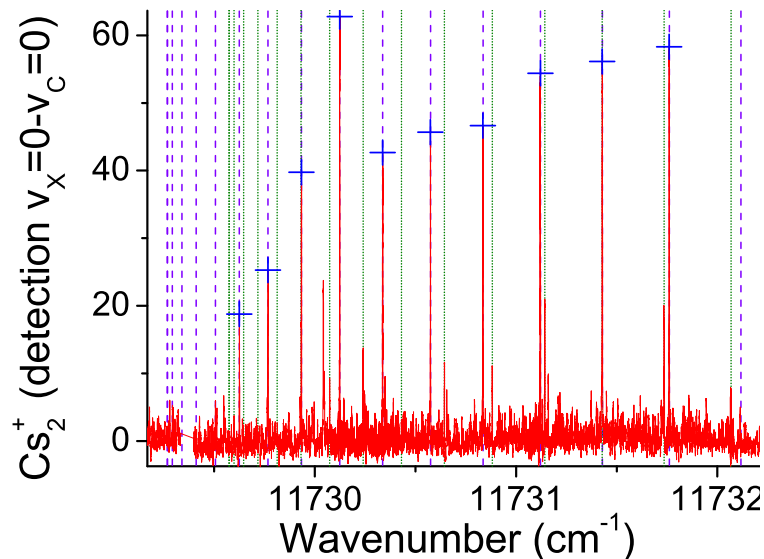


FIGURE 5.18 – Identique à la figure 5.6 mais précédé par une étape de refroidissement vibrationnel et avec une détection sélective (15941 cm^{-1}) mise à résonance entre les niveaux ($v_X = 0$) and ($v_C = 0$). Les traits violet en pointillé indiquent la progression rotationnelle $J \geq 0$ correspondant aux raies marquées à leur sommet par des croix bleues. Les traits verts en pointillé sont décalés de 9.2 GHz et indiquent un second processus de photoassociation partant de l'autre niveau hyperfin du césium ($F=3$).

final soit $\mathbf{J}_{final} = \mathbf{F}_{initial} - \mathbf{I}$. \mathbf{J}_{final} peut alors atteindre 14.

Nous n'avons pas trouvé de moment de rotation supérieur à 14 car il se situe au delà de la limite de dissociation ($6s + 6p_{3/2}$).

5.4 Conclusion

Nous avons montré dans ce chapitre qu'il est possible d'utiliser des lasers larges bandes dans différentes situations.

Tout d'abord la connaissance simple des potentiels nécessaire pour la détection REMPI est mise à profit pour détecter des molécules dans l'état X en testant différents schémas de photoassociation. La présence de molécules formées dans un ensemble de niveaux est détecté en une seule étape. Il est alors possible de ce focaliser sur l'étape de photoassociation.

Nous avons pu montrer à l'aide de cette technique, la formation de molécules froides très profondes dans l'état X. Une étape d'analyse des positions des signaux moléculaires nous a ensuite permis de mettre en évidence un nouveau mécanisme de formation qui implique une désexcitation spontanée à deux photons.

Dans un deuxième temps nous avons montré qu'il est possible de refroidir une population vibrationnelle en utilisant un laser large bande, ici un laser femtoseconde. Le choix d'un potentiel adapté et l'utilisation d'un laser femtoseconde façonné en fréquence

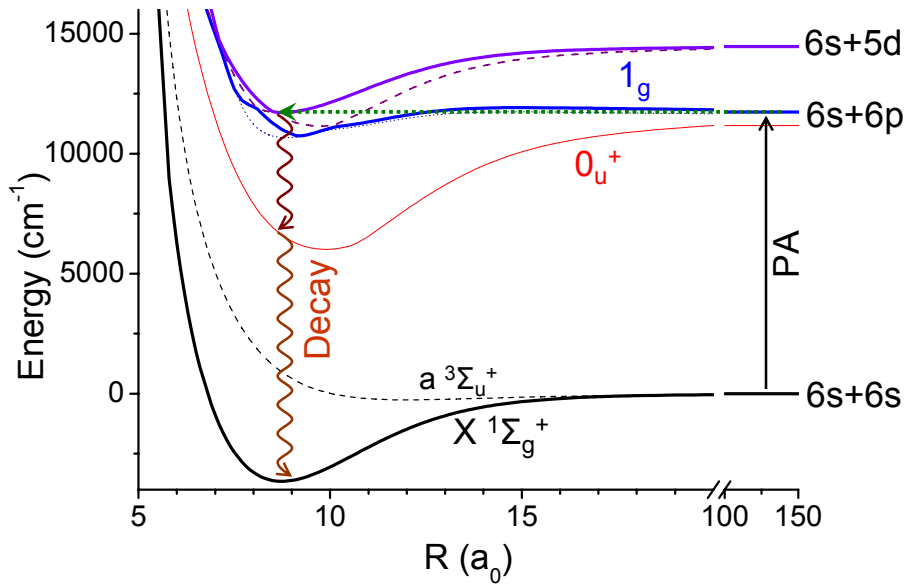


FIGURE 5.19 – Schéma des potentiels moléculaires du Cs_2 , expliquant la formation de molécules froides par photoassociation. Les molécules formées après photoassociation dans l'état 1_g suivent la cascade spontanée par le potentiel 0_u^+ . Nous indiquons les limites de dissociation $6s+6s$, $6s+6p$, et $6s+5d$ (nous n'indiquons pas la structure fine pour plus de lisibilité). Photoassociation d'atomes froids et formations de molécules froides. Le laser de photoassociation (PA) est réglé $\sim 1 \text{ cm}^{-1}$ sous la transition atomique $6s_{1/2} \rightarrow 6p_{3/2}$. Pour le potentiel de symétrie 1_g , la fonction d'onde radiale à grande distance est couplée à la fonction d'onde radiale à courte distance par couplage interne des potentiels [Dion et al., 2001]. Les molécules dans l'état fondamental, $X^1\Sigma_g^+$, sont formées par émission spontanée via le potentiel 0_u^+ .

nous a permis de réaliser un pompage optique moléculaire conduisant à la formation de molécules froides dans l'état électronique et vibrationnel fondamental à un taux de 10^6 molécules par seconde.

Optical Pumping and Vibrational Cooling of Molecules

Matthieu Viteau,¹ Amdsen 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

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

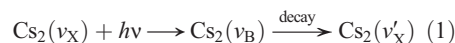
presents a major challenge. Cold molecules in the micro- or nanokelvin temperature range can only be achieved starting with cold atoms using collisional processes such as photoassociation in a thermal atomic cloud (4), Feshbach magnetoassociation in atomic Bose-Einstein condensates (10), or three-body 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 magnetoassociation (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.

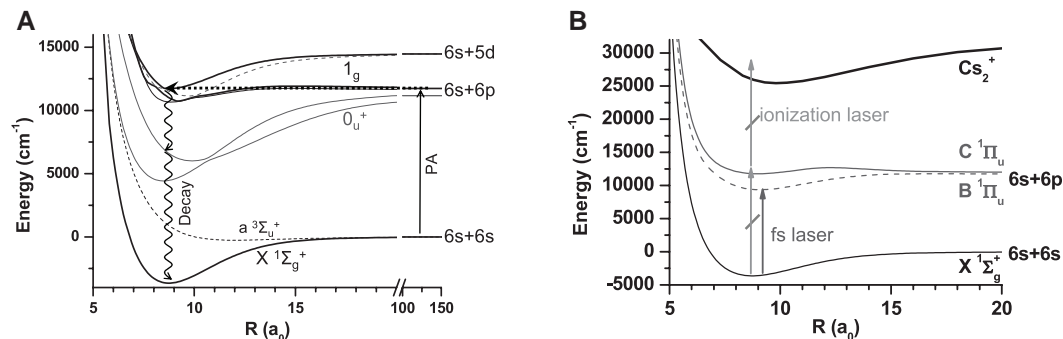
Several theoretical approaches have been proposed to favor spontaneous emission toward the lowest ro-vibrational level: for instance, the use of an external cavity (15) or controlled interplay of coherent laser fields and spontaneous emission through quantum interferences between different transitions (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.

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 $X^1\Sigma_g^+$ toward $B^1\Pi_u$ 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 ($\sim 1 \text{ cm}^{-1}$) 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 $\sim 16000 \text{ cm}^{-1}$, 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

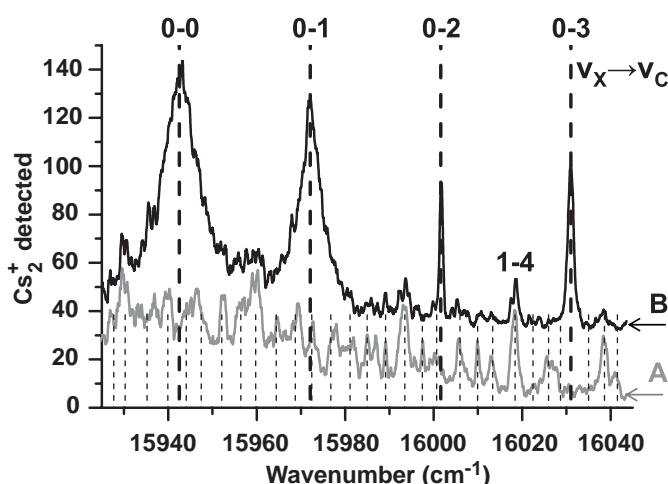
transitions from the ground state levels $v_X = 1$ to 7 to various levels of the C state (27). In this first step, no molecules in the vibrational level $v_X = 0$ are detected. The present low REMPI resolution does not provide the capability of analyzing the rotational population of the molecules.

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 = $12,940 \text{ cm}^{-1}$) 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 $13,030 \text{ cm}^{-1}$ 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, $X^1\Sigma_g^+(v_X = 0 \text{ to } 7)$ 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.

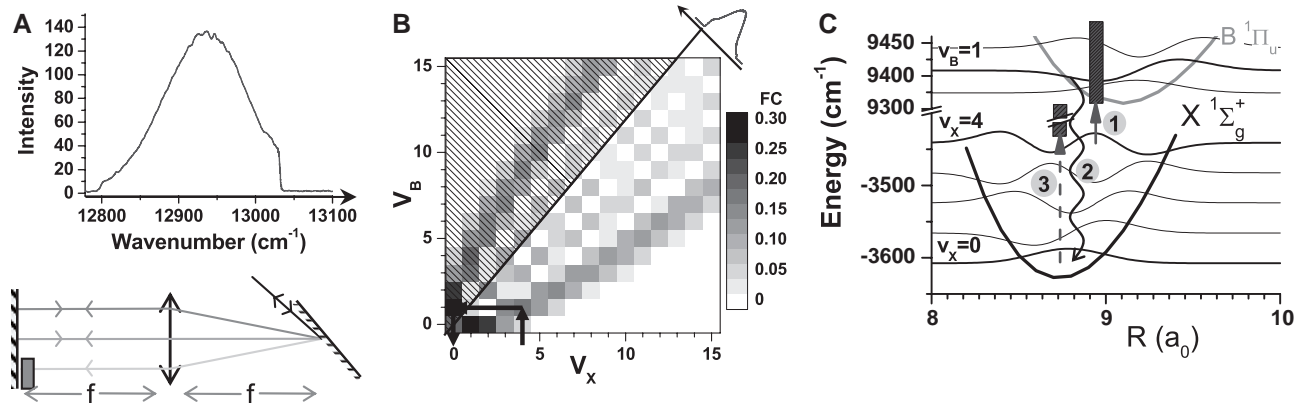


Fig. 3. Optical pumping scheme with a shaped femtosecond laser pulse. (A) (Top) Line gives the laser spectrum profile with shaping [also shown in (B)], close to a Gaussian profile sharply cut off at $13,030 \text{ cm}^{-1}$. (Bottom) 4- f shaping arrangement (from right to left: grating, cylindrical lens $f = 500 \text{ mm}$, 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 ($13,030 \text{ cm}^{-1}$).

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.

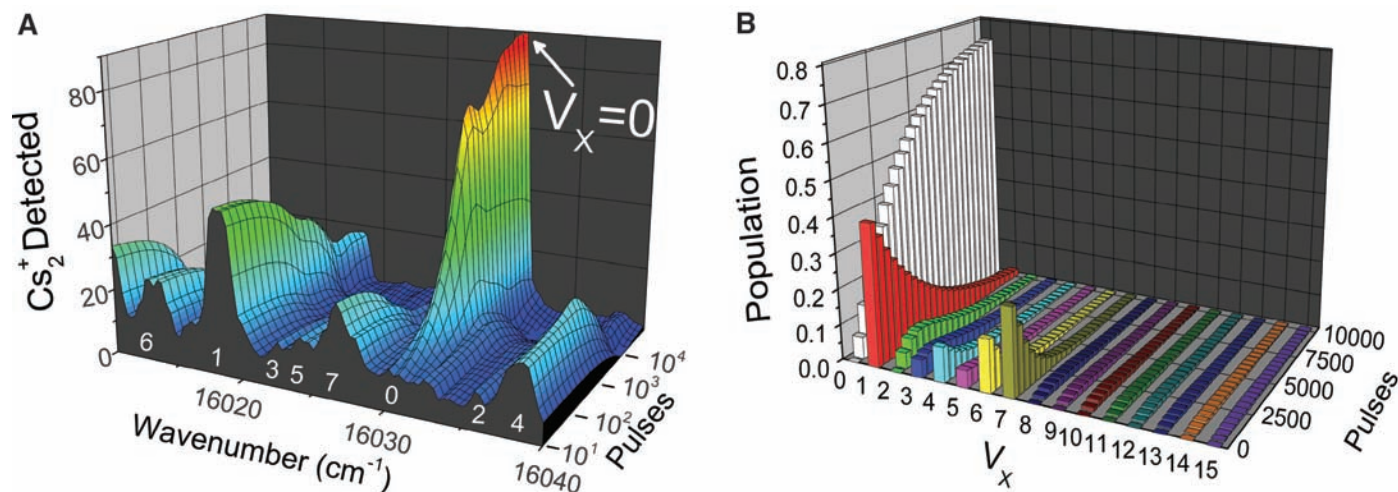


Fig. 4. Temporal evolution (pulse separation = 12.5 ns) of the populations in the different vibrational levels of the ground state. Because of our weak laser intensity, the excitation probability is only 0.1% for a single pulse. **(A)** Experimental population versus the number of applied femtosecond 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 μ s. 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

- J. Doyle, B. Friedrich, R. V. Krems, F. Masnou-Seeuws, *Eur. Phys. J. D* **31**, 149 (2004).
- R. V. Krems, *Int. Rev. Phys. Chem.* **24**, 99 (2005).
- O. Dulieu, M. Raoult, E. Tiemann, *J. Phys. B* **39**, 19 (2006).
- A. Fioretti *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 4402 (1998).
- J. D. Weinstein, R. Decarvalho, T. Guillet, B. Friedrich, J. M. Doyle, *Nature* **395**, 148 (1998).

- H. L. Bethlem, G. Berden, G. Meijer, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 1558 (1999).
- M. S. Eloff, J. J. Valentini, D. W. Chandler, *Science* **302**, 1940 (2003).
- M. Gupta, D. Herschbach, *J. Phys. Chem. A* **103**, 10670 (1999).
- S. A. Rangwala, T. Junglen, T. Rieger, P. W. Pinkse, G. Rempe, *Phys. Rev. A* **67**, 043406 (2003).
- M. Theis *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 123001 (2004).
- S. Jochim *et al.*, *Science* **302**, 2101 (2003), published online 13 November 2003; 10.1126/science.1093280.
- K. Winkler *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 043201 (2007).
- J. M. Sage, S. Sainis, T. Bergeman, D. Demille, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 203001 (2005).
- A. N. Nikolov *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 703 (1999).
- G. Morigi, P. W. H. Pinkse, M. Kowalewski, R. de Vivie-Riedle, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 073001 (2007).
- D. J. Tannor, R. Kosloff, A. Bartana, *Faraday Discuss.* **113**, 365 (1999).
- A. Bartana, R. Kosloff, D. J. Tannor, *J. Chem. Phys.* **99**, 196 (1993).
- S. G. Schirmer, *Phys. Rev. A* **63**, 013407 (2000).
- I. S. Vogelius, L. B. Madsen, M. Drewsen, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 173003 (2002).
- I. S. Vogelius, L. B. Madsen, M. Drewsen, *J. Phys. B* **37**, 4571 (2004).
- M. Raab, G. Hönig, W. Demtröder, C. R. Vidal, *J. Chem. Phys.* **76**, 4370 (1982).
- W. Weickenmeier *et al.*, *J. Chem. Phys.* **82**, 5354 (1985).
- U. Diemer, R. Duchowicz, M. Ertel, E. Mehdizadeh, W. Demtröder, *Chem. Phys. Lett.* **164**, 419 (1989).
- D. Felinto, C. A. C. Bosco, L. H. Acioli, S. S. Vianna, *Opt. Commun.* **215**, 69 (2003).
- J. T. Bahns, W. C. Stwalley, P. L. Gould, *J. Chem. Phys.* **104**, 9689 (1996).
- C. M. Dion *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 2253 (2001).
- 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 CORYMOL.

23 April 2008; accepted 9 June 2008
10.1126/science.1159496

Efficient formation of deeply bound ultracold molecules probed by broadband detection

Matthieu Viteau,¹ Amodsen Chotia,¹ Maria Allegrini,^{1,2} Nadia Bouloufa,¹ Olivier Dulieu,¹
Daniel Comparat,¹ and Pierre Pillet^{1,*}

¹Laboratoire Aimé Cotton, CNRS, Université Paris-Sud, Bât. 505, 91405 Orsay, France

²Department of Physics, CNISM, Pisa University, Largo Pontecorvo 3, 56127 Pisa, Italy

(Received 25 September 2008; published 18 February 2009)

Using a nonselective broadband detection scheme we discovered an efficient mechanism of formation of ultracold Cs₂ molecules in deeply bound vibrational levels ($v=1-9$) of their electronic ground state $X^1\Sigma_g^+$. They are formed by a one-photon photoassociation of ultracold cesium atoms in a manifold of excited electronic states, followed by a two-step spontaneous emission cascade. This process creates about 10^5-10^6 molecules per second. This detection scheme is an advancement compare to previous ones and could be generalized to other molecular species for the systematic investigation of cold molecule formation mechanisms.

DOI: 10.1103/PhysRevA.79.021402

PACS number(s): 32.80.Rm, 33.20.Tp, 34.50.Rk, 37.10.Vz

The creation and the study of ensembles of cold and ultracold molecules attract considerable attention [1–4]. The only way to produce molecules with a temperature in the sub-milli-Kelvin range relies on the association of ultracold atoms using, for instance, magnetoassociation, via Feshbach resonances in quantum degenerate gases [5–9], or photoassociation (PA) of ultracold atoms from a standard magneto-optical trap (MOT) [10]. PA is a well-known efficient process for the formation of ultracold molecules, with a rate as high as $\sim 10^6-10^7$ s⁻¹. The main drawback of the PA approach is the spread of the population of the formed molecules over many vibrational levels v with low binding energy. Nevertheless, ultracold ground-state K₂ molecules created in the lowest vibrational level $v=0$ have been observed via a two-step PA scheme [11], while a sequence of a PA step followed by an absorption-emission transfer have produced ultracold ground-state RbCs molecules in $v=0$ as well [12]. Ultracold ground-state LiCs molecules in the absolute rovibrational level $v=0, J=0$ (v the vibrational quantum level and J the rotational one) have also been detected after a single PA step [13]. However, in all these experiments the formation rate is limited to $\sim 10^3$ s⁻¹ molecules in $v=0$.

As published previously [14], an optical pumping technique using a tailored broadband light source, allowed us to form about 10^5-10^6 molecules per second in the $v=0$ level of the ground state. The method relies on an efficient PA formation scheme yielding molecules in $v < 10$ levels. In this Rapid Communication, we emphasize the tool which has been used to find this efficient PA formation scheme. Indeed, it is generally a considerable task to discover novel PA schemes. Such schemes generally involve peculiarities of the electronic structure of each individual molecular species: potential barrier [15,16], shape [17], or Feshbach [18] resonances in the ground state, nonadiabatic couplings in the PA state [19], flux enhancement [20], or accidental matching of radial wave functions related to each step of the process [11].

In this Rapid Communication we demonstrate a general and systematic method to look for efficient ultracold mol-

ecule formation schemes based on PA, which requires only basic knowledge of the molecular structure. It is based on a detection procedure which does not select the population of a particular bound level of the formed molecules, in contrast with all previous experiments relying on resonantly enhanced multiphoton ionization (REMPI) [10].

PA of cold cesium atoms [21] is achieved with a cw titanium:sapphire laser (intensity 300 W cm⁻²), pumped by an argon-ion laser, exciting molecules which can decay by spontaneous emission into vibrational levels of the molecular ground state $X^1\Sigma_g^+$ (hereafter referred to as X), or of the lowest triplet state $a^3\Sigma_u^+$. In order to observe deeply bound molecules in the X state, which could result from an *a priori* unknown mechanism, we set up a broadband REMPI detection through vibrational levels v_B of the spectroscopically known $B^1\Pi_u$ excited state [22] (referred to as the B state). The two-photon transition is induced by a pulsed dye laser (LDS751 dye, wavelength ~ 770 nm, pulse energy ~ 1 mJ, focused waist ~ 500 μ m) and by the pump laser (532 nm wavelength) as illustrated in Fig. 1(a). The formed Cs₂⁺ ions are then detected using a pair of microchannel plates after passing through a time-of-flight mass spectrometer.

The major advance of the present experiment compared to previous ones is the broadband detection of the formed ultracold molecules. We replaced the grating in the pulsed dye laser cavity by a less dispersive prism, which broadens its linewidth from ~ 0.05 to ~ 25 cm⁻¹ (measured using a HP-86142A Optical Spectrum Analyzer). We display in Fig. 1 the results of a modeling of the ionization process, for both narrow-band (panel b) and broadband (panel c) schemes. We assume that the ionization probability is proportional to the population of the v_B level induced by the first photon at 770 nm. The excitation probabilities of the v_X levels toward the v_B levels are obtained from Franck-Condon factors computed for the experimentally known X and B potential curves [22,23], assuming a constant transition dipole moment. As expected, the narrow-band ionization scheme allows for the ionization of a single v_X level at a given frequency [Fig. 1(b)]. In contrast, the broadband scheme involves a laser pulse width of the order of the vibrational spacing of both the X and B states (up to 40 cm⁻¹), so that many vibrational v_X

*Daniel.Comparat@lac.u-psud.fr

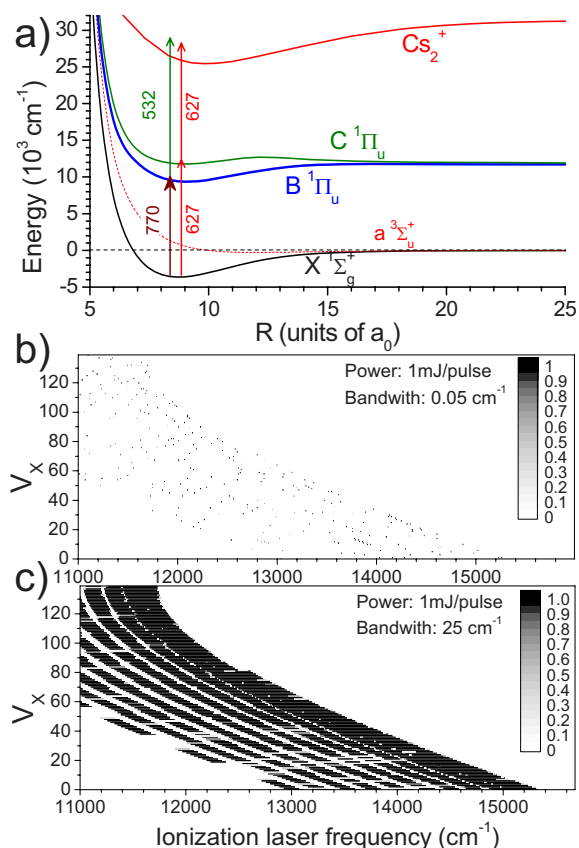


FIG. 1. (Color online) (a) REMPI detection scheme of deeply bound ground-state Cs_2 molecules with a broadband laser at 770 nm (with an extra laser at 532 nm) via the $B^1\Pi_u$ state, and with a narrow-band laser at 627 nm via the $C^1\Pi_u$ state. Transition probabilities of the ground-state vibrational levels v_X toward levels of the B state, as functions of their energy difference E_{X-B} for a laser linewidth of 0.05 cm^{-1} (b) and of 25 cm^{-1} (c), with identical power (1 mJ/pulse). The probability is put to unity for a saturated transition.

levels can be ionized in a single shot [Fig. 1(c)]. For instance, a laser pulse at $\sim 11\,730 \text{ cm}^{-1}$ or at $\sim 13\,000 \text{ cm}^{-1}$ would saturate the excitation of almost all molecules in vibrational levels $v_X > 37$ or $v_X < 70$, respectively.

Choosing the frequency of the first laser around $13\,000 \text{ cm}^{-1}$ we then scanned the PA laser frequency over a few wave numbers below the $6s+6p_{3/2}$ dissociation limit. We discovered several intense PA lines labeled with crosses in Fig. 2, revealing a large number of ultracold molecules formed in low ($v_X < 70$) vibrational levels of the X state. These detected singlet molecules were actually present in our previous experiments performed in the same PA energy range [21], but our previous narrow-band REMPI detection scheme (wavelength $\sim 720 \text{ nm}$) was optimized to detect $a^3\Sigma_u^+$ molecules, and therefore was blind to these singlet molecules (see lower part of Fig. 2).

To precisely determine the internal state of these formed molecules we fix the PA laser energy on the most intense line of Fig. 2 and we performed conventional narrow-band REMPI to record the ionization spectrum through the intermediate $C^1\Pi_u$ state [23,24]. The lines (shown in Fig. 3) are easily assigned to transitions from ground-state vibrational

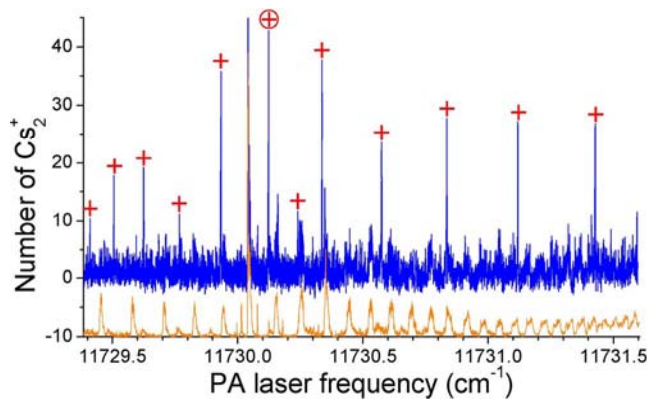


FIG. 2. (Color online) Upper trace: Cs_2^+ ion spectrum recorded after scanning the frequency of the PA laser below the $6s+6p_{3/2}$ dissociation limit, and using the broadband REMPI detection laser with energy around $13\,000 \text{ cm}^{-1}$. The crosses label the previously unobserved PA lines. Lower trace: Cs_2^+ ion spectrum obtained using the conventional narrow-band REMPI detection with energy around $13\,900 \text{ cm}^{-1}$ (optimized to detect $a^3\Sigma_u^+$ molecules) [21], displayed with an offset of ten ions for clarity.

levels restricted to the range $v_X=1$ to $v_X=9$. Taking into account the efficiency of the detection [14,21], the ion signal corresponds to a cumulative formation rate for the $v_X < 10$ molecules close to 10^6 per second.

In order to further investigate this novel efficient PA mechanism, we improved the PA signal of Fig. 2 by (i) performing a vibrational cooling step, which accumulates the $v_X < 10$ population into the sole $v_X=0$ level [14] and (ii) by detecting these molecules using the narrow-band detection through the known transition between $X(v_X=0)$ and $C(v_C=0)$. The PA spectroscopy performed under such con-

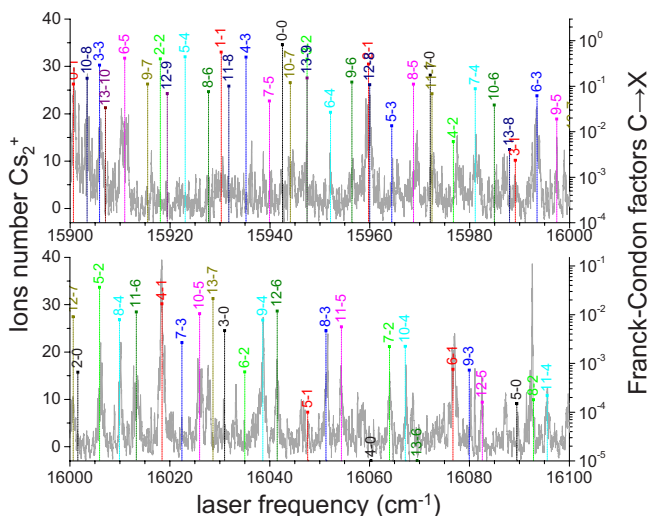


FIG. 3. (Color online) Cs_2^+ ion count (left vertical axis) resulting from a standard (narrow-band) REMPI detection [frequency $\sim 627 \text{ nm}$ see Fig. 1(a)]. The PA laser energy is fixed at $11\,730.1245 \text{ cm}^{-1}$ corresponding to the line marked with a circled cross in Fig. 2. Transition labels v_C-v_X are extracted from the spectroscopically known C and X states and the transition strength is computed using the known Franck-Condon factors (right vertical axis).

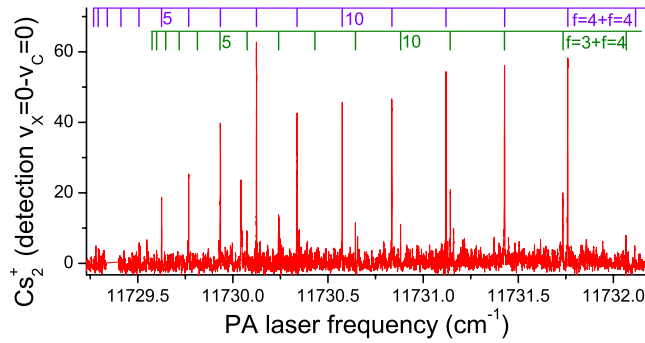


FIG. 4. (Color online) Same as Fig. 2 but Cs_2^+ ions are now detected with a narrow-band laser (wave number $15\,941\text{ cm}^{-1}$) tuned to resonance with the transition ($v_X=0$) \rightarrow ($v_C=0$) and an additional vibrational cooling step is performed [14]. An intense series and a weak rotational series, separated by 9.2 GHz have been fitted, assigned to rotational levels from $J=5$ to 14. Extrapolated line positions for $J=0-4$ are also displayed.

ditions is depicted in Fig. 4. Two series of lines separated by 9.2 GHz (i.e., the hyperfine splitting between the $f=3$ and $f=4$ cesium $6s$ states, where f is the total angular momentum) are visible. As the MOT mainly contains $\text{Cs}(f=4)$ atoms, the intense lines correspond to PA of two $\text{Cs}(f=4)$ atoms, and the weak lines to PA of one $\text{Cs}(f=4)$ and one $\text{Cs}(f=3)$ atom. This 9.2 GHz line spacing rules out the possibility that the molecules are formed after a PA step with two identical photons, as this would induce a spacing twice smaller. The series of intense lines is easily assigned to a rotational progression with rotational quantum number between $J=5$ and 14. We fitted a rotational constant $B_v=0.01188(1)\text{ cm}^{-1}$, corresponding to an approximate average internuclear distance $\bar{R}_0 \equiv (2\mu B_v)^{-1/2} = 8.73a_0$, where μ is the Cs_2 reduced mass ($a_0=0.0529177\text{ nm}$). Thus this novel single-photon PA mechanism excites both [$\text{Cs}(f=4)$, $\text{Cs}(f=4)$] and [$\text{Cs}(f=4)$, $\text{Cs}(f=3)$] ground-state atom pairs, into a level located about 2 cm^{-1} below the $6s+6p_{3/2}$ asymptote, with a vibrational motion taking place mainly in the short-distance range. A similar situation of an efficient long-range PA followed by spontaneous emission at “short” distance, has already been demonstrated for the lowest 0_u^+ excited states in Cs_2 and is induced by internal couplings between potential curves [19]. Relying on theoretical Cs_2 potential curves including spin orbit [25,26], we identified only one excited potential curve, belonging to the 1_g symmetry, as a good candidate for the PA state. We depict the process as follows: the PA laser excites the atom pair into a bound level of the lowest $1_g(6s+6p_{3/2})$ long-range potential curve (curve 1 in Fig. 5), which is coupled at short distances to the lowest $1_g(6s+6d_{5/2})$ potential curve (curve 4 in Fig. 5), through several avoided crossings induced by spin-orbit interaction. The $v=0$ level of the curve 4 is predicted with an energy very close to the $6s+6p_{3/2}$ dissociation energy. It is most probably the only populated short-range level in this mechanism, which then decays down to the X ground state through a two-photon spontaneous emission cascade via the 0_u^+ potentials. Note that the spontaneous decay cannot directly proceed down to the levels of the $a^3\Sigma_u^+$ state, as the average distance $8.73a_0$ corresponds to the range of the re-

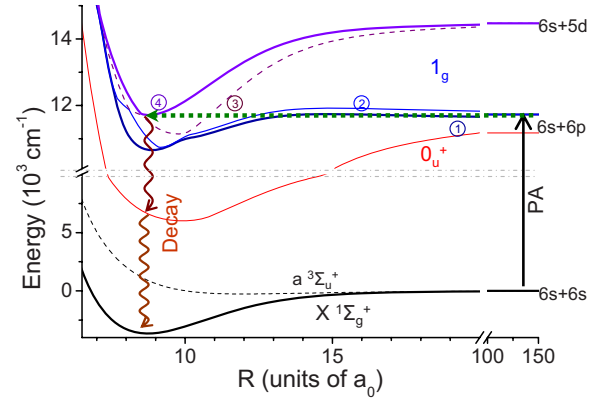


FIG. 5. (Color online) Theoretical Cs_2 molecular potential curves including spin orbit [25,26], relevant for the present PA and cold molecule formation process. The PA laser excites levels of a long-range 1_g curve (label 1), which is coupled to the $v=0$ level of the short-range 1_g curve (label 4) through several avoided crossings involving 1_g curves labeled 2 and 3. Formation of a deeply bound ground-state molecule proceeds through a spontaneous emission cascade via the 0_u^+ states.

pulsive wall so that only dissociating pairs could be formed. Preliminary simulation of the two-photon spontaneous emission cascade based on Franck-Condon factors indeed indicates population of vibrational level $v_X < 10$, as observed experimentally, but also population of levels $v_X \sim 40-70$, which are not observed experimentally probably because of their poor REMPI probabilities.

To investigate the reason for the presence of high values of the rotational quantum number (up to $J=14$) of the PA molecules, we turned off the MOT lasers 2 ms before switching on the PA laser, and while the PA laser was on (1 ms). We observed no change in the PA spectrum. This demonstrates that the MOT lasers (both trapping and re-pumping ones) do not bring additional angular momentum into the process, in contrast to previous observations in sodium PA where lines up to $J=22$ have been reported [27], or in cesium PA where lines up to $J=8$ have been reported [28]. Such high J values are probably induced by the large hyperfine structure of the long-range $1_g(6s+6p_{3/2})$ Cs_2 molecular state [29]. The $1_g(6s+6p_{3/2})$ levels are characterized by a value of the total angular momentum $\mathbf{F}=\mathbf{J}+\mathbf{I}$, where \mathbf{I} is the total nuclear angular momentum ($I \leq 7$) of a cesium atom pair. The PA excitation of nonrotating ground-state atom pairs, which takes place at large distances, creates a strongly mixed hyperfine-rotational level of the $1_g(6s+6p_{3/2})$ state with $F \sim I \leq 7$. Due to the high density of levels near the dissociation threshold, this PA level can be efficiently coupled to several rotational states of the $v=0$ level of the internal $1_g(6s+6d_{5/2})$ potential curve. The rotational angular momentum $\mathbf{J}=\mathbf{F}-\mathbf{I}$ can reach eigenvalues up to $J=14$ or more. The abrupt cutoff of the observed rotational series at $J=14$ in Fig. 4 occurs as the next rotational levels lie above the $6s+6p_{3/2}$ dissociation limit.

In this Rapid Communication we demonstrated the ability of a broadband ionization procedure to detect most of the

ground-state molecules formed in a cold gas. This approach, which requires only a basic knowledge of the excitation spectrum of the ground state, provides a general method for the search of novel paths for formation of cold molecules by photoassociation. This allowed us to detect deeply bound Cs_2 molecules in the $X^1\Sigma_g^+$ state. The simplicity of the experiment (one-step photoassociation) contrasts with the complexity of the interpretation of the photoassociation process, which involves, rotational, hyperfine, and spin-orbit couplings of four potential curves. The formation process also revealed an unexpected two-photon spontaneous emission cascade responsible for the molecule formation. This scheme

opens the possibility to stimulate the first photon of the cascade to enhance the cold molecule formation rate. In the future such molecules could be accumulated in an optical trap to study collisional processes between cold atoms and molecules in order to assess the efficiency of evaporative cooling, or to investigate ways for achieving controlled chemistry or observing dipolar interactions in ultracold gases.

This work was supported by the “Institut Francilien de Recherche sur les Atomes Froids” (IFRAF). M.A. thanks the EC-Network EMALI.

-
- [1] J. Doyle, B. Friedrich, R. V. Krems, and F. Masnou-Seeuws, *Eur. Phys. J. D* **31**, 149 (2004).
- [2] O. Dulieu, M. Raoult, and E. Tiemann, *J. Phys. B* **39**, 19 (2006).
- [3] R. Krems, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **10**, 4079 (2008).
- [4] R. V. Krems, *Int. Rev. Phys. Chem.* **24**, 99 (2005).
- [5] T. Köhler, K. Góral, and P. S. Julienne, *Rev. Mod. Phys.* **78**, 1311 (2006).
- [6] I. Bloch, J. Dalibard, and W. Zwerger, *Rev. Mod. Phys.* **80**, 885 (2008).
- [7] J. G. Danzl, E. Haller, M. Gustavsson, M. J. Mark, R. Hart, N. Bouloufa, O. Dulieu, H. Ritsch, and H.-C. Nägerl, *Science* **321**, 1062 (2008).
- [8] S. Ospelkaus, A. Pe’Er, K.-K. Ni, J. J. Zirbel, B. Neyenhuis, S. Kotochigova, P. S. Julienne, J. Ye, and D. S. Jin, *Nat. Phys.* **4**, 622 (2008).
- [9] K.-K. Ni, S. Ospelkaus, M. H. G. de Miranda, A. Pe’er, B. Neyenhuis, J. J. Zirbel, S. Kotochigova, P. S. Julienne, D. S. Jin, and J. Ye, *Science* **322**, 231 (2008).
- [10] K. M. Jones, E. Tiesinga, P. D. Lett, and P. S. Julienne, *Rev. Mod. Phys.* **78**, 483 (2006).
- [11] A. N. Nikolov, J. R. Ensher, E. E. Eyler, H. Wang, W. C. Stwalley, and P. L. Gould, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 246 (2000).
- [12] J. M. Sage, S. Sainis, T. Bergeman, and D. DeMille, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 203001 (2005).
- [13] J. Deiglmayr, A. Grochola, M. Repp, K. Mörtilbauer, C. Glück, J. Lange, O. Dulieu, R. Wester, and M. Weidemüller, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 133004 (2008).
- [14] M. Viteau, A. Chotia, M. Allegrini, N. Bouloufa, O. Dulieu, D. Comparat, and P. Pillet, *Science* **321**, 232 (2008).
- [15] M. Vatasescu, O. Dulieu, C. Amiot, D. Comparat, C. Drag, V. Kokouline, F. Masnou-Seeuws, and P. Pillet, *Phys. Rev. A* **61**, 044701 (2000).
- [16] M. Vatasescu, C. M. Dion, and O. Dulieu, *J. Phys. B* **39**, S945 (2006).
- [17] H. M. J. M. Boesten, C. C. Tsai, B. J. Verhaar, and D. J. Heinzen, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 5194 (1996).
- [18] B. Laburthe Tolra, N. Hoang, B. T’Jampens, N. Vanhaecke, C. Drag, A. Crubellier, D. Comparat, and P. Pillet, *Europhys. Lett.* **64**, 171 (2003).
- [19] C. M. Dion, C. Drag, O. Dulieu, B. Laburthe Tolra, F. Masnou-Seeuws, and P. Pillet, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 2253 (2001).
- [20] S. D. Gensemer and P. L. Gould, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 936 (1998).
- [21] A. Fioretti, D. Comparat, A. Crubellier, O. Dulieu, F. Masnou-Seeuws, and P. Pillet, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 4402 (1998).
- [22] U. Diemer, R. Duchowicz, M. Ertel, E. Mehdizadeh, and W. Demtröder, *Chem. Phys. Lett.* **164**, 419 (1989).
- [23] W. Weickenmeier, U. Diemer, M. Wahl, M. Raab, W. Demtröder, and W. Müller, *J. Chem. Phys.* **82**, 5354 (1985).
- [24] M. Raab, G. Höning, W. Demtröder, and C. R. Vidal, *J. Chem. Phys.* **76**, 4370 (1982).
- [25] J. Deiglmayr, M. Aymar, and O. Dulieu (unpublished).
- [26] A. Allouche and M. Aubert-Frecon (private communication).
- [27] J. P. Shaffer, W. Chalupczak, and N. P. Bigelow, *Phys. Rev. A* **63**, 021401(R) (2001).
- [28] A. Fioretti, D. Comparat, C. Drag, T. F. Gallagher, and P. Pillet, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 1839 (1999).
- [29] D. Comparat, C. Drag, B. Laburthe Tolra, A. Fioretti, P. Pillet, A. Crubellier, O. Dulieu, and F. Masnou-Seeuws, *Eur. Phys. J. D* **11**, 59 (2000).

Conclusion générale

Atomes de Rydberg

Nous avons exposé dans cette thèse plusieurs résultats expérimentaux originaux, les atomes de Rydberg froids et le refroidissement laser de la vibration de molécules diatomiques.

Nous avons montré qu'il est possible de contrôler l'efficacité du blocage dipolaire de l'excitation de Rydberg d'une part au voisinage d'une résonance de Förster [Vogt et al., 2006] pour les états $n < 42$ du césium et d'autre part par application d'un champ électrique statique couplant les états np et $(n-1)d$ du césium [Vogt et al., 2007] créant ainsi un dipôle permanent pour chaque atome. Le schéma d'excitation est particulièrement important puisqu'il nous a permis de sonder des interactions dipôle-dipôle à quelques MHz près entre atomes de Rydberg. Le blocage de l'excitation obtenu à résonance Förster est limité dans ce cas à 30% et de l'ordre de 70% en présence d'un champ électrique statique lorsqu'on atteint des nombres quantiques principaux de l'ordre de $n=70$. Ces contributions constituent les premières mises en évidence de l'effet de blocage dipolaire. Pour espérer un blocage total, il faut diminuer la taille de l'échantillon à exciter de manière qu'au plus un atome puisse être excité. Des résultats ont été obtenus récemment par plusieurs groupes [Reetz-Lamour et al., 2008b][Johnson et al., 2008].

L'étude de l'influence des conditions expérimentales sur l'observation du phénomène, comme la puissance et la durée d'excitation, la densité initiale d'atomes ont été étudiées. Deux effets doivent être bien maîtrisés, l'un concerne la saturation de l'excitation par puissance qui masque l'effet de blocage dipolaire et l'autre concerne la présence d'ions au cours de l'excitation qui produit un effet de blocage mais totalement différent de l'effet de blocage dipolaire recherché. Nous avons construit deux modèles pour interpréter ces données. Le premier, développé par Thibault Vogt et décrit dans sa thèse [Vogt, 2006], est basé sur la résolution des équations de la matrice densité, et prend en compte l'atome de Rydberg plus proche voisin dans un modèle de champ moyen. Le second modèle qui est décrit dans cette thèse et rapporté dans [Chotia et al., 2008], relie le phénomène de blocage à la dynamique des nombreux atomes et des ions dans le volume d'excitation. Pour cela nous avons utilisé une méthode dite cinétique qui utilise une équation de taux pour chaque processus. L'algorithme dit Monte Carlo Cinétique qui est utilisé permet d'obtenir un résultat très proche de l'expérience. Nous nous sommes limité à 5000 atomes au plus dans ce travail, qui a un facteur 2 ou 3 près correspond au nombre maximum d'atomes rencontrés dans l'expérience.

La simulation Monte Carlo Cinétique confirme l'importance de l'atome excité plus proche voisin dans le blocage dipolaire. La dynamique spatiale et temporelle des atomes

permet d'observer l'influence des paramètres expérimentaux comme par exemple la puissance et la durée de l'excitation sur la formation d'ions, les collisions ionisantes, qui masquent l'effet de blocage dipolaire. La possibilité d'extraire la position relative des atomes fait également ressortir des corrélations de position entre particules.

La motivation pour l'étude du blocage dipolaire était son application à la réalisation d'une porte logique quantique. C'est dans ce sens que nous avons démarré une collaboration avec le LCFIO à l'Institut d'Optique soutenue par l'IFRAF. Le blocage dipolaire de l'excitation via l'utilisation d'atomes de Rydberg à résonance de Förster a été utilisé pour faire interagir deux atomes de Rydberg chacun dans une pince optique à une distance accordable. L'expérience réalisée à l'Institut d'Optique (collaboration LAC-LCFIO avec Antoine Browaeys et Phillipe Grangier) a permis l'observation d'une excitation collective pour deux atomes avec un atome excité dans un état de Rydberg [Gaetan et al., 2009]. Cet effet est caractérisé par une fréquence de Rabi $\sqrt{2}$ fois plus rapide que dans le cas de l'excitation d'un seul atome. La prochaine étape sera une desexcitation stimulé de l'état collectif excité vers l'état fondamental permettant de transférer la cohérence vers des niveaux hyperfins de l'état fondamental. Cette configuration de deux atomes piégés devrait aussi offrir de nombreuses perspectives dans l'étude d'états de Rydberg comme la formation de molécules Rydberg.

Nous avons montré l'importance des collisions Penning dans la formation d'ions dans un gaz d'atomes de Rydberg de césium ($np3/2$) lorsque $n > 42$. Un taux d'ionisation plus faible est cependant observé pour $n < 42$ variant linéairement avec le nombre d'atomes, contrairement au cas précédant où l'évolution est quadratique. Nous avons montré que le taux d'ionisation pour $n < 42$ n'est pas entièrement interprété en prenant en compte l'ionisation par le corps noir [Viteau et al., 2008b]. Il semble que ce taux soit au moins deux fois plus important que celui qu'on peut calculer théoriquement. Nous avons vu que les photons du rayonnement thermique sont une cause d'ionisation des atomes de Rydberg et de redistribution des états de Rydberg vers des états voisins. Ces effets sont à prendre en compte dès que les expériences ont une durée de plusieurs centaines de nanosecondes. Cependant, les couplages entre les atomes de moments angulaires différents sont un facteur d'ionisation tout aussi important. Nous avons également vu que le transfert radiatif peut être accéléré par le couplage du milieu atomique au champ de photons émis, les photons thermiques déclenchant une superradiance limitée. Nous avons développé un modèle dans lequel des réactions de transfert superradiant accélèrent le transfert vers des potentiels attractifs. Finalement le processus de collisions ionisantes sous l'effet de potentiels dipôle-dipôle à longue portée serait la principale cause de formation d'ions pour des états excités répulsifs pour expliquer l'excès de formation d'ions. Bien que n'ayant pas fait l'objet d'un développement dans cette thèse le transfert résonant d'énergie de type Förster pourrait être modélisé dans le cadre d'un transfert superradiant et pour étudier la dynamique temporelle lorsque les interactions ne sont pas trop importantes (fréquence de Rabi de l'interaction inférieure à l'inverse du temps superradiant).

Le champ de recherche des gaz d'atomes de Rydberg froids reste riche, à la limite de la physique atomique, moléculaire et des plasmas et il offre de multiples directions. La propriété fascinante des atomes de Rydberg reste leur énorme moment dipolaire

électrique. De très nombreuses idées d'expériences présentant des caractères de difficulté important sont envisagés par plusieurs groupes. L'observation d'un régime de plasma neutre corrélé pourrait passer par la mise en place d'un réseau optique permettant de figer la position des atomes comme dans un cristal artificiel avant de les ioniser. Le pas du réseau optique ne correspondant pas à nécessairement à la position d'équilibre des charges dans le plasma corrélé, un effet de chauffage par réorganisation des charges qui pourrait réduire les corrélations entre particules. L'utilisation d'atomes à deux électrons optiquement accessible comme les alcalino-terreux ou l'ytterbium pourrait offrir des configurations intéressantes pour porter un électron dans un état de Rydberg et utiliser l'autre électron pour manipuler l'atome en l'excitant optiquement ou piéger les ions sur une transition optique pour ralentir l'expansion du nuage ionique et le chauffage de l'échantillon. Une autre voie serait de manipuler les atomes de Rydberg dans le cas où des forces répulsives s'exercent entre les atomes. Des propositions ont été faites en ce sens au laboratoire Aimé Cotton. De même l'utilisation d'un réseau optique pour placer les atomes et ensuite les exciter vers des états de Rydberg pourrait permettre d'observer la transition isolant conducteur ainsi que les effets de transfert de charge dans le réseau. Une fois excité (en un temps très court) dans un potentiel de piégeage périodique, les atomes de Rydberg se trouvent à des distances permettant la délocalisation de l'électron de valence. Une ionisation sur un seul site permettrait alors à la charge positive de sauter (ou pas) d'un site à un autre. Une détection par temps de vol sensible à un ion permettrait alors de reconstruire la distribution des sauts et donnerais des informations sur la transition isolant conducteur.

Molécules

Un des résultats essentiels de cette thèse pour les molécules froides est l'utilisation de lasers larges pour la détection et pour le refroidissement de l'énergie interne de vibration de molécules froides. Ces lasers permettent d'exciter plusieurs niveaux de l'état fondamental vers un état électroniquement excité.

L'utilisation d'un laser très large (25cm^{-1}) pour la détection REMPI nous a permis de sonder la présence de molécules de Cs_2 dans des états vibrationnels profonds, $v_X=0$ à 75 du potentiel fondamental $X^1\Sigma_g^+$, en testant différents schémas de photoassociation [Viteau et al., 2009]. Cette méthode va sans doute permettre la mise en évidence de schéma de photoassociation pour des molécules autre que Cs_2 . Cette technique ne nécessite pas de connaissances sur les couplages moléculaires. Seule la voie d'ionisation doit être connue. Le schéma de formation peut ensuite être étudié une fois que des molécules dans un état vibrationnel d'intérêt sont détectées.

La démonstration d'une méthode de pompage optique efficace par une source femtoseconde façonnée en fréquence pour les états vibrationnels profonds de la molécule de Cs_2 nous a permis de former des molécules froides de Cs_2 dans l'état vibrationnel fondamental $v_X=0$ ($X^1\Sigma_g^+$) avec un taux de 10^6 molécules par seconde. Dans notre cas, la cascade radiative spontanée qui est à l'origine des molécules qui peuplent les états vibrationnels profonds du singulet pourrait être stimulée. Le premier photon peut être stimulé via une diode laser à $1.9\mu\text{m}$. L'effet attendu est d'environ un ordre de grandeur sur le taux de formation actuel. Cette méthode de photoassociation suivie d'un pompage optique offre une alternative intéressante au transfert adiabatique stimulé,

qui s'applique au cas d'un gaz dégénéré.

La possibilité d'étendre le pompage optique à d'autres molécules nécessite de satisfaire trois conditions : 1) peupler l'état fondamental (la dispersion des états peuplés va contraindre la largeur de la source) 2) faire le choix d'une source de rayonnement permettant d'atteindre des potentiels excités dont 3) les facteurs de Franck-Condon sont plus favorables lorsque la desexcitation se fait vers un état vibrationnel moins élevé que l'état de départ.

Nous pouvons chercher à résoudre par spectroscopie l'état de rotation des molécules, en utilisant un laser fin spectralement pour le premier étage de la détection REMPI. Le refroidissement rotationnel de Cs_2 par la même méthode, est envisageable en améliorant la résolution spectrale du façonnage [Viteau, 2008] et en utilisant un laser continu.

Une amélioration du dispositif de façonnage de l'impulsion, par l'utilisation d'un modulateur spatial de lumière (collaboration LAC-LCAR avec Béatrice Chatel), vient récemment de permettre la formation des molécules dans des états vibrationnels donné différent de $v_X=0$, à savoir $v_X=1,2$ et 7 ([Sofitikis et al., 2009]). Il devrait également être possible de refroidir la rotation (ou sélectionner un état de rotation).

L'étude des collisions ultra-froides passe par le piégeage des molécules. Le piégeage électrostatique n'est pas possible car le dimère de césium ne possède pas de moment dipolaire permanent. Le piégeage par champ magnétique, mis en place et étudié au laboratoire [Vanhaecke, 2003] sur les molécules de l'état triplet, est inefficace dans l'état singulet (de spin total $S=0$) qui n'est pas piégeable magnétiquement. L'équipe met actuellement en place un piège dipolaire à CO_2 ($10.6\mu\text{m}$) pour piéger les molécules dans l'état singulet. Le très grand décalage avec les transitions vibrationnelles ainsi que la puissance disponible (100W) permet d'obtenir une profondeur de potentiel supérieure à 1mK. Un piège dipolaire à déjà été réalisé au laboratoire [Zahzam, 2005] et a permis l'étude de temps de vie lors de collisions dans le piège entre des atomes et des molécules dans l'état triplet [Zahzam et al., 2006]. Cette étude a démarré avec Dimitris Sofitikis et Ridha Horchani.

Le piège optique permettra de réaliser une photoassociation de Cs_2 et le pompage vers l'état fondamental $v_X=0$ ($X^1\Sigma_{g^+}$) en continu ce qui fera gagner deux ordres de grandeurs dans le taux de molécules formées. En y associant l'ajout d'un laser pour stimuler le premier photon de la cascade c'est au total une augmentation de trois ordres de grandeurs du taux de molécules formées qui est attendu. Ces expériences permettront d'étudier des collisions atomes molécules et molécules molécules avec des perspectives sur la formation de trimères et ouvriront peut être la voie du refroidissement évaporatif de Cs_2 dans l'état fondamental.

Annexe A

Superradiance

Cette annexe contient des calculs donnés par Pierre Pillet.

A.1 Introduction de l'équation pilote

On établit l'équation pilote dans l'approximation de Born-Markov. On considère l'évolution de N atomes identiques A_i sous l'effet de leur interaction avec le vide de rayonnement R . Le hamiltonien du système $A + R$ est donné par :

$$H = H_R + \sum_{i=1}^N [H_{A_i} + H_{A_i R}] \quad (\text{A.1})$$

où : H_{A_i} est le hamiltonien d'un atome i seul, H_R celui du vide de rayonnement couplé aux différents atomes i et $H_{A_i R}$ le hamiltonien d'interaction correspondant au couplage entre A_i et R .

A.1.1 Equation d'évolution

On veut maintenant établir les équations qui vont régir l'évolution des atomes décrit par une matrice densité réduite, σ . L'évolution de ρ est obtenue avec l'équation :

$$i\hbar \frac{d\rho}{dt} = [H, \rho] \quad (\text{A.2})$$

qui conduit à écrire pour l'évolution de σ , l'équation :

$$i\hbar \frac{d\sigma}{dt} = Tr_R [H, \rho] \quad (\text{A.3})$$

En remarquant que : $Tr_R [H_R, \rho] = 0$ et $Tr_R [H_A, \rho] = [H_A, \sigma]$, l'équation se limite à :

$$i\hbar \frac{d\sigma}{dt} = [H_A, \sigma] + Tr_R [H_{AR}, \rho] \quad (\text{A.4})$$

On se place en représentation d'interaction en faisant le changement de fonction :

$$\tilde{C} = \exp(i(H_A + H_R)t/\hbar) C \exp(-i(H_A + H_R)t/\hbar) \quad (\text{A.5})$$

Ce qui donne pour l'équation d'évolution de la matrice densité ρ :

$$i\hbar \frac{d\tilde{\rho}(t)}{dt} = \left[\tilde{H}_{AR}(t), \tilde{\rho}(t) \right] \quad (\text{A.6})$$

qui s'écrit aussi :

$$i\hbar \tilde{\rho}(t) = \int_0^t \left[\tilde{H}_{AR}(t'), \tilde{\rho}(t') \right] dt' \quad (\text{A.7})$$

qui permet d'écrire l'évolution de $d\tilde{\rho}(t)$ en fonction des instants τ allant de 0 à t :

$$\frac{d\tilde{\rho}(t)}{dt} = -\frac{i}{\hbar} \left[\tilde{H}_{AR}(t), \tilde{\rho}(0) \right] - \frac{1}{\hbar^2} \int_0^t \left[\tilde{H}_{AR}(t), \left[\tilde{H}_{AR}(t-\tau), \tilde{\rho}(t-\tau) \right] \right] d\tau \quad (\text{A.8})$$

Pour ce qui concerne la matrice réduite σ , la trace du premier commutateur est nul car $\tilde{\rho}(0)$ est diagonal et \tilde{H}_{AR} non diagonal, et on écrit :

$$i\hbar \frac{d\tilde{\sigma}(t)}{dt} = -\frac{1}{\hbar^2} \text{Tr}_R \int_0^t \left[\tilde{H}_{AR}(t), \left[\tilde{H}_{AR}(t-\tau), \tilde{\rho}(t-\tau) \right] \right] d\tau \quad (\text{A.9})$$

A.2 Traitement de l'émission spontanée

A.2.1 Hamiltonien d'interaction

Nous allons traiter le cas de l'émission spontanée. Le hamiltonien d'interaction considérant un atome à deux niveaux couplé avec le champ quantifié est donné par :

$$H_{AR} = -\sum_{i=1}^N \sum_l i\varepsilon_l \langle 2 | \vec{d} \cdot \vec{e}_l | 1 \rangle \hat{a}_l \exp\left(i\vec{k} \cdot \hat{R}_i\right) r_i^+ + h.c. \quad (\text{A.10})$$

avec \hat{a}_l et \hat{a}_l^+ les opérateurs de création et d'annihilation d'un photon de vecteur d'onde \vec{k} et de polarisation \vec{l} . Les opérateurs atomiques qui excite r_i^+ et desexcite r_i^- un atome i sont donnés par :

$$r_i^+ = |2, i\rangle \langle 1, i| \quad (\text{A.11})$$

$$r_i^- = |1, i\rangle \langle 2, i| \quad (\text{A.12})$$

De plus on a $\varepsilon_l = \sqrt{\frac{\hbar\omega_l}{2\varepsilon_0 L^3}}$ qui représente le champ électrique par photon, où L^3 est le volume dans lequel le champ est quantifié. L'expression du hamiltonien demande de sommer sur tous les modes du rayonnement $l = \left\{ \vec{k}, \vec{e}_l \right\}$. Les termes non-résonnants sont négligés dans le cadre de l'approximation du champ tournant. Leur prise en compte modifie l'hamiltonien comme suit :

$$H_{AR}^{NR} = -\sum_{i=1}^N \sum_l i\varepsilon_l \langle 2 | \vec{d} \cdot \vec{e}_l | 1 \rangle \left[\hat{a}_l \exp\left(i\vec{k} \cdot \hat{R}_i\right) - \hat{a}_l^+ \exp\left(-i\vec{k} \cdot \hat{R}_i\right) \right] r_i^+ + h.c. \quad (\text{A.13})$$

En représentation d'interaction on utilise les propriétés suivantes (avec b et b^+ des opérateurs qui sont appliqués au champ ou aux atomes) :

$$\exp(iHt/\hbar)b \exp(-iHt/\hbar) = \exp(-iwt)b \quad (\text{A.14})$$

$$\exp(iHt/\hbar)b^+ \exp(-iHt/\hbar) = \exp(iwt)b^+ \quad (\text{A.15})$$

Ce qui nous permet d'écrire l'hamiltonien en représentation d'interaction

$$\tilde{H}_{AR} = -\sum_{i=1}^N \sum_l \varepsilon_l \langle 2 | \vec{d} \cdot \vec{e}_l | 1 \rangle \exp(-ickt) \hat{a}_l \exp(ick_0 t) \exp(i\vec{k} \cdot \vec{R}_i) r_i^\dagger + hc. \quad (\text{A.16})$$

A.2.1.1 Approximation de Born-Markov

Nous supposons qu'initialement ($t = 0$) le champ électromagnétique correspond au vide de rayonnement $|0\rangle_{RR} \langle 0|$. Nous admettons de plus que la matrice densité à l'instant initial, $\tilde{\rho}(0)$, est factorisable, c'est-à-dire qu'il n'existe aucune corrélation entre le système atomique et le vide de photons :

$$\tilde{\rho}(0) = \tilde{\sigma}(0) \otimes |0\rangle_{RR} \langle 0| \quad (\text{A.17})$$

Pour aller plus loin nous faisons deux approximations :

- Approximation de Born, qui consiste à considérer qu'au cours de l'évolution du système le champ électromagnétique vu par l'atome correspond toujours au vide de photons. On néglige également toute corrélation pouvant apparaître entre le système atomique et le vide de photons :

$$\tilde{\rho}(t) = \tilde{\sigma}(t) \otimes |0\rangle_{RR} \langle 0| \quad (\text{A.18})$$

- Approximation de Markov ou approximation de mémoire court (typiquement si le temps de corrélation entre dipôles L/c est plus petit que le temps de l'émission spontanée) : dans l'équation d'évolution qui avec l'approximation de Markov s'écrit :

$$\frac{d\tilde{\sigma}(t)}{dt} = -\frac{1}{\hbar^2} Tr_{RR} \int_0^t \left[\tilde{H}_{AR}(t), \left[\tilde{H}_{AR}(t-\tau), \tilde{\sigma}(t-\tau) \otimes |0\rangle_{RR} \langle 0| \right] \right] d\tau \quad (\text{A.19})$$

on remplace $\tilde{\sigma}(t-\tau)$ par $\tilde{\sigma}(t)$, ce qui conduit à :

$$\frac{d\tilde{\sigma}(t)}{dt} = -\frac{1}{\hbar^2} Tr_{RR} \int_0^t \left[\tilde{H}_{AR}(t), \left[\tilde{H}_{AR}(t-\tau), \tilde{\sigma}(t) \otimes |0\rangle_{RR} \langle 0| \right] \right] d\tau \quad (\text{A.20})$$

A.2.1.2 Equation pilote pour plusieurs atomes

La trace sur le rayonnement est prise pour le champ du vide de photons, les seuls produits d'opérateurs non nuls sont $\langle a \cdot a^\dagger \rangle = 1$. En remplaçant dans l'équation d'évolution de Born-Markov, le hamiltonien d'interaction par son expression, on obtient l'équation :

$$\begin{aligned} \frac{d\tilde{\sigma}(t)}{dt} = & -\frac{1}{\hbar^2} \sum_{i,j=1, i \neq j}^N \sum_l \frac{\hbar ck}{2\varepsilon_0 L^3} \left| \langle 2 | \vec{d} \cdot \vec{e}_l | 1 \rangle \right|^2 \\ & \int_0^t [r_i^\dagger r_j^- \tilde{\sigma}(t) \exp(i\vec{k} \cdot (\vec{R}_i - \vec{R}_j)) \exp(i(\omega_0 - ck)\tau) \\ & + \tilde{\sigma}(t) r_i^\dagger r_j^- \exp(i\vec{k} \cdot (\vec{R}_i - \vec{R}_j)) \exp(-i(\omega_0 - ck)\tau) \\ & - 2r_i^- \tilde{\sigma}(t) r_j^\dagger \exp(-i\vec{k} \cdot (\vec{R}_i - \vec{R}_j)) \cos((\omega_0 - ck)\tau)] d\tau \end{aligned} \quad (\text{A.21})$$

On remplace :

$$\sum_l |\vec{d} \cdot \vec{e}_l|^2 \equiv \left(\frac{L}{2\pi}\right)^3 \int k^2 dk d\Omega_{\vec{k}} \left(|\vec{d} \cdot \vec{e}_{l_1}|^2 + |\vec{d} \cdot \vec{e}_{l_2}|^2 \right) \quad (\text{A.22})$$

où \vec{e}_{l_1} et \vec{e}_{l_2} sont deux polarisations orthogonales pour le mode \vec{k} : $|\vec{d} \cdot \vec{e}_{l_1}|^2 + |\vec{d} \cdot \vec{e}_{l_2}|^2 = |\vec{d}|^2 - \left| \frac{\vec{d} \cdot \vec{k}}{k} \right|^2$. L'intégration angulaire $\int \left[|\vec{d}|^2 - \left| \frac{\vec{d} \cdot \vec{k}}{k} \right|^2 \right] d\Omega_{\vec{k}} = 2\pi |\vec{d}|^2 (2 - \int_0^\pi \cos^2 \theta \sin \theta d\theta) = \frac{8\pi}{3} |\vec{d}|^2$ nous permet d'écrire :

$$\sum_l |\vec{d} \cdot \vec{e}_l|^2 \equiv \left(\frac{L}{2\pi}\right)^3 \frac{8\pi}{3} |\vec{d}|^2 \int k^2 dk \quad (\text{A.23})$$

Pour t "grand", on peut considérer que :

$$\int_0^{t \approx \infty} [\exp i (ck \mp \omega_0) \tau] d\tau = \frac{\pi}{c} \delta \left(k \mp \frac{\omega_0}{c} \right) \pm \frac{i}{c} PP \frac{1}{k \mp \frac{\omega_0}{c}} \quad (\text{A.24})$$

$$\begin{aligned} \frac{d\tilde{\sigma}(t)}{dt} &= -\frac{1}{\hbar^2} \sum_l \frac{\hbar ck}{2\varepsilon_0 L^3} \left| \langle 2 | \vec{d} \cdot \vec{e}_l | 1 \rangle \right|^2 \\ &\int_0^t \left[[R_{\vec{k}}^+ R_{\vec{k}}^-, \tilde{\sigma}(t)]_+ \cos((\omega_0 - ck) \tau) \right. \\ &\quad - 2R_{\vec{k}}^- \tilde{\sigma}(t) R_{\vec{k}}^+ \cos((\omega_0 - ck) \tau) \\ &\quad \left. + i[R_{\vec{k}}^+ R_{\vec{k}}^-, \tilde{\sigma}(t)] \sin((\omega_0 - ck) \tau) \right] d\tau \end{aligned} \quad (\text{A.25})$$

avec :

$$\begin{aligned} R_{\vec{k}}^+ &= \sum_{i=1}^N r_i^+ \exp(i\vec{k} \cdot \hat{R}_i) \\ R_{\vec{k}}^- &= \sum_{i=1}^N r_i^- \exp(-i\vec{k} \cdot \hat{R}_i) \end{aligned} \quad (\text{A.26})$$

A.2.2 Équation de Dicke

On néglige le terme imaginaire de l'équation pilote. On pose :

$$\Gamma = \frac{2}{\hbar^2} \sum_l \frac{\hbar \omega_l}{2\varepsilon_0 L^3} |\vec{d} \cdot \vec{e}_l|^2 \frac{\pi}{c} \delta \left(k - \frac{\omega_{12}}{c} \right) = \left(\frac{\omega_{12}}{c} \right)^3 \frac{|\vec{d}|^2}{3\pi\varepsilon_0 \hbar} \quad (\text{A.27})$$

et on a :

$$\frac{d\tilde{\sigma}(t)}{dt} = -\frac{\Gamma}{2} \left[[R_{\vec{k}_0}^+ R_{\vec{k}_0}^-, \tilde{\sigma}(t)]_+ - 2R_{\vec{k}_0}^- \tilde{\sigma}(t) R_{\vec{k}_0}^+ \right] \quad (\text{A.28})$$

On se place maintenant dans la base des états de Dicke $\{r, m, \alpha\}$. $r = \frac{N}{2}$ correspond aux états symétriques, m est l'inversion de population divisée par 2, α est la dégénérescence, égale à 1 pour les états symétriques. On a les relations :

$$\left[R_{\vec{k}_0}^+, R_{\vec{k}_0}^- \right] = 2R_{\vec{k}_0}^{(3)} \quad (\text{A.29})$$

$$\left[R_{\vec{k}_0}^+, R_{\vec{k}_0}^{(3)} \right] = -R_{\vec{k}_0}^+ \quad (\text{A.30})$$

Les états de Dicke sont états propres de :

$$R_{\vec{k}_0}^{(3)} \text{ et de } R_{\vec{k}_0}^2 = R_{\vec{k}_0}^{(3)2} + \frac{1}{2} \left[R_{\vec{k}_0}^+ R_{\vec{k}_0}^- + R_{\vec{k}_0}^- R_{\vec{k}_0}^+ \right].$$

On a :

$$R_{\vec{k}_0}^{(3)} |r, m, \alpha\rangle = m |r, m, \alpha\rangle \quad (\text{A.31})$$

$$R_{\vec{k}_0}^2 |r, m, \alpha\rangle = r(r+1) |r, m, \alpha\rangle \quad (\text{A.32})$$

On se place dans un petit volume tel que tous les atomes voient le même champ, on a :

$$\left\langle r = \frac{N}{2}, m \left| R_{\vec{k}_0}^\pm \right| r = \frac{N}{2}, m' \right\rangle = \sqrt{(r \pm m)(r \mp m + 1)} \delta_{m', m \pm 1} \quad (\text{A.33})$$

Les équation d'évolution peut s'écrire :

$$\frac{d\sigma_{m,m}(t)}{dt} = -\frac{\Gamma}{2} \left(\frac{N}{2} + m \right) \left(\frac{N}{2} - m + 1 \right) \sigma_{m,m}(t) \quad (\text{A.34})$$

$$+ \frac{\Gamma}{2} \left(\frac{N}{2} - m \right) \left(\frac{N}{2} + m + 1 \right) \sigma_{m+1,m+1}(t) \quad (\text{A.35})$$

La partie imaginaire correspond dans l'approximation de Dicke à un opérateur déplacement collectif Δ , diagonal dans la base des états m . On a l'équation d'évolution pour l'inver-

sion de population :

$$\langle m \rangle = \sum_{m=-N/2}^{N/2} m \sigma_{m,m} \quad (\text{A.36})$$

$$\begin{aligned} \frac{d\langle m \rangle}{dt} = & \sum_{m=-N/2}^{N/2} \left[-\frac{\Gamma}{2} \left(\frac{N}{2} + m \right) \left(\frac{N}{2} - m + 1 \right) m \sigma_{m,m}(t) \right. \\ & \left. + \frac{\Gamma}{2} \left(\frac{N}{2} + m + 1 \right) \left(\frac{N}{2} - (m + 1) + 1 \right) ((m + 1) - 1) \sigma_{m+1,m+1}(t) \right] \end{aligned} \quad (\text{A.37})$$

$$\begin{aligned} \frac{d\langle m \rangle}{dt} = & \sum_{m=-N/2}^{N/2} \left[-\frac{\Gamma}{2} \left(\frac{N}{2} + m \right) \left(\frac{N}{2} - m + 1 \right) m \sigma_{m,m}(t) \right] \\ & + \sum_{m'=-N/2}^{N/2} \left[\frac{\Gamma}{2} \left(\frac{N}{2} + m' \right) \left(\frac{N}{2} - m' + 1 \right) (m' - 1) \sigma_{m',m'}(t) \right] \end{aligned} \quad (\text{A.38})$$

$$\frac{d\langle m \rangle}{dt} = - \sum_{m'=-N/2}^{N/2} \left[\frac{\Gamma}{2} \left(\frac{N}{2} + m' \right) \left(\frac{N}{2} - m' + 1 \right) \sigma_{m',m'}(t) \right] \quad (\text{A.39})$$

$$\frac{d\langle m \rangle}{dt} = -\frac{\Gamma}{2} \left(\frac{N}{2} + m \right) \left(\frac{N}{2} - m + 1 \right) \quad (\text{A.40})$$

$$\frac{d\langle m \rangle}{dt} = -\frac{\Gamma}{2} \left[\frac{N}{2} \left(\frac{N}{2} + 1 \right) + \langle m \rangle - \langle m^2 \rangle \right] \quad (\text{A.41})$$

Pour résoudre cette équation, on pose $\langle m^2 \rangle = \langle m \rangle^2$, ce qui donne :

$$\frac{d\langle m \rangle}{dt} = -\frac{\Gamma}{2} \left(\frac{N}{2} + \langle m \rangle \right) \left(\frac{N}{2} - \langle m \rangle + 1 \right) \quad (\text{A.42})$$

$$\frac{d\langle m \rangle}{\left(\frac{N}{2} + \langle m \rangle \right)} + \frac{d\langle m \rangle}{\left(\frac{N}{2} - \langle m \rangle + 1 \right)} = -\frac{\Gamma}{2} (N + 1) dt \quad (\text{A.43})$$

$$\ln \left(\frac{\frac{N}{2} + \langle m \rangle}{N} \frac{1}{\left(\frac{N}{2} - \langle m \rangle + 1 \right)} \right) = -\frac{\Gamma}{2} (N + 1) t \quad (\text{A.44})$$

en supposant qu'initialement les atomes sont tous excités. On a :

$$\langle m \rangle (1 + N \exp(-\Gamma (N + 1) t)) = N \left[\left(\frac{N}{2} + 1 \right) \exp \left(-\frac{\Gamma}{2} (N + 1) t \right) - \frac{1}{2} \right] \quad (\text{A.45})$$

$$\langle m \rangle = N \left[\left(\frac{N}{2} + 1 \right) \exp \left(-\frac{\Gamma}{2} (N + 1) t \right) - \frac{1}{2} \right] \frac{1}{\left(1 + N \exp \left(-\frac{\Gamma}{2} (N + 1) t \right) \right)} \quad (\text{A.46})$$

A.2.3 Champ moyen

On considère une autre approche qui est celle du champ moyen. On pose :

$$\sigma_i = \text{Tr}_{j \neq i} r \tilde{\sigma} \quad (\text{A.47})$$

$$\sigma_{ij} = \text{Tr}_{l \neq i, j} r \tilde{\sigma} \quad (\text{A.48})$$

ce qui donne pour l'équation d'évolution :

$$\frac{d\tilde{\sigma}(t)}{dt} = -\frac{\Gamma}{2} \left[[R_{k_0}^+ R_{k_0}^-, \tilde{\sigma}(t)]_+ - 2R_{k_0}^- \tilde{\sigma}(t) R_{k_0}^+ \right] \quad (\text{A.49})$$

$$\begin{aligned} \frac{d\sigma_i(t)}{dt} &= -\frac{\Gamma}{2} \left[[r_i^+ r_i^-, \sigma_i(t)]_+ - 2r_i^- \sigma_i(t) r_i^+ \right] \quad (\text{A.50}) \\ &\quad - \sum_{j \neq i} \frac{\Gamma}{2} \text{Tr} \left[[(r_j^+ r_i^- + r_i^+ r_j^-), \sigma_{ij}(t)]_+ - 2(r_i^- \sigma_{ij}(t) r_j^+ + r_j^- \sigma_{ij}(t) r_i^+) \right] \end{aligned}$$

On a :

$$\begin{aligned} \frac{d\sigma_i(t)}{dt} &= -\frac{\Gamma}{2} \left[[r_i^+ r_i^-, \sigma_i(t)]_+ - 2r_i^- \sigma_i(t) r_i^+ \right] \quad (\text{A.51}) \\ &\quad - \sum_{j \neq i} \frac{\Gamma}{2} \left[[r_i^+ \sigma_{21}^{(j)}(t) + r_i^- \sigma_{12}^{(j)}(t), \sigma_i(t)]_+ - 2 \left(r_i^- \sigma_i(t) \sigma_{12}^{(j)}(t) + \sigma_i(t) r_i^+ \sigma_{21}^{(j)}(t) \right) \right] \end{aligned}$$

$$\frac{d\sigma_i(t)}{dt} = -\frac{\Gamma}{2} \left[[r_i^+ r_i^-, \sigma_i(t)]_+ - 2r_i^- \sigma_i(t) r_i^+ \right] \quad (\text{A.52})$$

$$- \sum_{j \neq i} \frac{\Gamma}{2} \left[r_i^+ \sigma_{21}^{(j)}(t) - r_i^- \sigma_{12}^{(j)}(t), \sigma_i(t) \right] \quad (\text{A.53})$$

$$(\text{A.54})$$

On a le système d'équations :

$$\frac{d\sigma_{22}^{(i)}(t)}{dt} = -\Gamma \sigma_{22}^{(i)}(t) - \sum_{j \neq i} \frac{\Gamma}{2} \left[\sigma_{12}^{(i)}(t) \sigma_{21}^{(j)}(t) + \sigma_{21}^{(i)}(t) \sigma_{12}^{(j)}(t) \right] \quad (\text{A.55})$$

$$\frac{d\sigma_{12}^{(i)}(t)}{dt} = -\frac{\Gamma}{2} \sigma_{12}^{(i)}(t) + \sum_{j \neq i} \frac{\Gamma}{2} \left[\sigma_{22}^{(i)}(t) - \sigma_{11}^{(i)}(t) \right] \sigma_{12}^{(j)}(t) \quad (\text{A.56})$$

On fait l'hypothèse de champ moyen qui consiste à écrire :

$$\sigma_{12}^{(j)}(t) = \sigma_{12}^{(i)}(t) \quad (\text{A.57})$$

On a alors le système d'équations :

$$\frac{d\sigma_{22}^{(i)}(t)}{dt} = -\Gamma \sigma_{22}^{(i)}(t) - (N-1)\Gamma \left| \sigma_{12}^{(i)}(t) \right|^2 \quad (\text{A.58})$$

$$\frac{d \left| \sigma_{12}^{(i)}(t) \right|^2}{dt} = -\Gamma \left| \sigma_{12}^{(i)}(t) \right|^2 + \Gamma(N-1) \left[2\sigma_{22}^{(i)}(t) - 1 \right] \left| \sigma_{12}^{(i)}(t) \right|^2 \quad (\text{A.59})$$

Pour que le système traite l'effet collectif, il faut considérer l'émission du premier photon et prendre :

$$\left| \sigma_{12}^{(i)}(0) \right|^2 = \frac{1}{N} \quad (\text{A.60})$$

$$\sigma_{22}^{(i)}(0) = 1 \quad (\text{A.61})$$

A.3 Interaction dipôle-dipôle

On a négligé jusque là la partie imaginaire. Nous allons traiter plus en détails la répartition des atomes. On part de l'équation :

$$\begin{aligned} \frac{d\tilde{\sigma}(t)}{dt} = & -\frac{1}{\hbar^2} \sum_{\vec{k}l} \frac{\hbar ck}{2\varepsilon_0 L^3} \left| \langle 2 | \vec{d} \cdot \vec{e}_l | 1 \rangle \right|^2 \\ & \int_0^t \left[[R_{\vec{k}}^+ R_{\vec{k}}^-, \tilde{\sigma}(t)]_+ \cos((\omega_0 - ck)\tau) \right. \\ & - 2R_{\vec{k}}^- \tilde{\sigma}(t) R_{\vec{k}}^+ \cos((\omega_0 - ck)\tau) \\ & \left. + i[R_{\vec{k}}^+ R_{\vec{k}}^-, \tilde{\sigma}(t)] \sin((\omega_0 - ck)\tau) \right] d\tau \end{aligned} \quad (\text{A.62})$$

On change la somme discrète sur \vec{k} par une intégrale ($\sum_{\vec{k}} = (\frac{L}{2\pi})^3 \int d^3\vec{k}$) et on développe les $R_{\vec{k}}^\pm$

$$\begin{aligned} \frac{d\tilde{\sigma}(t)}{dt} = & -\frac{1}{\hbar^2} \frac{1}{8\pi^3} \sum_l \sum_{i,j} \int \frac{\hbar ck}{2\varepsilon_0} \left| \langle 2 | \vec{d} \cdot \vec{e}_l | 1 \rangle \right|^2 \\ & \int_0^t \left[[r_i^+ r_j^-, \tilde{\sigma}(t)]_+ \exp\left(i\vec{k} \cdot (\vec{R}_i - \vec{R}_j)\right) \cos((\omega_0 - ck)\tau) \right. \\ & - 2r_j^- \tilde{\sigma}(t) r_i^+ \exp\left(i\vec{k} \cdot (\vec{R}_i - \vec{R}_j)\right) \cos((\omega_0 - ck)\tau) \\ & \left. + i[r_i^+ r_j^-, \tilde{\sigma}(t)] \exp\left(i\vec{k} \cdot (\vec{R}_i - \vec{R}_j)\right) \sin((\omega_0 - ck)\tau) \right] d\tau d^3\vec{k} \end{aligned} \quad (\text{A.63})$$

Avant d'aller plus loin nous allons compléter ces équations en ajoutant les termes qui correspondent à la partie du champ non résonnant (On remplace dans l'équation ci-dessus les opérateurs de création par des opérateurs d'annihilation et inversement.

On change ω_0 en $-\omega_0$). Il s'agit de :

$$\begin{aligned} \frac{d\tilde{\sigma}^{NR}(t)}{dt} &= -\frac{1}{\hbar^2} \frac{1}{8\pi^3} \sum_l \sum_{i,j} \int \frac{\hbar ck}{2\varepsilon_0} \left| \langle 2 | \vec{d} \cdot \vec{e}_l | 1 \rangle \right|^2 \\ &\int_0^t \left[[r_i^- r_j^+, \tilde{\sigma}(t)]_+ \exp \left(i\vec{k} \cdot \left(\vec{R}_i - \vec{R}_j \right) \right) \cos \left((-\omega_0 - ck) \tau \right) \right. \\ &- 2r_j^+ \tilde{\sigma}(t) r_i^- \exp \left(i\vec{k} \cdot \left(\vec{R}_i - \vec{R}_j \right) \right) \cos \left((-\omega_0 - ck) \tau \right) \\ &\left. + i[r_i^- r_j^+, \tilde{\sigma}(t)] \exp \left(i\vec{k} \cdot \left(\vec{R}_i - \vec{R}_j \right) \right) \sin \left((-\omega_0 - ck) \tau \right) \right] d\tau d^3\vec{k} \end{aligned} \quad (\text{A.64})$$

On choisit l'axe des z suivant $\vec{R}_i - \vec{R}_j$, ($\vec{e}_z = (\vec{R}_i - \vec{R}_j) / |\vec{R}_i - \vec{R}_j|$). On considère l'émission suivant une direction \vec{k} , caractérisée par les angles θ' et φ' , et l'orientation du dipôle \vec{d} est caractérisé par les angles θ et φ . La projection de \vec{k} dans le référentiel fixe ($\vec{e}_x, \vec{e}_y, \vec{e}_z$) s'écrit $\vec{k}_{labo} = -\cos \theta' \cos \varphi' \vec{e}_x - \cos \theta' \sin \varphi' \vec{e}_y + \sin \theta' \vec{e}_z$, la projection est similaire pour \vec{d} avec les angles correspondant. On note :

$$\vec{k} \cdot \left(\vec{R}_i - \vec{R}_j \right) = k R_{ij} \cos \theta' \quad (\text{A.65})$$

$$\sum_l \left| \langle 2 | \vec{d} \cdot \vec{e}_l | 1 \rangle \right|^2 = \left| \langle 2 | \vec{d} | 1 \rangle \right|^2 - \left| \langle 2 | \frac{\vec{d} \cdot \vec{k}}{k} | 1 \rangle \right|^2 \quad (\text{A.66})$$

$$\left| \langle 2 | \frac{\vec{d} \cdot \vec{k}}{k} | 1 \rangle \right|^2 = \left| \langle 2 | \vec{d} | 1 \rangle \right|^2 (\cos \theta \cos \theta' + \sin \theta \sin \theta' \cos (\varphi - \varphi'))^2 \quad (\text{A.67})$$

On intègre sur τ :

$$\begin{aligned} \frac{d\tilde{\sigma}(t)}{dt} &= -\frac{1}{\hbar^2} \frac{1}{8\pi^3} \sum_{i,j} \int \frac{\hbar ck}{2\varepsilon_0} \left| \langle 2 | \vec{d} | 1 \rangle \right|^2 \\ &\left(1 - (\cos \theta \cos \theta' + \sin \theta \sin \theta' \cos (\varphi - \varphi'))^2 \right) \\ &\left[[r_i^+ r_j^-, \tilde{\sigma}(t)]_+ - 2r_j^- \tilde{\sigma}(t) r_i^+ \right] \exp (ik R_{ij} \cos \theta') \frac{\pi}{c} \delta (k - k_0) \\ &+ i[r_i^+ r_j^-, \tilde{\sigma}(t)] \exp (ik R_{ij} \cos \theta') \frac{1}{c} PP \frac{1}{k - k_0} \left] k^2 dk \sin \theta' d\theta' d\varphi' \end{aligned} \quad (\text{A.68})$$

On fait le changement de variable $u = \cos \theta'$ et on intègre sur $\int_0^{2\pi} d\phi'$ (d'où le terme π après le dipôle)

$$\begin{aligned} \frac{d\tilde{\sigma}(t)}{dt} &= -\frac{1}{\hbar^2} \frac{1}{8\pi^3} \sum_{i,j} \int_{k=0}^{+\infty} \int_{u=-1}^{+1} \frac{\hbar ck}{2\varepsilon_0} \left| \langle 2 | \vec{d} | 1 \rangle \right|^2 \pi \\ &(1 + \cos^2 \theta + (1 - 3 \cos^2 \theta) u^2) \\ &\left[[r_i^+ r_j^-, \tilde{\sigma}(t)]_+ - 2r_j^- \tilde{\sigma}(t) r_i^+ \right] \exp (ik R_{ij} u) \frac{\pi}{c} \delta (k - k_0) \\ &+ i[r_i^+ r_j^-, \tilde{\sigma}(t)] \exp (ik R_{ij} u) \frac{1}{c} PP \frac{1}{k - k_0} \left] k^2 dk du \end{aligned} \quad (\text{A.69})$$

Si on ajoute la contribution de termes non-résonnants, on a :

$$\begin{aligned}
\frac{d\tilde{\sigma}^{NR}(t)}{dt} &= -\frac{1}{\hbar^2} \frac{1}{8\pi^3} \sum_{i,j} \int_{k=0}^{+\infty} \int_{u=-1}^{+1} \frac{\hbar ck}{2\varepsilon_0} \left| \langle 2 | \vec{d} | 1 \rangle \right|^2 \pi \\
&\quad (1 + \cos^2 \theta + (1 - 3 \cos^2 \theta) u^2) \\
&\quad \left[[r_i^- r_j^+, \tilde{\sigma}(t)]_+ - 2r_j^+ \tilde{\sigma}(t) r_i^- \exp(ikR_{ij}u) \frac{\pi}{c} \delta(k + k_0) \right. \\
&\quad \left. + i[r_i^- r_j^+, \tilde{\sigma}(t)] \exp(ikR_{ij}u) \frac{1}{c} PP \frac{1}{k + k_0} \right] k^2 dk du \quad (A.70)
\end{aligned}$$

On peut écrire en changeant k en $-k$ dans l'intégrale :

$$\begin{aligned}
\frac{d\tilde{\sigma}^{NR}(t)}{dt} &= -\frac{1}{\hbar^2} \frac{1}{8\pi^3} \sum_{i,j} \int_{k=-\infty}^0 \int_{u=-1}^{+1} \frac{\hbar ck}{2\varepsilon_0} \left| \langle 2 | \vec{d} | 1 \rangle \right|^2 \pi \\
&\quad (1 + \cos^2 \theta + (1 - 3 \cos^2 \theta) u^2) \\
&\quad \left[[r_i^- r_j^+, \tilde{\sigma}(t)]_+ - 2r_j^+ \tilde{\sigma}(t) r_i^- \exp(-ikR_{ij}u) \frac{\pi}{c} \delta(-k + k_0) \right. \\
&\quad \left. + i[r_i^- r_j^+, \tilde{\sigma}(t)] \exp(-ikR_{ij}u) \frac{1}{c} PP \frac{1}{k - k_0} \right] k^2 dk du \quad (A.71)
\end{aligned}$$

En utilisant le fait que les r_i^\pm commutent avec les r_j^\pm et en intervertissant les indices i et j (ce qui change u en $-u$), on obtient :

$$\begin{aligned}
\frac{d\tilde{\sigma}^{NR}(t)}{dt} &= -\frac{1}{\hbar^2} \frac{1}{8\pi^3} \sum_{i,j} \int_{k=-\infty}^0 \int_{u=-1}^{+1} \frac{\hbar ck}{2\varepsilon_0} \left| \langle 2 | \vec{d} | 1 \rangle \right|^2 \pi \\
&\quad (1 + \cos^2 \theta + (1 - 3 \cos^2 \theta) u^2) \\
&\quad \left[[r_i^+ r_j^-, \tilde{\sigma}(t)]_+ - 2r_j^- \tilde{\sigma}(t) r_i^+ \exp(ikR_{ij}u) \frac{\pi}{c} \delta(k - k_0) \right. \\
&\quad \left. + i[r_i^+ r_j^-, \tilde{\sigma}(t)] \exp(ikR_{ij}u) \frac{1}{c} PP \frac{1}{k - k_0} \right] k^2 dk du \quad (A.72)
\end{aligned}$$

On fera de même pour la partie résonnante, on néglige pour le terme contenant la partie principale, le cas où $i = j$, qui va correspondre à un déplacement des niveaux que l'on intègre dans l'hamiltonien du système à deux niveaux. On a en prenant en compte partie résonnante et non-résonnante :

$$\begin{aligned}
\frac{d\tilde{\sigma}(t)}{dt} &= -\frac{\Gamma}{2} \sum_i \left[[r_i^+ r_i^-, \tilde{\sigma}(t)]_+ - 2r_i^- \tilde{\sigma}(t) r_i^+ \right] \\
&\quad - \frac{1}{\hbar^2} \frac{1}{8\pi^3} \sum_{i \neq j} \int_{k=-\infty}^{+\infty} \int_{u=-1}^{+1} \frac{\hbar ck}{2\varepsilon_0} \left| \langle 2 | \vec{d} | 1 \rangle \right|^2 \pi \\
&\quad (1 + \cos^2 \theta + (1 - 3 \cos^2 \theta) u^2) \\
&\quad \left[[r_i^+ r_j^-, \tilde{\sigma}(t)]_+ - 2r_j^- \tilde{\sigma}(t) r_i^+ \exp(ikR_{ij}u) \frac{\pi}{c} \delta(k - k_0) \right. \\
&\quad \left. + i[r_i^+ r_j^-, \tilde{\sigma}(t)] \exp(ikR_{ij}u) \frac{1}{c} PP \frac{1}{k - k_0} \right] k^2 dk du \quad (A.73)
\end{aligned}$$

On utilise la formule :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \exp(i(k - k_0) R_{ij}u) \left[\pi \delta(k - k_0) + iPP \frac{1}{k - k_0} \right] dk = 2\pi \Theta(R_{ij}u) \quad (\text{A.74})$$

avec $\Theta(x) = 1$, si $x > 0$; $\Theta(x) = 1/2$, si $x = 0$; $\Theta(x) = 0$, si $x < 0$. On remarque également que : $k^3 \exp(ikR_{ij}u) = \frac{i}{R_{ij}^3} \frac{\partial^3}{\partial u^3} \exp(ikR_{ij}u)$. On peut écrire :

$$\begin{aligned} \frac{d\tilde{\sigma}(t)}{dt} &= -\frac{\Gamma}{2} \sum_i [[r_i^+ r_i^-, \tilde{\sigma}(t)]_+ - 2r_i^- \tilde{\sigma}(t) r_i^+] \quad (\text{A.75}) \\ &\quad - \frac{1}{\hbar^2} \frac{1}{8\pi^3} \sum_{i \neq j} \int_{u=-1}^{+1} \frac{\hbar c}{2\varepsilon_0} \left| \langle 2 | \vec{d} | 1 \rangle \right|^2 \pi \\ &\quad (1 + \cos^2 \theta + (1 - 3 \cos^2 \theta) u^2) \frac{i}{R_{ij}^3} \frac{\partial^3}{\partial u^3} \left\{ \exp(ik_0 R_{ij}u) \right. \\ &\quad \left. \left(-\frac{\pi}{c} 2r_j^- \tilde{\sigma}(t) r_i^+ \frac{2\pi}{c} [r_i^+ r_j^- \tilde{\sigma}(t) \Theta(R_{ij}u) + \tilde{\sigma}(t) r_i^+ r_j^- \Theta(-R_{ij}u)] \right) \right\} du \end{aligned}$$

En intégrant sur u par partie, on obtient :

$$\begin{aligned} \frac{d\tilde{\sigma}(t)}{dt} &= -\frac{\Gamma}{2} \sum_i [[r_i^+ r_i^-, \tilde{\sigma}(t)]_+ - 2r_i^- \tilde{\sigma}(t) r_i^+] \\ &\quad - \frac{1}{\hbar^2} \frac{1}{8\pi^3} \sum_{i \neq j} \frac{\hbar c}{2\varepsilon_0} \left| \langle 2 | \vec{d} | 1 \rangle \right|^2 \frac{4\pi^2}{c} \\ &\quad \left\{ (1 - \cos^2 \theta) \frac{k_0^2}{R_{ij}} ((-i) [r_i^+ r_j^- \tilde{\sigma}(t) \exp(ik_0 R_{ij}) \right. \\ &\quad \left. - \tilde{\sigma}(t) r_i^+ r_j^- \exp(-ik_0 R_{ij})] + \sin(k_0 R_{ij})) \right. \\ &\quad \left. - (1 - 3 \cos^2 \theta) \frac{-k_0}{R_{ij}^2} ([r_i^+ r_j^- \tilde{\sigma}(t) \exp(ik_0 R_{ij}) \right. \\ &\quad \left. + \tilde{\sigma}(t) r_i^+ r_j^- \exp(-ik_0 R_{ij})] - \cos(k_0 R_{ij})) \right. \\ &\quad \left. + (1 - 3 \cos^2 \theta) \frac{1}{R_{ij}^3} (i [r_i^+ r_j^- \tilde{\sigma}(t) \exp(ik_0 R_{ij}) \right. \\ &\quad \left. - \tilde{\sigma}(t) r_i^+ r_j^- \exp(-ik_0 R_{ij})] - \sin(k_0 R_{ij})) \right\} \quad (\text{A.76}) \end{aligned}$$

Cette équation s'écrit :

$$\begin{aligned}
\frac{d\tilde{\sigma}(t)}{dt} = & -\frac{\Gamma}{2} \sum_i [[r_i^+ r_i^-, \tilde{\sigma}(t)]_+ - 2r_i^- \tilde{\sigma}(t) r_i^+] \\
& - \frac{1}{\hbar^2} \frac{1}{8\pi^3} \sum_{i \neq j} \frac{\hbar c}{2\varepsilon_0} \left| \langle 2 | \vec{d} | 1 \rangle \right|^2 \frac{4\pi^2}{c} \\
& \left\{ \left\{ (1 - \cos^2 \theta) \frac{k_0^2}{R_{ij}} \sin(k_0 R_{ij}) \right. \right. \\
& + (1 - 3 \cos^2 \theta) \frac{k_0}{R_{ij}^2} \cos(k_0 R_{ij}) \\
& \left. \left. - (1 - 3 \cos^2 \theta) \frac{1}{R_{ij}^3} \sin(k_0 R_{ij}) \right\} \right. \\
& ([r_i^+ r_j^-, \tilde{\sigma}(t)]_+ - 2r_j^- \tilde{\sigma}(t) r_i^+) \\
& - i \left\{ (1 - \cos^2 \theta) \frac{k_0^2}{R_{ij}} \cos(k_0 R_{ij}) \right. \\
& - (1 - 3 \cos^2 \theta) \frac{k_0}{R_{ij}^2} \sin(k_0 R_{ij}) \\
& \left. \left. - (1 - 3 \cos^2 \theta) \frac{1}{R_{ij}^3} \cos(k_0 R_{ij}) \right\} \right. \\
& \left. [r_i^+ r_j^-, \tilde{\sigma}(t)] \right\} \tag{A.77}
\end{aligned}$$

Dans la limite, où $k_0 R_{ij} \ll 1$, on a :

$$\begin{aligned}
\frac{d\tilde{\sigma}(t)}{dt} = & -\frac{\Gamma}{2} \sum_i [[r_i^+ r_i^-, \tilde{\sigma}(t)]_+ - 2r_i^- \tilde{\sigma}(t) r_i^+] \\
& - \frac{1}{\hbar^2} \frac{1}{8\pi^3} \sum_{i \neq j} \frac{\hbar c}{2\varepsilon_0} \left| \langle 2 | \vec{d} | 1 \rangle \right|^2 \frac{4\pi^2}{c} \\
& \left\{ k_0^3 \left\{ (1 - \cos^2 \theta) \right. \right. \\
& + (1 - 3 \cos^2 \theta) \left(\frac{1}{k_0^2 R_{ij}^2} - \frac{1}{2} \right) \\
& \left. \left. - (1 - 3 \cos^2 \theta) \left(\frac{1}{k_0^2 R_{ij}^2} - \frac{1}{6} \right) \right\} \right. \\
& ([r_i^+ r_j^-, \tilde{\sigma}(t)]_+ - 2r_j^- \tilde{\sigma}(t) r_i^+) \\
& - i \left\{ (1 - \cos^2 \theta) \frac{k_0^2}{R_{ij}} \right. \\
& - (1 - 3 \cos^2 \theta) \frac{k_0^2}{R_{ij}} \\
& \left. \left. - (1 - 3 \cos^2 \theta) \frac{1}{R_{ij}^3} \left(1 - \frac{k_0^2 R_{ij}^2}{2} \right) \right\} \right. \\
& \left. [r_i^+ r_j^-, \tilde{\sigma}(t)] \right\} \tag{A.78}
\end{aligned}$$

On obtient :

$$\begin{aligned}
\frac{d\tilde{\sigma}(t)}{dt} &= -\frac{\Gamma}{2} \sum_i [[r_i^+ r_i^-, \tilde{\sigma}(t)]_+ - 2r_i^- \tilde{\sigma}(t) r_i^+] \\
&\quad - \frac{k_0^3}{6\hbar\pi\epsilon_0} \left| \langle 2 | \vec{d} | 1 \rangle \right|^2 \sum_{i \neq j} ([r_i^+ r_j^-, \tilde{\sigma}(t)]_+ - 2r_j^- \tilde{\sigma}(t) r_i^+) \\
&\quad - i \frac{3}{2k_0^3} \left\{ \frac{1}{2} (1 + \cos^2 \theta) \frac{k_0^2}{R_{ij}} \right. \\
&\quad \left. - (1 - 3 \cos^2 \theta) \frac{1}{R_{ij}^3} \right\} \\
&\quad [r_i^+ r_j^-, \tilde{\sigma}(t)] \} \tag{A.79}
\end{aligned}$$

On a finalement l'équation :

$$\begin{aligned}
\frac{d\tilde{\sigma}(t)}{dt} &= -\frac{\Gamma}{2} \sum_i [[r_i^+ r_i^-, \tilde{\sigma}(t)]_+ - 2r_i^- \tilde{\sigma}(t) r_i^+] \\
&\quad - \sum_{i \neq j} \frac{\Gamma}{2} ([r_i^+ r_j^-, \tilde{\sigma}(t)]_+ - 2r_j^- \tilde{\sigma}(t) r_i^+) \\
&\quad - i \frac{1}{4\hbar\pi\epsilon_0} \left| \langle 2 | \vec{d} | 1 \rangle \right|^2 \left\{ \frac{1}{2} (1 + \cos^2 \theta) \frac{k_0^2}{R_{ij}} \right. \\
&\quad \left. - (1 - 3 \cos^2 \theta) \frac{1}{R_{ij}^3} \right\} \\
&\quad [r_i^+ r_j^-, \tilde{\sigma}(t)] \} \tag{A.80}
\end{aligned}$$

Annexe B

Schémas électroniques de la détection

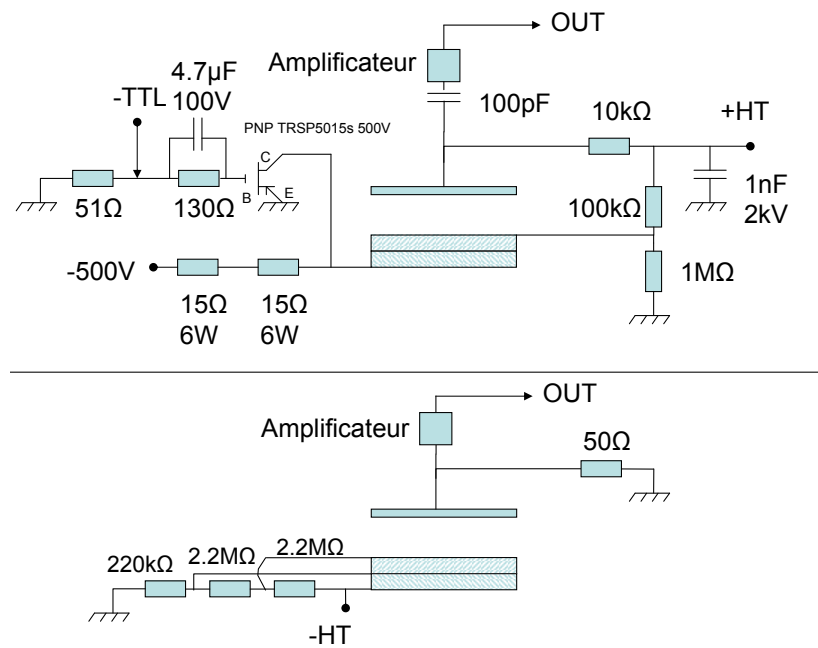


FIGURE B.1 – Schéma de l'électronique de détection. Les galettes de micro-canaux (Hamamatsu) amplifient le signal des charges arrivant sur la face avant du dispositif. En haut, détection pulsée d'ions avec un temps de montée caractéristique de quelques microsecondes utilisant un transistor PnP qui nécessite une forte intensité pour avoir un temps de montée court. En bas, détection continue d'ions sur laquelle un interrupteur haute tension très rapide (quelques nanosecondes) (Belhke) peut être adapté.

Bibliographie

- Abramowitz, M. and Stegun, I. A. (1968). *Handbook of mathematical functions with formulas, graphs and mathematical tables*. New York : Dover, 1968, edited by Abramowitz, Milton ; Stegun, Irene A.
- Afrousheh, K., Bohlouli-Zanjani, P., Vagale, D., Mugford, A., Fedorov, M., and Martin, J. D. (2004). Spectroscopic Observation of Resonant Electric Dipole-Dipole Interactions between Cold Rydberg Atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 93(23) :233001.
- Akulin *et al.*, W. M. (1999). Level-band problem and many-body effects in cold rydberg atoms. *Physica D*, 131 :125.
- Amthor, T. (2008). *Interaction-Induced Dynamics in Ultracold Rydberg Gases. Mechanical Effects and Coherent Processes*. PhD thesis, Universität Freiburg.
- 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(5) :054702.
- Amthor *et al.*, T. (2007). Mechanical Effect of van der Waals Interactions Observed in Real Time in an Ultracold Rydberg Gas. *Phys. Rev. Lett.*, 98(2) :023004.
- 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(2) :249–252.
- Ates, C., Pohl, T., Pattard, T., and Rost, J. M. (2006). Strong interaction effects on the atom counting statistics of ultracold Rydberg gases. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 39 :L233–L239.
- 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(1) :013413.
- Atkins, P. W. and Friedman, R. S. (2004). *Molecular Quantum Mechanics*. Oxford University Press, 4. edition.
- Becker, K., Lupton, J. M., Müller, J., Rogach, A. L., Talapin, D. V., Weller, H., and Feldmann, J. (2006). Electrical control of Förster energy transfer. *Nature Materials*, 5 :777–781.
- Beterov, I. I., Tretyakov, D. B., Ryabtsev, I. I., Entin, V. M., Ekers, A., and Bezuglov, N. N. (2008). Ionization of rydberg atoms by blackbody radiation.
- Bethlem, H. L., Berden, G., and Meijer, G. (1999). Decelerating Neutral Dipolar Molecules. *Physical Review Letters*, 83 :1558–1561.

- 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(6) :063806.
- Bohlouli-Zanjani, P., Petrus, J. A., and Martin, J. D. D. (2007). Enhancement of Rydberg Atom Interactions Using ac Stark Shifts. *Physical Review Letters*, 98(20) :203005–+.
- 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. *Physical Review Letters*, 96(17) :173002–+.
- 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(4) :045031–+.
- Cohen-Tanoudji, C., Diu, B., and Laloë, F. (2000). *Mécanique quantique*. Editions Hermann, Paris.
- Comparat, D. (1999). *Formation de molécules froides par photoassociation d'atomes froids de césium. Mise en évidence de forces à longue portée entre atomes froids excités de césium*. PhD thesis, Université Paris Sud XI.
- Comparat, D., Drag, C., Laburthe Tolra, B., Fioretti, A., Pillet, P., Crubellier, A., Dulieu, O., and Masnou-Seeuws, F. (2000). Formation of cold cs ground state molecules through photoassociation in the pure long-range state. *European Physical Journal D*, 11 :59–71.
- 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*, 321(5892) :1062–1066.
- Day, J. O., Brekke, E., and Walker, T. G. (2008). Dynamics of low-density ultracold Rydberg gases. *Phys. Rev. A*, 77(5) :052712–+.
- Deiglmayr, J., Grochola, A., Repp, M., Mörtilbauer, K., Glück, C., Lange, J., Dulieu, O., Wester, R., and Weidemüller, M. (2008). Formation of ultracold polar molecules in the rovibrational ground state. *Physical Review Letters*.
- Delcroix, J. and Bers, A. (1994). *Physique des plasmas*. Savoirs Actuels, InterEditions, CNRS.
- Delpech, J. F. and Gauthier, J. C. (1972). Electron-ion recombination in cryogenic helium plasmas. *Phys. Rev. A*, 6(5) :1932–1939.
- Dicke, R. H. (1954). Coherence in spontaneous radiation processes. *Phys. Rev.*, 93(1) :99.
- 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. *Physical Review Letters*, 86 :2253–2256.

- 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.
- Drag, C. (2000). *Photoassociation d'atomes de césium froids. Formation et caractérisation d'un nuage froid de molécules diatomiques de césium*. PhD thesis, Université Paris Sud XI.
- Fabre, C. (1980). *Etude théorique et expérimentale de l'interaction d'un atome très excité avec le rayonnement. Application à la spectroscopie des états de Rydberg du sodium*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie.
- Fioretti, A., Comparat, D., Crubellier, A., Dulieu, O., Masnou-Seeuws, F., and Pillet, P. (1998a). Formation of cold Cs_2 molecules through photoassociation. *Physical Review Letters*, 80 :4402–4405.
- Fioretti, A., Comparat, D., Crubellier, A., Dulieu, O., Masnou-Seeuws, F., and Pillet, P. (1998b). Formation of Cold Cs_2 Molecules through Photoassociation. *Physical Review Letters*, 80 :4402–4405.
- Friedrich, H. (1998). *Theoretical Atomic Physics*. Springer.
- Förster, T. (1959). 10th Spiers Memorial Lecture. Transfer mechanisms of electronic excitation. *Discuss. Faraday Soc.*, 27 :7–17.
- Gaetan, A., Miroshnychenko, Y., Wilk, T., Chotia, A., Viteau, M., Comparat, D., Pillet, P., Browaeys, A., and Grangier, P. (2009). Observation of collective excitation of two individual atoms in the Rydberg blockade regime. *Nature Physics*.
- Gallagher, T. F. (1994). *Rydberg Atoms*. Cambridge University Press, New York.
- Gallagher, T. F. and Cooke, W. E. (1979). Interactions of blackbody radiation with atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 42(13) :835–839.
- Gounand, F. (1979). calculation of radial matrix elements and radiative lifetimes for highly excited states of alkali atoms using the Coulomb approximation. *Le journal de physique*, 40 :457.
- Gounand, F., Hugon, M., Fournier, P. R., and Berlande, J. (1979). Superradiant cascading effects in rubidium Rydberg levels. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 12 :547–553.
- Goy, P., Raimond, J. M., Vitrant, G., and Haroche, S. (1982). Millimeter-wave spectroscopy in cesium Rydberg states. Quantum defects, fine- and hyperfine-structure measurements. *Physical Review A*, 26 :2733–2742.
- Gross, M. (1980). *Contribution théorique et expérimentale à l'étude du phénomène de superradiance*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie.
- Gross, M. and Haroche, S. (1982). Superradiance : An essay on the theory of collective spontaneous emission. *Physics Reports*, 93 :301–396.
- Gürtler, A. S. (2003). *Rydberg atoms in low-frequency fields*. PhD thesis, Katholieke Universiteit van Nijmegen.

- Gupta, M. and Herschbach, D. (1999). A mechanical means to produce intense beams of slow molecules. *Journal of Physical Chemistry A*, 103(50) :10670–10673.
- Han, J., Jamil, Y., Norum, D. V. L., Tanner, P. J., and Gallagher, T. F. (2006). Rb nf quantum defects from millimeter-wave spectroscopy of cold Rb85 Rydberg atoms. *Physical Review A*, 74(5) :054502–+.
- 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, R. (2008). *Rydberg Excitation of Bose-Einstein Condensates : Coherent Collective Dynamics*. PhD thesis, University of Stuttgart.
- 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, 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.
- Hernandez, J. (2008). *Many Body dipoles interaction*. PhD thesis, Auburn University.
- Hertzberg, G. (1944). *Atomic Spectra and Atomic Structure. P 208*. Dover Publications, New York.
- Hoogenraad, J. H. and Noordam, L. D. (1998). Rydberg atoms in far-infrared radiation fields. I. Dipole matrix elements of H, Li, and Rb. *Phys. Rev. A*, 57 :4533–4545.
- Jackson, J. D. (1998). *Classical Electrodynamics, 3rd Edition*. Classical Electrodynamics, 3rd Edition, by John David Jackson, pp. 832. ISBN 0-471-30932-X. Wiley-VCH , July 1998.
- Jaksch, D., Cirac, J. I., Zoller, P., Rolston, S. L., Côté, R., and Lukin, M. D. (2000). Fast Quantum Gates for Neutral Atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 85 :2208–2211.
- Jelassi, H. (2007). *Spectroscopie photoassociative des états moléculaires faiblement liés du rubidium : Analyse par la méthode de Lu-Fano. Étude de la réalisation d'une lentille à atomes*. PhD thesis, Université Paris Sud XI.
- 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–+.
- Killian, T. C., Kulin, S., Bergeson, S. D., Orozco, L. A., Orzel, C., and Rolston, S. L. (1999). Creation of an Ultracold Neutral Plasma. *Physical Review Letters*, 83 :4776–4779.
- 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. *Physical Review Letters*, 86 :3759–3762.

- Landau, L. and Lifchitz, E. (1988). *Mécanique quantique*. Ed. Mir, Moscou.
- Lang, F., Winkler, K., Strauss, C., Grimm, R., and Denschlag, H. J. (2008). Ultracold triplet molecules in the rovibrational ground state. *Physical Review Letters*, 101(13) :133005+.
- Li, W., Mourachko, I., Noel, M. W., and Gallagher, T. F. (2003). Millimeter-wave spectroscopy of cold rb rydberg atoms in a magneto-optical trap : Quantum defects of the ns, np, and nd series. *Phys. Rev. A*, 67(5) :052502.
- 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.
- Liebisch, T. C., Reinhard, A., Berman, P. R., and Raithel, G. (2005). Atom Counting Statistics in Ensembles of Interacting Rydberg Atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 95(25) :253002.
- 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. 95, 253002 (2005)]. *Phys. Rev. Lett.*, 98(10) :109903.
- Li *et al.*, W. (2005). Dipole-Dipole Excitation and Ionization in an Ultracold Gas of Rydberg Atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 94(17) :173001.
- Lukin, M. D., Fleischhauer, M., Cote, R., Duan, L. M., Jaksch, D., Cirac, J. I., and Zoller, P. (2001). Dipole Blockade and Quantum Information Processing in Mesoscopic Atomic Ensembles. *Phys. Rev. Lett.*, 87(3) :037901.
- Mestayer, J. J., Wyker, B., Lancaster, J. C., Dunning, F. B., Reinhold, C. O., Yoshida, S., and Burgdörfer, J. (2008). Realization of Localized Bohr-Like Wave Packets. *Physical Review Letters*, 100(24) :243004+.
- 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, 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 :253–256.
- Mourachko, I., Li, W., and Gallagher, T. F. (2004). Controlled many-body interactions in a frozen Rydberg gas. *Physical Review A*, 70(3) :031401+.
- 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.
- Ni, K. K., Ospelkaus, S., de Miranda, M. H. G., Pe'er, A., Neyenhuis, B., Zirbel, J. J., Kotochigova, S., Julienne, P. S., Jin, D. S., and Ye, J. (2008). A high phase-space-density gas of polar molecules. *Science*, 322(5899) :231–235.

- 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. *Physical Review Letters*, 82 :703–706.
- Pillet, P. (1982). *Superradiance et subradiance dans les systèmes atomiques à plusieurs niveaux. Contribution théorique et expérimentale à l'analyse des propriétés de polarisation et de fluctuations*. PhD thesis, Université Paris Sud XI.
- Pillet *et al.*, P. (1987). *Phys. Rev. A*, 36 :1132.
- 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.
- Protsenko, I. E., Reymond, G., Schlosser, N., and Grangier, P. (2002). Operation of a quantum phase gate using neutral atoms in microscopic dipole traps. *Phys. Rev. A*, 65(5) :052301.
- Raab, M., Hönig, G., Demtröder, W., and Vidal, C. R. (1982). High resolution laser spectroscopy of cs_2 . *Journal of Chemical Physics*, 76 :4370–4386.
- Raimond, J. M., Vitrant, G., and Haroche, S. (1981). Spectral line broadening due to the interaction between very excited atoms : 'the dense Rydberg gas' . *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 14 :L655–L660.
- Raitzsch, U., Bendkowsky, V., Heidemann, R., Butscher, B., Löw, R., and Pfau, T. (2008). Echo Experiments in a Strongly Interacting Rydberg Gas. *Physical Review Letters*, 100(1) :013002.
- 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–+.
- Rax, J. (2005). *Physique des plasmas Cours et applications*. Dunod.
- Reetz-Lamour, M., Amthor, T., Deiglmayr, J., and Weidemüller, M. (2008a). Rabi Oscillations and Excitation Trapping in the Coherent Excitation of a Mesoscopic Frozen Rydberg Gas. *Physical Review Letters*, 100(25) :253001–+.
- Reetz-Lamour, M., Deiglmayr, J., Amthor, T., and Weidemüller, M. (2008b). 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, A., Younge, K. C., Liebisch, T. C., Knuffman, B., Berman, P. R., and Raithel, G. (2008). Double-Resonance Spectroscopy of Interacting Rydberg-Atom Systems. *Physical Review Letters*, 100(23) :233201–+.
- Robicheaux, F. (2005). Ionization due to the interaction between two Rydberg atoms. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 38 :333.
- Robicheaux, F. and Hernandez, J. V. (2005). Many-body wave function in a dipole blockade configuration. *Phys. Rev. A*, 72(6) :063403.

- 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.
- Rudolf, R., Mongillo, M., Rizzuto, R., and Pozzan, T. (2003). Looking forward to seeing calcium. *Nat Rev Mol Cell Biol*, 4(7) :579–586.
- Saffman, M. and Walker, T. G. (2005). Analysis of a quantum logic device based on dipole-dipole interactions of optically trapped Rydberg atoms. *Physical Review A*, 72(2) :022347–+.
- Safinya, K. A., Delpech, J. F., Gounand, F., Sandner, W., and Gallagher, T. F. (1981). Resonant Rydberg-Atom-Rydberg-Atom Collisions. *Phys. Rev. Lett.*, 47 :405–408.
- Sage, J. M., Sainis, S., Bergeman, T., and Demille, D. (2005). Optical Production of Ultracold Polar Molecules. *Physical Review Letters*, 94(20) :203001–+.
- 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–+.
- Seaton, M. J. (1983). Quantum defect theory. *Rep. Prog. Phys.*, 46 :167.
- Singer, K., Reetz-Lamour, M., Amthor, T., Marcassa, L. G., and Weidemüller, M. (2004). Suppression of Excitation and Spectral Broadening Induced by Interactions in a Cold Gas of Rydberg Atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 93(16) :163001.
- Starace, A. (1976). The quantum defect theory approach. *Photoionization and Other Probes of Many Electron Interaction*.
- Steck, D. A. (2004). Cesium d line data. *Accessible sur le Web à l'adresse <http://george.ph.utexas.edu/dsteck/alkalidata/cesiumnumbers.pdf>*.
- Tong, D., Farooqi, S. M., Stanojevic, J., Krishnan, S., Zhang, Y. P., Côté, R., Eyler, E. E., and Gould, P. L. (2004). Local Blockade of Rydberg Excitation in an Ultracold Gas. *Phys. Rev. Lett.*, 93(6) :063001.
- Torquato, S., Lu, B., and Rubinstein, J. (1990). Nearest-neighbour distribution function for systems on interacting particles. *Journal of Physics A Mathematical General*, 23 :L103–L107.
- 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.
- Vanhaecke, N. (2003). *Molécules froides : formation, piégeage et spectroscopie. Accumulation de dimères de césium dans un piège quadrupolaire magnétique. Spectroscopie par frustration de photoassociation*. PhD thesis, Ecole Polytechnique.
- 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, M. (2008). *Formation de molécules froides. Blocage dipolaire*. PhD thesis, Université Paris Sud XI.
- 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.
- Viteau, M., Chotia, A., Allegrini, M., Bouloufa, N., Dulieu, O., Comparat, D., and Pillet, P. (2008a). Optical Pumping and Vibrational Cooling of Molecules. *Science*, 321 :232–234.
- Viteau, M., Chotia, A., Allegrini, M., Bouloufa, N., Dulieu, O., Comparat, D., and Pillet, P. (2009). Efficient formation of deeply bound ultracold molecules probed by broadband detection. *Physical Review A*.
- Viteau, M., Chotia, A., Comparat, D., Tate, D. A., Gallagher, T. F., and Pillet, P. (2008b). Melting a frozen Rydberg gas with an attractive potential. *Physical Review A*, 78(4) :040704–+.
- Vitrant, G., Raimond, J. M., Gross, M., and Haroche, S. (1982). Rydberg to plasma evolution in a dense gas of very excited atoms . *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 15 :L49–L55.
- 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.
- 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(8) :083003.
- 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(8) :083003.
- Vuletic, V. (2006). Quantum networks : When superatoms talk photons. *Nature Physics*, 2 :801–802.
- Walker, T. G. and Saffman, M. (2005). Zeros of Rydberg Rydberg Förster interactions. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 38 :309–+.
- Walker, T. G. and Saffman, M. (2008). Consequences of Zeeman degeneracy for the van der Waals blockade between Rydberg atoms. *Physical Review A*, 77(3) :032723–+.
- Wang, T., Yelin, S. F., Côté, R., Eyler, E. E., Farooqi, S. M., Gould, P. L., Koštrun, M., Tong, D., and Vrinceanu, D. (2007). Superradiance in ultracold Rydberg gases. *Phys. Rev. A*, 75(3) :033802–+.
- 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*.
- Weber, K.-H. and Sansonetti, C. J. (1987). Accurate energies of ns, np, nd, nf, and ng levels of neutral cesium. *Physical Review A*, 35 :4650–4660.

- 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.
- 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.
- Yavuz, D., Urban, E., Johnson, T., Kulatunga, P., Delaney, M., Henage, T., Proite, N., Walker, T., and Saffman, M. (2006). Fast Ground State Manipulation of Neutral Atoms in Microscopic Dipole Traps. *APS Meeting Abstracts*, pages C5005+.
- Zahzam, N. (2005). *Collisions et interactions froides*. PhD thesis, Université Paris 7.
- 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–+.
- Zimmerman, M. L., Littman, M. G., Kash, M. M., and Kleppner, D. (1979). Stark structure of the Rydberg states of alkali-metal atoms. *Phys. Rev. A*, 20 :2251–2275.