



**HAL**  
open science

# Transitions landau-zener de paires d'atomes de Rydberg froids en interaction dipole-dipole

Anne Cournol

► **To cite this version:**

Anne Cournol. Transitions landau-zener de paires d'atomes de Rydberg froids en interaction dipole-dipole. Autre [cond-mat.other]. Université Paris Sud - Paris XI, 2011. Français. NNT : 2011PA112343 . tel-00661626

**HAL Id: tel-00661626**

**<https://theses.hal.science/tel-00661626>**

Submitted on 20 Jan 2012

**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

Anne CURNOL

**Transitions Landau-Zener de paires  
d'atomes de Rydberg froids en  
interaction dipôle-dipôle**

Soutenue le 09 décembre 2011 devant le jury composé de :

M. Ennio ARIMONDO	: Rapporteur
M. Christian LISDAT	: Rapporteur
Mme. Danielle DOWEK	: Examineur
M. Ed GRANT	: Examineur
M. Nicolas VANHAECKE	: Invité
M. Pierre PILLET	: Directeur de Thèse

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

---

# Table des matières

<b>1</b>	<b>Introduction Générale</b>	<b>7</b>
<b>2</b>	<b>Jet supersonique d'atomes de Rydberg</b>	<b>21</b>
	Introduction . . . . .	21
2.1	Considérations générales sur les atomes de Rydberg . . . . .	22
2.1.1	Introduction . . . . .	22
2.1.2	Fonctions d'ondes et premiers niveaux d'énergie du sodium . . . . .	23
2.1.2.1	Atome hydrogénoïde . . . . .	23
2.1.2.2	Le sodium : atome alcalin . . . . .	23
2.1.3	États de Rydberg des atomes alcalins . . . . .	25
2.1.3.1	Vision classique . . . . .	26
2.1.3.2	Théorie du défaut quantique . . . . .	27
2.1.4	Éléments de matrice de l'opérateur moment dipolaire électrique . . . . .	28
2.1.4.1	Base de structure fine . . . . .	30
2.1.4.2	Forces de transition et durées de vie radiative . . . . .	30
2.1.5	Effet Stark pour les atomes alcalins . . . . .	32
2.1.5.1	Hamiltonien Stark . . . . .	32
2.1.5.2	Cas de l'hydrogène . . . . .	32
2.1.5.3	Cas du sodium . . . . .	33
2.1.5.4	Polarisabilité statique . . . . .	34
2.1.6	Détection par ionisation classique par champ électrique . . . . .	35
2.1.7	Loi d'échelle de quelques propriétés des atomes de Rydberg et conclusion . . . . .	36
2.2	Production d'un jet supersonique d'atomes de sodium froid dans un état de Rydberg . . . . .	38
2.2.1	Introduction . . . . .	38
2.2.2	Principe de l'expansion supersonique . . . . .	38
2.2.2.1	Généralités . . . . .	39
2.2.2.2	Caractéristiques . . . . .	40
2.2.2.3	Distribution en vitesse des atomes dans un jet supersonique : . . . . .	42
2.2.3	Ablation laser d'une cible solide de sodium . . . . .	42
2.2.3.1	Généralités . . . . .	43
2.2.3.2	Mise en oeuvre expérimentale . . . . .	44
2.2.4	Dispositif expérimental du jet supersonique . . . . .	46
2.2.4.1	Description . . . . .	46
2.2.4.2	Caractérisation . . . . .	47
2.2.5	Excitation laser des atomes de sodium vers un état de Rydberg . . . . .	52

2.2.5.1	Excitation pulsée 3S-4P . . . . .	52
2.2.5.2	Excitation continue 4P-ns . . . . .	53
2.2.5.3	Profil Doppler de l'état 48s . . . . .	56
	Conclusions . . . . .	58
<b>3</b>	<b>Transitions Landau-Zener dans des paires d'atomes de Rydberg froids</b>	<b>59</b>
	Introduction . . . . .	59
3.1	Supports Théoriques . . . . .	61
3.1.1	Le système à deux niveaux . . . . .	61
3.1.2	Modèle Landau-Zener . . . . .	62
3.1.3	Interaction dipôle-dipôle entre atomes de Rydberg . . . . .	63
3.1.3.1	Calcul classique de l'interaction électrostatique entres deux atomes d'hydrogène . . . . .	64
3.1.3.2	Généralisation : développement multipolaire . . . . .	64
3.1.4	Probabilité de passage adiabatique en fonction de la distance interatomique . . . . .	65
3.2	Expériences et résultats expérimentaux . . . . .	66
3.2.1	Régime de fonctionnement du jet supersonique . . . . .	67
3.2.1.1	Températures . . . . .	67
3.2.1.2	Densité . . . . .	68
3.2.2	Simulation : transition $ns\ ns - np\ (n - 1)p$ . . . . .	68
3.2.2.1	Dépendance avec le champ électrique . . . . .	68
3.2.2.2	Temps de transition . . . . .	69
3.2.2.3	Passage adiabatique à $R$ constant . . . . .	70
3.2.3	Montage Expérimental . . . . .	71
3.2.3.1	Champ électrique homogène . . . . .	71
3.2.3.2	Ecrantage des MCP . . . . .	72
3.2.3.3	Pulse Landau-Zener . . . . .	73
3.2.3.4	Ionisation par champ électrique pulsé . . . . .	74
3.2.4	Résultats . . . . .	76
3.2.4.1	Séquence expérimentale . . . . .	76
3.2.4.2	Résonance pour $n = 43, 48, 53$ . . . . .	77
3.2.4.3	Indépendance du temps d'application du champ électrique . . . . .	78
3.2.4.4	Dérivée du champ électrique . . . . .	80
3.2.4.5	Expérience complémentaire . . . . .	81
3.2.5	Discussions . . . . .	81
3.2.5.1	Sur le double passage . . . . .	81
3.2.5.2	Sur le taux de conversion par passage adiabatique . . . . .	82
3.2.5.3	Sur la structure fine des états $np$ et $(n - 1)p$ . . . . .	82
	Conclusions . . . . .	84
<b>4</b>	<b>Mesure absolue de la densité d'un gaz d'atomes de Rydberg via un processus non collisionnel à deux corps</b>	<b>87</b>
	Introduction . . . . .	87
4.1	Probabilités Landau-Zener pour une paire d'atomes de Rydberg - traitement complet . . . . .	90
4.1.1	Interaction dipôle-dipôle : cas de la transition $nsns-(n - 1)pn$ . . . . .	90

4.1.1.1	Expression du couplage dipôle-dipôle en base sphérique . . .	90
4.1.1.2	Rôle de la multiplicité des états de moment orbital $l = 1$ . . .	91
4.1.2	Expression de la probabilité Landau-Zener . . . . .	94
4.1.2.1	Cas simple d'un croisement évité entre états de $m_l$ diffé- rents . . . . .	95
4.1.2.2	Cas d'une série de croisements indépendants entre états de différents $m_l$ . . . . .	95
4.2	Modèle d'un ensemble d'atomes en interaction dipôle-dipôle dans le cas d'une transition Landau-Zener . . . . .	96
4.2.1	Modèle d'Erlang pour l'interaction à deux corps . . . . .	96
4.2.2	Calcul analytique de l'efficacité du processus Landau-Zener . . . . .	97
4.3	Expériences et Résultats du modèle ajusté . . . . .	99
4.3.1	Mise en oeuvre expérimentale . . . . .	99
4.3.1.1	Détection . . . . .	99
4.3.1.2	Nuages de points . . . . .	101
4.3.2	Détermination du paramètre $g$ du modèle . . . . .	101
4.3.3	Analyse fluctuation $g$ . . . . .	102
4.3.4	Précision sur la détermination de $g$ . . . . .	105
4.4	Discussions . . . . .	106
4.4.1	Autre méthode de détermination de la densité d'un gaz d'atomes de Rydberg . . . . .	106
4.4.1.1	Détermination standard de la densité d'un gaz d'atomes dans l'état fondamental par fluorescence induite par laser . . . . .	107
4.4.1.2	Détermination de la fraction d'atomes excités dans un état de Rydberg par une excitation laser résonante à deux pho- tons . . . . .	107
4.4.1.3	Conclusion . . . . .	109
4.4.2	Erreurs systématiques . . . . .	109
4.4.2.1	Distribution spatiale de la densité . . . . .	110
4.4.2.2	Séparation des signaux $S^{48p}$ et $S^{47p,48s}$ . . . . .	112
4.4.3	Rôle d'un troisième corps . . . . .	113
Conclusions . . . . .		114
<b>5</b>	<b>Mesure du bruit de projection quantique</b>	<b>115</b>
Introduction . . . . .		115
5.1	Processus de mesure en mécanique quantique . . . . .	117
5.1.1	Généralités . . . . .	117
5.1.2	Bruit de projection quantique . . . . .	118
5.2	Oscillations de Rabi à deux photons entre deux états de Rydberg . . . . .	119
5.2.1	Interaction atome à deux niveaux - champ classique . . . . .	119
5.2.1.1	Hamiltonien semi-classique dans l'approximation de l'onde tournante . . . . .	119
5.2.1.2	Solutions stationnaires . . . . .	120
5.2.1.3	Oscillations de Rabi . . . . .	121
5.2.2	Interaction atome à 3 niveaux - deux photons . . . . .	121
5.2.2.1	Hamiltonien semi-classique dans l'approximation de l'onde tournante . . . . .	122

TABLE DES MATIÈRES

---

5.2.2.2	Étude d'un cas pur . . . . .	122
5.2.2.3	Mélange statistique de cas purs : formalisme de la matrice densité . . . . .	123
5.2.2.4	Simulation de la variance . . . . .	124
5.2.3	Première mesure de la variance . . . . .	125
5.3	Modélisation de l'expérience pour l'analyse . . . . .	128
5.3.1	Moyenne du signal . . . . .	130
5.3.1.1	Expression générale . . . . .	130
5.3.1.2	Expression de la partie affine . . . . .	131
5.3.2	Variance du signal . . . . .	132
5.3.2.1	Expression générale . . . . .	132
5.3.2.2	Expression de la partie linéaire . . . . .	133
5.3.3	Procédure pour l'analyse des données expérimentales . . . . .	135
5.4	Réalisation expérimentale . . . . .	137
5.4.1	Dispositif expérimental . . . . .	137
5.4.2	Génération du pulse de champ micro-onde . . . . .	138
5.4.3	Raies de transitions à deux photons micro-onde . . . . .	138
5.5	Résultats Expérimentaux . . . . .	140
5.5.1	Nuages de Points . . . . .	140
5.5.2	Dépendance de la variance expérimentale . . . . .	141
5.5.3	Conclusion partielle . . . . .	142
5.6	Application pour l'intrication d'atomes de Rydberg . . . . .	143
5.6.1	Production de paires d'atomes de Rydberg intriqués par transition Landau-Zener . . . . .	143
5.6.2	Modèle simplifié . . . . .	145
5.6.3	Simulation de la variance . . . . .	146
5.6.4	Expérience préliminaire . . . . .	148
5.6.5	Discussions . . . . .	151
	Conclusions . . . . .	152

**6 Conclusion Générale**

# Chapitre 1

## Introduction Générale

L'état de l'électron excité d'un atome de Rydberg est défini par une valeur du nombre quantique principal  $n$  élevée. De part l'éloignement important de l'électron, les atomes de Rydberg sont aussi appelés 'atomes géants'. Leurs tailles varient en  $n^2 a_0$ . La physique des atomes de Rydberg est un domaine de recherche très riche. Ils constituent des systèmes physiques simples, de choix, pour la mise en pratique des théories physiques complexes. Soumis à des champs externes réalisables, ils reproduisent, de manière exacerbée, le comportement des atomes dans les états fondamentaux suivant une loi d'échelle. Ils ont aussi été largement employés pour leurs propriétés de collisions. Les états de Rydberg atomiques sont connus de longue date pour être des systèmes privilégiés dans l'étude des interactions binaires. Ils présentent en effet des sections efficaces de collision très importantes avec un partenaire atomique ou moléculaire [Beigman and Lebedev, 1995]. Ce manuscrit porte sur l'étude expérimentale des interactions électrostatiques mises en jeu lors de collisions inélastiques entre deux atomes de Rydberg en régime froid.

Cette introduction générale, non exhaustive, a pour objectif de décrire la richesse de la physique des atomes de Rydberg, couvrant de larges gammes en température et offrant également de nombreuses applications possibles à l'interface d'autres disciplines.

À partir des années 1970, et du développement des technologies laser, notamment celui du laser à colorant quasi-monochromatique, la spectroscopie des états de Rydberg des atomes alcalins a joué un rôle majeur pour une compréhension plus fine des théories de physique atomique. Ces expériences ont permis des tests expérimentaux de précision des théories de la mécanique quantique [Vaidyanathan et al., 1982, Liang et al., 1986, Goy et al., 1986]. Ils ont tenu une place importante en physique atomique théorique pour les systèmes atomes - champs [Littman et al., 1976], ils constituent un prototype pour l'étude des systèmes complexes et de leurs interactions avec des champs externes intenses. Les niveaux d'énergie et les fonctions d'onde des atomes de Rydberg en présence de champs externes intenses pouvant être complètement déterminés par des considérations de brisure de symétrie [Penent et al., 1988]. Par leur analogie semi-classique forte, les états de Rydberg sont des systèmes de choix pour l'étude du chaos quantique, nous citerons notamment la localisation dynamique, illustré lors du processus d'ionisation lorsque l'électron de Rydberg est décrit par une dynamique classique instable [Bayfield et al., 1989]. En physique des plasmas, ils sont présents lors de nombreux processus, par exemple lors des recombinaisons ions-électrons avec formation d'atomes de Rydberg [Bartsch et al., 1999]. L'élargissement spectral de raies d'émissions, dans le domaine visible, lors de la



désexcitation d'atomes de Rydberg dans un plasma est un indicateur de la densité d'ions et d'électrons dans le plasma [Griem, 1984]. En astrophysique, la composition de plasmas interstellaires peut être déterminée par identification de raies Rydberg dans le domaine des radiofréquences [Sorochenko, 1989].

À partir des années 1990, le développement des techniques de ralentissement, de refroidissement et de piégeage ont permis l'étude des atomes de Rydberg et de leurs propriétés de collisions à très basse énergie.

Un des objectifs de l'expérience sur laquelle j'ai travaillé pendant ma thèse est la décélération Stark d'atomes de Rydberg. Nous commencerons donc par une brève revue de quelques techniques permettant d'obtenir des échantillons d'atomes et de molécules froids.

## Revue de quelques techniques d'obtention d'atomes et de molécules froides

D'une manière générale, l'obtention d'échantillons denses et froids d'atomes et de molécules est un enjeu tant sur le plan de la physique fondamentale que pour les nombreuses applications possibles. Nous citerons, parmi celles-ci, la spectroscopie de haute précision, le contrôle des réactions chimiques, la vérification des symétries fondamentales, la simulation quantique, les étalons de fréquence et les horloges atomiques.

Les techniques de refroidissement laser et de piégeage magnétique permettent l'obtention d'échantillons de plusieurs millions d'atomes, dans des volumes de l'ordre du  $\text{mm}^3$ , à des températures de l'ordre du  $\mu\text{K}$ . Ce type de refroidissement repose sur le ralentissement des atomes par échange d'impulsions avec les photons d'un laser. Cela nécessite de multiplier les processus d'absorption et d'émission spontanée et requiert donc des cycles de transitions fermées (sans fuite vers d'autres niveaux) [Cohen-Tannoudji, 1998, Phillips, 1998]. La limite basse en température atteinte correspond à l'impulsion de recul du photon. Pour descendre en dessous de cette limite, il faut ajouter une phase de refroidissement évaporatif, permettant d'atteindre au plus bas environ  $100 \text{ pK}$ . Ces techniques combinées ont permis l'observation de la condensation de Bose-Einstein, par exemple pour les gaz alcalins,  $^{87}\text{Rb}$  [Anderson et al., 1995],  $^{23}\text{Na}$  [Davis et al., 1995],  $^{85}\text{Rb}$  [Cornish et al., 2000],  $^{133}\text{Cs}$  [Weber et al., 2003].

La complexité des niveaux d'énergie interne des molécules est telle, qu'à part quelques cas très spécifiques -  $\text{SrF}$  [Shuman et al., 2010] - il n'existe pas de système de transitions fermées. L'obtention de molécules froides demandent des techniques adaptées. Nous distinguerons les techniques directes de formations de molécules froides, où il s'agit de ralentir et de piéger des molécules préexistantes à températures ambiantes, et les techniques indirectes où les molécules froides sont formées à partir d'atomes froids.

Nous citerons les méthodes directes suivantes :

- Par formation de jets moléculaires supersoniques. Cette technique seule ne permet pas de descendre en dessous de  $\approx 100 \text{ mK}$ . Les molécules dans un jet supersonique ont une vitesse longitudinale moyenne élevée, il est possible de les décélérer :

- Par décélération utilisant l’effet Stark. L’utilisation d’un gradient spatial de champ électrique non statique, permet d’appliquer une force aux molécules polaires [Bethlem et al., 1999, 2000, Cromptoets et al., 2001, Bethlem et al., 2002], et aux molécules dans un état de Rydberg [Hogan et al., 2009]. Il s’agit de transférer l’énergie cinétique des molécules en énergie potentielle.
- Par décélération utilisant l’effet Zeemann. Analogue à la décélération par champ électrique, cette technique repose sur l’interaction d’espèces paramagnétiques et d’un gradient de champ magnétique. Le principe de ce type de décélération a été démontré pour H [Vanhaecke et al., 2007] (suivi d’un piégeage magnétique [Hogan et al., 2008]) et D [Hogan et al., 2007]. Pour les molécules, cette technique a permis de décélérer O<sub>2</sub> de 380m/s à 80 m/s [Narevicius et al., 2008].
- Par thermalisation avec un environnement cryogénique de nanogouttes d’hélium [Goyal et al., 1992].
- Par collisions élastiques avec un gaz tampon [Doyle et al., 1995, Kim et al., 1997]. Cette technique, combinée au piégeage magnétique, à permis d’obtenir en 1998 le premier échantillon de molécules froides piégées (CaH), de l’ordre du mK [Weinstein et al., 1998].
- Par collision inélastique unique dans des jets moléculaires croisés. Cette technique est basée sur des collisions binaires où la vitesse de recul du partenaire moléculaire dans le référentiel du centre de masse est égale en norme mais opposée à la vitesse du référentiel du centre de masse dans le référentiel du laboratoire [Elioff et al., 2003].

Les méthodes directes s’appliquent à une large gamme de molécules, cependant, ces techniques ne permettent pas de descendre dans des régimes ultra-froids.

Nous citerons les méthodes indirectes suivantes :

- Par photoassociation d’atomes froids. Lorsqu’un photon est absorbé par une paire d’atomes dans leur état fondamental, ils forment un dimère, dit de grande élévation, dans un état vibrationnel d’un état électronique excité. Les couplages vers de faibles distances interatomiques de la molécule excitée par photoassociation permettent, à une partie des molécules, de se désexciter (par émission spontanée) vers des états vibrationnels de l’état électronique fondamental stable, par exemple pour les dimères alcalins Cs<sub>2</sub> [Fioretti et al., 1998], K<sub>2</sub> [Nikolov et al., 1999]. Les molécules hétéronucléaires ont été plus difficiles à produire, par exemple RbCs [Kerman et al., 2004], KRb [Mancini et al., 2004]. Les molécules conservent les mêmes températures de translation que les paires d’atomes initiales. Cependant, par cette seule technique, la température associée au degré de vibration est élevée. Certaines avancées techniques récentes ont permis d’obtenir des échantillons denses de molécules dans des états de vibration et de rotation déterminés [Danzl et al., 2008, Viteau et al., 2008, Deiglmayr et al., 2008].
- Par magnétoassociation. L’utilisation d’un champ magnétique externe permet de

contrôler la longueur de diffusion qui, pour des paires d'atomes, caractérise complètement les collisions à basse énergie. Le champ magnétique permet d'ajuster les énergies d'un état de diffusion avec un état lié de la molécule diatomique. Cette situation, nommée résonance de Feshbach, correspond à une divergence de la longueur de diffusion, et est associée à une grande probabilité de présence des deux atomes en collision à faible distance interatomique. Nous citerons, pour les dimères alcalins homonucléaires bosoniques  $^{133}\text{Cs}_2$  [Herbig et al., 2003],  $^{23}\text{Na}_2$  [Xu et al., 2003],  $^{87}\text{Rb}_2$  [Dürr et al., 2004], et pour les dimères alcalins homonucléaires fermioniques,  $^{40}\text{K}_2$  [Cubizolles et al., 2003],  $^6\text{Li}_2$  [Regal et al., 2004]. L'intérêt de cette technique est l'obtention de molécules très froides préparées dans un seul niveau hyperfin.

Les techniques indirectes d'obtention de molécules froides permettent d'atteindre des régimes ultra-froids, mais sont limités aux dimères que l'on peut obtenir à partir d'atomes ultra-froids, ce qui restreint considérablement la gamme de molécules accessibles.

Les collisions entre espèces sont d'une grande importance dans le domaine des atomes et molécules froides. Nous allons voir que les propriétés de collisions inélastiques des atomes de Rydberg offrent un environnement d'étude très riche révélant des situations et des systèmes nouveaux.

## Les gaz de Rydberg froids

En régime froid, les paramètres d'impact et les temps de collisions sont très élevés, et les atomes peuvent être considérés comme gelés sur les temps caractéristiques des expériences. Pour les atomes de Rydberg, les interactions électrostatiques entre des partenaires de collisions inélastiques, séparés d'une distance  $R$ , jouent un rôle prépondérant, particulièrement, le terme dipolaire, nommé interaction dipôle-dipôle  $\propto \frac{C_3}{R^3}$  et interaction de van der Waals  $\propto \frac{C_6}{R^6}$ , étant l'interaction dipôle-dipôle du deuxième ordre [Gallagher and Pillet, 2008].

**Transferts résonants d'excitation** Historiquement, Theodor Förster traita le comportement quantique des molécules en solution lors de transfert d'énergie d'excitation électronique entre deux molécules dû à l'interaction dipôle-dipôle [Förster, 1946]. Il définit les probabilités des conditions de résonance entre deux molécules qui sont modélisées comme des oscillateurs à large bande spectrale (un donneur, un accepteur). Les probabilités de transfert dépendent d'une distance intermoléculaire critique qui caractérise le transfert d'énergie électronique. Si les deux espèces sont suffisamment proches l'une de l'autre pour interagir par interaction dipôle-dipôle, et que les spectres d'émission du donneur et d'absorption de l'accepteur se recouvrent, une molécule 'donneur' étant excitée à une certaine longueur d'onde, se désexcite à une longueur d'onde plus grande, et cette désexcitation est transférée à la molécule 'accepteur'. Il s'agit donc d'un processus non radiatif. L'interprétation de leurs spectres d'absorption et de fluorescence résolus en temps est alors une source d'informations sur le milieu étudié. Le procédé FRET (Förster Resonance Energy Transfer) est couramment utilisé en biochimie, biophysique, et permet l'étude des interactions intra et inter-moléculaires.

Le terme résonance de Förster est alors largement utilisé pour des processus d'échange d'énergie d'excitation électronique entre deux espèces. Notamment en physique des Rydberg où il apparait des transferts résonants d'excitation électronique induit par l'interaction dipôle-dipôle entre des états de paire d'atomes en champ électrique. D'une manière générale, lorsque les états de paire d'atomes ont la même énergie, pour certaine valeur de champ électrique, les transferts résonants sont du type :

$$n_1 l_1 + n_2 l_2 \leftrightarrow n_3 l_3 + n_4 l_4$$

Les premiers effets spectroscopiques de l'interaction dipôle-dipôle ont été observés pour l'excitation d'atomes de césium dans un jet thermique dans [Raimond et al., 1981]. Des élargissements 'anormaux' pour les puissances laser utilisées sont mis en évidence lors de l'excitation vers un état de Rydberg dans des gaz de haute densité. Le déplacement des niveaux par l'interaction de type Van der Waals est responsable de l'élargissement spectral des raies de transitions.

Les transferts résonants à résonance de Förster ont été étudiés dans des jets thermiques sous forme de collisions résonantes en fonction du champ électrique statique appliqué [Safinya et al., 1981, Gallagher et al., 1982], ou encore sous forme de collisions assistées radiativement à l'aide de photons micro-onde [Pillet et al., 1987]. Dans l'expérience [Safinya et al., 1981], des atomes de sodium en jet thermique sont excités en champ électrique vers un état de Rydberg. L'application d'un champ électrique permet de faire varier les énergies des niveaux électroniques par effet Stark et ainsi de mettre en résonance les niveaux d'énergie interne. La figure 1.1 représente les niveaux d'énergie des états mis en jeu lors des collisions résonantes en fonction du champ électrique. La figure 1.2 représente la différence d'énergie entre les niveaux du sodium  $|ns, ns\rangle$  et  $|np, (n-1)p\rangle$  en champ électrique nul, en fonction du nombre quantique principal  $n$ . Cette différence d'énergie étant positive pour tout  $n$ , et de l'ordre de 10 GHz, elle peut être compensée par l'application d'un champ électrique statique permettant d'atteindre les résonances. Il existe donc de nombreuses situations où ces résonances ont lieu.

Les jets thermiques associés aux techniques de sélection en vitesse permettent d'obtenir des résonances de faible largeur (quelques MHz), il est possible de mettre en évidence les cohérences entre les superpositions d'états de paire formés lors de collisions résonantes sous forme de franges de Ramsey (dans une vision d'interférométrie atomique, ou oscillations de Stückelberg dans une vision collisionnelle). Dans l'expérience [Renn and Gallagher, 1991], partant d'un jet effusif de potassium, et en utilisant un sélecteur en vitesse, les temps de collisions sont de l'ordre de la microseconde. La résonance étudiée est :

$$|29d_{3/2}, 29s_{1/2}\rangle \rightarrow |28p_{1/2}, 29p_{1/2}\rangle$$

L'observation des franges de Ramsey est possible en bénéficiant des faibles moments dipolaires électriques des états de paire du potassium à résonance :  $\mu_{29d,29s} \approx -52 \text{ MHz/V/cm}$  et  $\mu_{28p,29p} \approx -22 \text{ MHz/V/cm}$ . Par application d'un champ électrique statique, et d'un champ radiofréquence ayant une période de l'ordre de la  $\mu s$ , les amplitudes de transition interfèrent constructivement ou destructivement en fonction de la différence de phase accumulée entre les deux chemins à travers la résonance.

En jet thermique, les paramètres d'impact restent relativement faibles, dus aux vitesses moyennes élevées, les temps de collisions sont de l'ordre de quelques ns [Gallagher

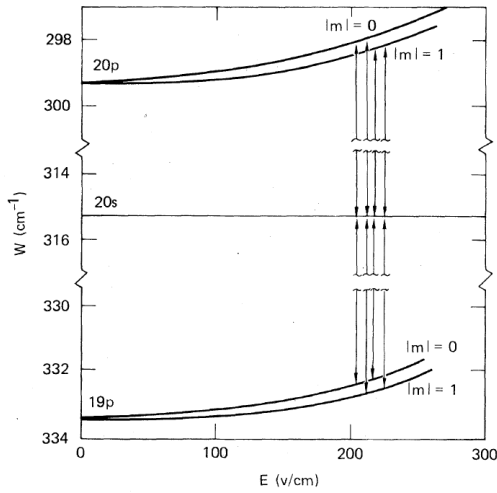


FIG. 1. Energy levels for the  $19p$ ,  $20s$ , and  $20p$  states in an electric field. The collisional resonances are shown by the arrows.

FIGURE 1.1 – Extrait de [Safinya et al., 1981]. Niveaux d'énergie des états  $19p$ ,  $20s$  et  $20p$ . Lorsque l'énergie de l'état  $20s$  est équidistant des énergies de niveaux  $20p$  et  $19p$ , une résonance apparaît.

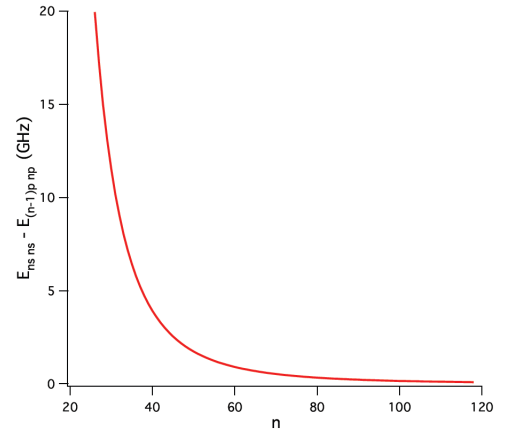


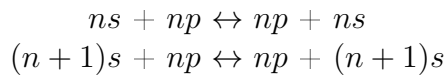
FIGURE 1.2 – Extrait de [Saquet, 2009]. Différence d'énergie entre les niveaux  $|ns, ns\rangle$  et  $|np, (n-1)p\rangle$  pour le sodium en champ électrique nul, en fonction du nombre quantique principal  $n$ .

et al., 1982, Veale et al., 1996]. Il est possible d'augmenter les sections efficaces de collisions inélastiques pour des systèmes d'atomes de Rydberg dans des régimes plus froids. Les atomes de Rydberg en piège magnéto-optique permettent de descendre dans ces régimes de températures où à l'échelle des expériences, les atomes de Rydberg peuvent être considérés comme gelés (les temps de collisions sont de l'ordre de  $100 \mu s$ ).

Pour les régimes froids ( $\approx 100 \mu K$ ), les études de l'excitation vers un état de Rydberg du césium et du rubidium, à partir d'un piège magnéto-optique, ont été réalisées à partir de 1998 [Mourachko et al., 1998, Anderson et al., 1998]. Le principal résultat de ces expériences est représenté sur la figure 1.4. Le transfert d'intérêt, représenté schématiquement, par la figure 1.3, est :

$$|np_{3/2}, |m_j| = \frac{1}{2}, np_{3/2}, |m_j| = \frac{1}{2}\rangle \rightarrow |ns, (n+1)s\rangle$$

Ces expériences consistent à mesurer l'état produit de la réaction  $ns$  en fonction du champ électrique pour différentes valeur de densité du nuage froid d'atomes de Rydberg. Le modèle à deux corps en interaction dipôle-dipôle, de paires isolées de leur environnement ne suffit pas à expliquer les grandes largeurs des résonances en champ électrique observées en fonction de la densité. Les effets à  $N$  corps sont présents, et la prise en compte des propriétés de migration des produits de la réaction dans l'environnement des paires ainsi formées permet d'expliquer les largeurs observées. Ces échanges sont du type :



Les migrations des produits de la réaction (analogue au processus de diffusions dans des systèmes tels que les verres de spin) sont toujours résonantes, indépendamment du champ

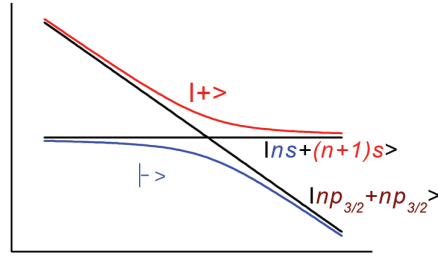


FIGURE 1.3 – Schéma représentant le croisement évité entre les états de paire du transfert considéré en champ électrique (énergies des états de paire en fonction du champ électrique). En présence de l'interaction dipôle-dipôle, les nouveaux états propres (mélange des états de paire) sont notés  $|+\rangle$ ,  $|-\rangle$ .

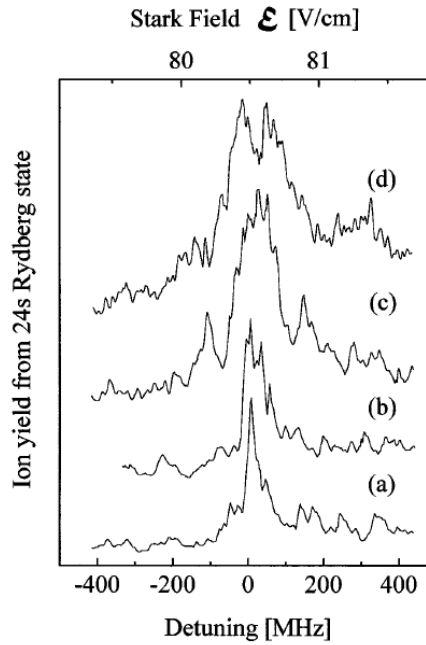


FIG. 2. Energy transfer resonance Eq. (1) for  $23p_{3/2}$  state with  $|m| = 1/2$ . The ionic yield for the  $24s_{1/2}$  state is shown as a function of the detuning controlled by  $\mathcal{E}$  field. Estimated densities of  $\text{Cs}[23p_{3/2}, |m| = 1/2]$  atoms: (a)  $4 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$ , (b)  $7 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$ , (c)  $4 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$ , and (d)  $10^{10} \text{ cm}^{-3}$ .

FIGURE 1.4 – Résonances de collisions extrait de [Mourachko et al., 1998]. La production d'état  $24s$  est mesurée en fonction du champ électrique (représenté aussi en fonction de la fréquence, connaissant la variation du niveau  $23p_{3/2}$  par effet Stark), pour différentes densités du nuage d'atomes de Rydberg.

électrique.

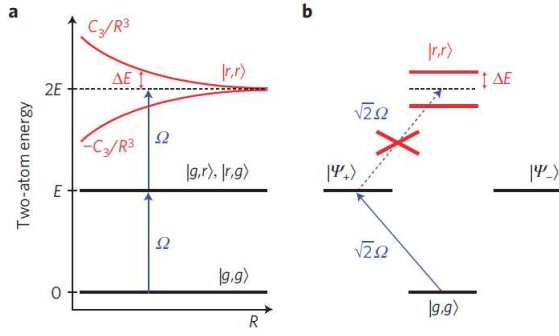
Les expériences présentées dans ce manuscrit s'inscrivent particulièrement dans le prolongement des expériences présentées précédemment. Les atomes de Rydberg étant formés au sein d'un jet supersonique, les expériences menées ont permis l'étude des interactions entre deux atomes de Rydberg dans un régime de température intermédiaire situé entre

le régime thermique et le régime froid. Nous traiterons du comportement adiabatique des états de paire, autour d'une résonance de Förster, reposant sur l'étude d'un unique passage adiabatique entre deux états de paire d'atomes de Rydberg couplés par l'interaction dipôle-dipôle, constituant ainsi un système modèle.

**Blocage dipolaire** Nous avons vu que l'interaction dipôle-dipôle induit un croisement évité entre les états de paire considérés (comme représenté sur la figure 1.3 à résonance). Les niveaux d'énergie des états de paire d'atomes de Rydberg se trouvent alors déplacés. Une conséquence des déplacements des niveaux de paire est le blocage dipolaire. Il peut être défini comme une diminution de la probabilité d'excitation vers un état de Rydberg à partir de l'état fondamental pour des atomes dont l'interaction dipôle-dipôle est significative. L'observation spectroscopique du blocage dipolaire dépend donc de la largeur spectrale du laser utilisé. Les premiers effets spectroscopiques par diminution de la probabilité d'excitation ont été observés pour l'interaction dipôle-dipôle du deuxième ordre (l'interaction de Van der Waals) dans [Tong et al., 2004, Singer et al., 2004]. À résonance de Förster, les effets spectroscopiques haute résolution d'une diminution significative de la probabilité d'excitation ont été observés dans [Vogt et al., 2007, 2008], et longuement détaillée dans les thèses [Vogt, 2006, Chotia, 2009] où les effets parasites des ions sont pris en compte. Le blocage dipolaire peut être mis en évidence par des études statistiques du nombre d'atomes détectés dont la déviation par rapport à la statistique de Poisson caractérise l'interaction dipôle-dipôle [Liebisch et al., 2005]. La spectroscopie micro-onde entre des états de Rydberg voisins est aussi une technique permettant de rendre compte de l'interaction dipôle-dipôle [Afrousheh et al., 2004].

Toutes ces résultats sont obtenus à partir de nuages d'atomes de Rydberg, contenant environ  $10^5$  atomes. Le blocage dipolaire ainsi mis en évidence résulte d'une moyenne d'échantillon de l'interaction dipôle-dipôle. L'utilisation de systèmes d'atomes uniques piégés au waist de deux faisceaux laser de forte intensité (pinces optiques) est une technique idéale pour l'observation de l'excitation collective de deux atomes en régime de blocage dipolaire fort. Dans l'expérience [Gaëtan et al., 2009], deux atomes de  $^{87}\text{Rb}$  sont piégés dans deux pinces optiques, permettant ainsi de faire varier précisément la distance interatomique. Ces expériences sont basées sur la mesure des oscillations de Rabi lors de l'excitation à partir du niveau fondamental vers un état de Rydberg (judicieusement choisi) en fonction de la distance interatomique. Le schéma de l'excitation vers un état de Rydberg est représenté sur la figure 1.5, et représente schématiquement le décalage des niveaux correspondant à deux atomes de Rydberg excités séparés d'une distance interatomique  $R$ . Ces expériences démontrent le blocage de l'excitation des deux atomes lorsqu'ils sont suffisamment proches. Le résultat d'intérêt est représenté sur la figure 1.6 : les carrés bleus représentent la probabilité d'exciter un atome sur les deux lorsque les deux atomes sont distants de  $3.6 \mu\text{m}$  en fonction du temps d'application du laser d'excitation. Les points rouges représentent les oscillations de Rabi pour l'excitation d'un des deux atomes lorsque l'autre est absent. Le rapport des fréquences de Rabi dans ces deux situations vaut  $\sqrt{2}$ , correspondant à l'excitation de la superposition symétrique entre les deux atomes (a) et (b), noté  $|\psi^+\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_a} |r, g\rangle + e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_b} |g, r\rangle)$ .

Plus généralement, lorsque l'interaction dipôle-dipôle est suffisamment forte, l'excitation collective d'un nuage d'atomes froids vers un état de Rydberg permet de créer l'état



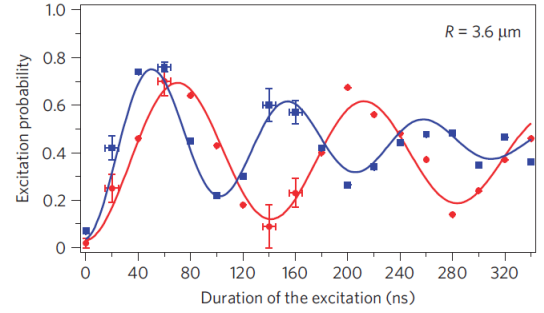
**Figure 1 | Rydberg excitation of two atoms in the blockade regime.**  
**a**, Principle of the Rydberg blockade between two atoms separated by a distance  $R$ . Two states  $|g\rangle$  and  $|r\rangle$  are coupled with Rabi frequency  $\Omega$ . When the two atoms are in state  $|r,r\rangle$ , they 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.

FIGURE 1.5 – Schéma de l’excitation vers un état de Rydberg, extrait de [Gaëtan et al., 2009] et du décalage des niveaux correspondant à deux atomes de Rydberg excités séparés d’une distance interatomique  $R$ .

collectif où, dans une sphère dite de blocage, un seul atome est excité :

$|\psi^{N,1}\rangle = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{i=1}^N e^{i\vec{k}\vec{r}_i} |g_0, g_1, \dots, r_i, \dots, g_n\rangle$ . Chaque atome de Rydberg isolé dans sa sphère de blocage est aussi appelé superatome. Une revue complète des expériences d’excitation collective de nuages denses en régime de blocage dipolaire peut être trouvée dans [Comparat and Pillet, 2010]. Des expériences telles que [Heidemann et al., 2007, Raitzsch et al., 2008] mettent en évidence l’excitation collective d’un ensemble d’atomes de Rydberg en forte interaction par l’utilisation de la technique d’écho de photon. Nous citerons également les résultats expérimentaux de [Pritchard et al., 2010], où la méthode de transparence électromagnétique induite est utilisé sur des gaz denses d’atomes de Rydberg permettant de mettre en évidence des états collectifs avec 3 atomes présents dans la sphère de blocage. Ces états collectifs peuvent produire une cristallisation du nuage d’atomes de Rydberg [Pohl et al., 2010]. Dans [Cinti et al., 2010], les simulations numériques de ces systèmes prédisent l’existence d’une phase dite supersolide pour un ensemble d’atomes dans le régime de blocage dipolaire soumis aux forces dipolaires répulsives résultant d’un arrangement sous forme de cristal de groupement d’atomes.

Les atomes de Rydberg en régime de blocage dipolaire sont de très bons candidats dans le domaine de l’information quantique, pour la réalisation de portes quantiques logiques [Lukin et al., 2001]. Il permettrait également de simuler des situations complexes dans le domaine de la matière condensée dont les traitements numériques se révèlent extrêmement lourds.



**Figure 4 | Excitation of one atom versus collective excitation of two atoms separated by 3.6  $\mu\text{m}$ .** 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  $\Omega/2\pi = 7.0 \pm 0.2$  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  $\Omega'/2\pi = 9.7 \pm 0.2$  MHz. The ratio of the oscillation frequencies is  $1.38 \pm 0.03$ , close to the value  $\sqrt{2}$  expected for the collective oscillation of two atoms between  $|g,g\rangle$  and  $|\Psi_+\rangle$ .

FIGURE 1.6 – Excitation collective de deux atomes séparés de 3.6  $\mu\text{m}$ . Le rapport des fréquences met en évidence l’excitation collective entre l’état de paire fondamentale  $|g,g\rangle$  et la superposition symétrique  $|\psi^+\rangle$ .



**Superradiance** Un autre exemple de phénomène collectif entre atomes de Rydberg est l'effet de superradiance. La superradiance est un processus collectif cohérent prédit et observé lorsque les distances interatomiques sont inférieures à la longueur d'onde du photon de l'émission spontanée [Dicke, 1954, Gross and Haroche, 1982, Pillet, 1982] (pour les atomes de Rydberg, la longueur d'onde  $\lambda$  du photon de l'émission spontanée se situe dans le domaine micro-onde). Considérant alors un volume de l'ordre de  $\lambda^3$ , il s'agit de décrire l'interaction d'un ensemble de  $N$  atomes à deux niveaux ( $N$  dipôles atomiques) avec un mode du champ électromagnétique, c'est à dire l'interaction de chaque dipôle avec le champ électromagnétique émis par tous les autres dipôles. Dans ces systèmes, la superradiance correspond à une forte diminution du temps de vie de l'état excité avec un temps caractéristique de  $\frac{1}{\Gamma N}$ , donnant lieu à un signal de fluorescence proportionnel à  $N^2$ . Des effets de la superradiance, tels que la réduction du temps de vie des états excités et le transfert de populations vers des états voisins moins liés, ont pu être mesurés dans des gaz d'atomes de Rydberg [Gounand et al., 1979, Wang et al., 2007, Day et al., 2008]. L'interaction dipôle-dipôle se révélant être un facteur limitant aux effets de la superradiance dans ces systèmes.

**Plasmas ultra-froids** Un atome de Rydberg possède un électron très faiblement lié au coeur ionique, et peut être facilement ionisé par absorption du rayonnement du corps noir, ou par les forces dipolaires attractives présentes entre atomes de Rydberg conduisant à l'ionisation Penning [Robicheaux, 2005]. Les gaz denses et froids d'atomes de Rydberg s'avèrent être des systèmes où il est possible de former des plasmas dit ultra-froids. Les forces d'origine dipolaire ont été observées expérimentalement à travers l'asymétrie des profils de transfert d'énergie résonant en champ électrique [Fioretti et al., 1999], ou encore en étudiant la dynamique des atomes en interaction dipôle-dipôle à résonance en fonction de la densité atomique [Westermann et al., 2006]. Les ions ainsi formés peuvent être des effets parasites dans certaines expériences. Cependant, lorsque ce type d'ionisation se poursuit jusqu'à ce que la charge d'espace créée par l'excès d'ions soit suffisante pour piéger les électrons par des processus inverses à la recombinaison à trois corps, cela conduit spontanément à la formation d'un plasma ultra-froid [Robinson et al., 2000, Li et al., 2004, 2005, Morrison et al., 2008]. Les plasmas ultra-froids sont des systèmes nouveaux et peuvent être, d'une manière générale, formés à partir d'atomes ultra-froids suivis d'une phase d'ionisation de ces atomes. L'intérêt est de se rapprocher du régime fortement corrélé où l'énergie potentielle de Coulomb domine largement l'énergie thermique. Le premier plasma ultra-froid fut réalisé en 1999 par photoionisation d'atomes froids de xénon métastable [Killian et al., 1999]. La longueur d'onde du laser au dessus du seuil d'ionisation permettrait de choisir la température électronique du plasma, mais les processus de recombinaison à trois corps limitent son refroidissement.

**Molécules de Rydberg** Enfin, nous allons voir que les propriétés des interactions à très longues distances entre les atomes de Rydberg ouvrent de nouvelles perspectives dans le domaine des molécules froides et ultra-froides. Nous distinguerons les termes 'états de Rydberg moléculaire' et 'molécules de Rydberg', ce dernier faisant référence aux cas où un atome de Rydberg se lie à très longue distance à un autre atome qu'il soit dans son état fondamental ou dans un état de Rydberg.

Les états de Rydberg moléculaires sont analogues aux états de Rydberg atomiques. Un état de Rydberg moléculaire correspond donc à un seul électron excité 'orbitant' loin du coeur ionique moléculaire. La spectroscopie de haute précision des états de Rydberg moléculaire est une source d'information importante sur le coeur ionique, notamment sur les constantes de vibration et de rotation.

Partant de deux atomes de Rydberg ultra-froids, de part la très grande taille de la fonction d'onde électronique de l'électron de Rydberg  $\propto n^2 a_0$ , et de la possibilité de contrôler l'interaction dipôle-dipôle à l'aide de champs électriques réalisables, il est possible de créer des liaisons chimiques de type van der Waals entre deux atomes de Rydberg à très longues distances. La distance interatomique pouvant atteindre plusieurs  $\mu\text{m}$ , ces molécules sont aussi appelées macrodimères ou molécules géantes [Boisseau et al., 2002, Overstreet et al., 2009].

Un nouveau type de liaison chimique a été observé expérimentalement par photoassociation directe de nouvelles 'très grandes' molécules de Rydberg partant d'un ensemble d'atomes de  $^{87}\text{Rb}$  dense et ultra-froid [Bendkowsky et al., 2009, Bendkowsky, 2010]. Il s'agit d'une liaison entre l'électron d'un atome de Rydberg et un atome dans son état fondamental. Pour ces systèmes, les oscillations de la densité de probabilité de l'électron de Rydberg donnent lieu à des potentiels moléculaires possédant de nombreux puits. Le plus profond de ces puits est celui qui provient du dernier lobe de la fonction d'onde de l'électron de Rydberg. La taille de ces molécules correspond à la taille de la fonction d'onde de l'électron de Rydberg ( $\approx 100$  nm). Dans la vision classique, l'atome dans son état fondamental est polarisé par l'électron de Rydberg et se lie sur 'l'orbite' de l'électron de Rydberg. En se basant sur les travaux de [Omont, 1977], qui calcula le potentiel d'interaction pour la diffusion atome-électron d'un électron de Rydberg et d'un atome dans son état fondamental, Greene calcula les courbes de potentiels moléculaires pour le  $^{87}\text{Rb}$  [Greene et al., 2000]. Il prédit que les énergies de liaison dépendent de la valeur du moment angulaire  $l$  de l'électron de Rydberg et sont de l'ordre de 10 MHz pour  $l=0$ , et de l'ordre de 10 GHz pour  $l \geq 3$ . Ces observations ouvrent la voie à de nombreuses expériences et applications, comme la diffusion atome-électron à très basse énergie, la manipulation d'ensemble d'atomes ultra-froids, les molécules de Rydberg polyatomiques [Rittenhouse and Sadeghpour, 2010, Bendkowsky et al., 2010].

## Ce travail de thèse

Les expériences présentées dans ce manuscrit s'inscrivent dans le domaine de recherche actif de la physique des états de Rydberg. Les propriétés d'interaction, ici l'interaction dipôle-dipôle, des atomes de Rydberg sont abordées à travers du comportement adiabatique des états de paire soumis à un champ électrique dépendant du temps autour d'une résonance de Förster dans un régime froid et relativement peu dense.

Le chapitre 2 décrit notre dispositif expérimental. Il s'agit d'un jet supersonique pulsé d'atomes de Rydberg de sodium. La première partie de ce chapitre est consacrée aux considérations théoriques générales des atomes de Rydberg. La seconde partie de ce chapitre décrit le jet supersonique pulsé, dont la particularité est l'ensemencement des atomes de sodium dans le gaz porteur. Nous décrivons également l'excitation laser des atomes

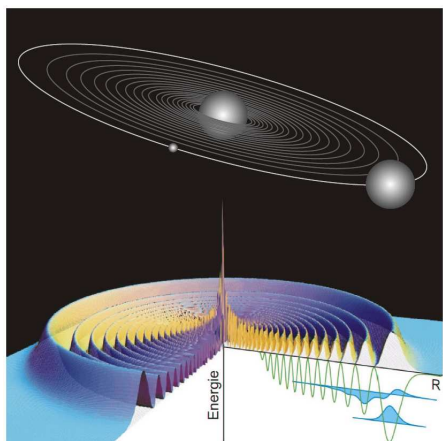


FIGURE 1.7 – Extrait de [Bendkowsky, 2010]. Représentation de la densité de présence de l'électron de Rydberg engendrant les puits des potentiels moléculaires.

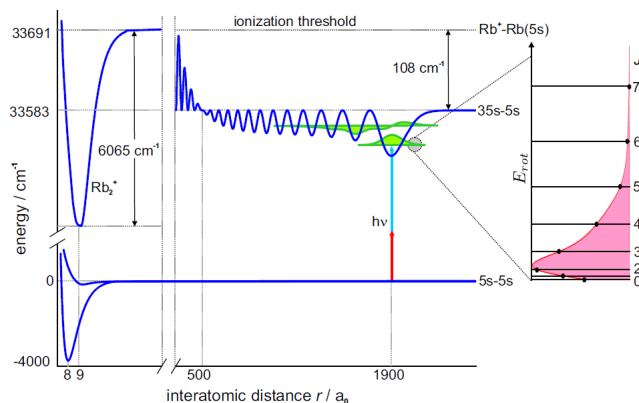


Fig. 2.13: Molecular potential curves of the electronic ground states of  $\text{Rb}_2$  and  $\text{Rb}_2^+$  [62] and of the ultralong-range molecule  $^3\Sigma(35s-5s)$ . The inset illustrates the population of the rotational levels  $E_{\text{rot}}(J)$  at a temperature of  $T = 3.5 \mu\text{K}$ .

FIGURE 1.8 – Extrait de [Bendkowsky, 2010]. Schéma de photoassociation directe pour la formation des molécules de Rydberg.

de sodium dans l'état fondamental vers un état de Rydberg. Un point important est la dispersion du signal d'atomes de Rydberg due à la technique de production employée, dont nous tirons partie pour l'analyse des signaux expérimentaux.

Le chapitre 3 est consacré à la mise en évidence expérimentale d'un unique passage adiabatique pour des états de paire d'atomes de Rydberg. Nous caractériserons la probabilité de passage adiabatique, basé sur le modèle Landau-Zener, dans le cas de l'interaction dipôle-dipôle. Nous verrons que le régime de températures atteint par les atomes de Rydberg en jet supersonique est suffisant pour traiter le gaz d'atomes de Rydberg comme gelé pendant le temps de transition. Les transitions entre états de paire sont démontrées pour  $n = 43$ ,  $n = 48$ , et  $n = 53$ . Nous démontrons que la probabilité de transition suit la variation, prévue par le modèle Landau-Zener, en fonction de la dérivée temporelle du champ électrique. La valeur de la dérivée temporelle du champ électrique est le contrôle expérimental déterminant une distance interatomique 'de coupure' en dessous de laquelle les paires ont une forte probabilité de suivre les états adiabatiques du croisement évité, et au delà de laquelle, cette probabilité est très faible. Nous pouvons alors sonder l'environnement de chaque atome que nous illustrerons, dans le chapitre suivant, par une application pour une mesure, précise et directe, de la densité du gaz d'atomes de Rydberg. De plus, ce processus à deux corps doit induire des atomes dans les états finaux de la transition, dans des états intriqués, qui sera détaillé dans le dernier chapitre.

Le chapitre 4 est donc une application pratique des transitions Landau-Zener autour d'une résonance de Förster. Une description complète des quatre croisements évités, dus à la structure des états  $np$ , met en évidence qu'un unique passage autour d'un seul croisement évité permet de sonder un volume anisotropique autour de chaque atome. Un calcul analytique dans le cas d'une interaction à deux corps est développé pour la mesure de l'efficacité du processus de passage à travers des quatre résonances. Nous tirons partie

de la dispersion du signal d'atomes de Rydberg initial permettant une mesure précise de la densité du gaz d'atome de Rydberg par l'ajustement d'un paramètre du modèle aux données expérimentales. Ce paramètre représente le rapport entre la densité du gaz et une grandeur expérimentale caractérisant le signal mesuré. Nous obtenons une précision sur la détermination de la densité meilleure que 3%. De plus, une analyse de la fluctuation de ce paramètre permet une caractérisation complète du système de détection employé.

Le chapitre 5 est une proposition de méthode permettant de démontrer l'intrication de deux atomes basée sur la mesure de la fluctuation quantique dans un processus d'oscillations de Rabi à deux photons entre des états de paire d'atome de Rydberg. Nous démontrons expérimentalement la fluctuation quantique dans le cas d'oscillations de Rabi à un atome dans le gaz de Rydberg. La production d'atomes de Rydberg étant fluctuante, cela a amené au développement d'un modèle fin reposant sur une analyse en fonction du signal, afin d'extraire des mesures, la fluctuation quantique. La mesure de la fluctuation quantique permet la calibration pour un ion unique, du système de détection, sans avoir recours au régime de comptage. De plus, cette méthode est versatile et peut s'appliquer à tout système physique dans lequel il est possible d'induire des oscillations de Rabi entre deux niveaux, ainsi qu'à tout type de détecteur. Dans l'état actuel du dispositif expérimental, l'application de cette méthode aux paires d'atomes semble difficile, le facteur limitant principal étant la faible efficacité de détection du détecteur utilisé.



# Chapitre 2

## Jet supersonique d'atomes de Rydberg

### Introduction

Ce chapitre est destiné à présenter le système utilisé pour toutes les expériences développées dans ce manuscrit. Le système est un jet supersonique pulsé d'atomes de Rydberg du sodium. L'objectif de ce chapitre est donc double : introduire les considérations théoriques des atomes de Rydberg, puis présenter le montage utilisé pour l'étude expérimentale de ces atomes.

La première partie théorique a pour but d'introduire la théorie quantique et les modèles théoriques considérés pour la description des atomes de Rydberg alcalins, que nous illustrerons dans le cas du sodium. Les atomes de Rydberg sont des atomes très excités. Les atomes de Rydberg alcalins, qui possèdent un unique électron de valence très excité, sont très bien représentés et décrits comme des atomes quasi-hydrogénoïdes. La théorie du défaut quantique permet de décrire les atomes de Rydberg alcalins, et d'en déduire leurs propriétés et leurs caractéristiques, décrites dans la première partie de ce chapitre. Leurs propriétés exacerbées, en comparaison avec l'état fondamental ou avec des états plus liés, ainsi que leurs fortes interactions avec leur environnement en font leur principal intérêt.

Dans une seconde partie, nous détaillerons le montage expérimental. Nous rappellerons les principes de l'expansion supersonique associée à la technique d'ablation laser dans le but d'obtenir un échantillon froid d'atomes de sodium dans l'état fondamental. Puis, nous détaillerons les montages expérimentaux utilisés pour la caractérisation du jet supersonique [Saquet, 2009] ainsi que pour l'excitation laser des atomes de sodium dans un état de Rydberg.

## 2.1 Considérations générales sur les atomes de Rydberg

### 2.1.1 Introduction

Balmer [Balmer, 1885] formula la loi empirique permettant de décrire les raies visibles de l'atome d'hydrogène. Rydberg généralisa à toutes les raies spectrales de l'atome d'hydrogène [Rydberg, 1890] par la formule empirique où l'énergie de liaison  $E$  s'exprime par :

$$E = -\frac{Ry}{n^2} \quad (2.1)$$

où  $Ry$  une constante et  $n$  un entier. Il faudra attendre le développement de la théorie quantique au début du 20<sup>ème</sup> siècle, en particulier le traitement complet de l'atome d'hydrogène par la mécanique quantique par Schrödinger en 1926 [Schrödinger, 1926] pour retrouver par la théorie la loi empirique de Rydberg et exprimer la constante de Rydberg  $Ry$  à l'aide des constantes fondamentales. On retrouve ainsi les séries de Rydberg correspondant aux états électroniques très excités, en introduisant un nombre quantique principal  $n$  élevé.

Pour les atomes autres que l'hydrogène, le traitement par la théorie quantique des niveaux d'énergie et des fonctions d'ondes est non soluble exactement s'agissant d'un problème à  $N$  corps. En particulier le potentiel d'interaction des électrons entre eux et des corrélations électrons-électrons nécessitent d'être approximés. Particulièrement pour les métaux alcalins, possédant un unique électron de valence, une bonne approximation permettant de retrouver les niveaux d'énergie et les fonctions d'ondes électroniques consiste à séparer l'électron de valence du reste de l'atome constituant alors le coeur ionique. L'électron de valence ressent alors un potentiel effectif, déviant du potentiel coulombien, dû aux interactions électrostatiques des électrons du coeur et du noyau atomique. Il existe différentes méthodes pour exprimer ce potentiel effectif (nous pourrions consulter les ouvrages de référence [Bransden and Joachain, 1983, Friedrich, 1991]).

Concernant les états de Rydberg atomiques, l'électron excité reste à longue distance du noyau atomique et des autres électrons, il ressent essentiellement le potentiel coulombien en  $1/r$ . Alors les états électroniques et les fonctions d'ondes sont correctement décrits en utilisant la base sphérique. En particulier pour les atomes lourds, afin de prendre en compte les effets de coeur, les états peuvent être décrits dans le cadre de la théorie du défaut quantique. L'utilisation des données expérimentales permet de déterminer complètement la fonction d'onde des états de Rydberg. Pour les états de Rydberg des atomes alcalins, l'approximation principale consiste à ne considérer que la partie de la fonction d'onde à grande distance, l'approximation de Coulomb. Cette approximation est très utile pour le calcul des moments dipolaires, appliqué au couplage des atomes de Rydberg avec un champ électrique, au calcul des forces de transitions ou de la durée de vie de ces atomes.

Dans cette première partie destinée à présenter les caractéristiques des états de Rydberg des atomes alcalins, nous rappellerons d'abord le principe du calcul des fonctions d'ondes et des niveaux d'énergie du sodium : atome alcalin d'intérêt pour les expériences présentées dans ce manuscrit. Puis nous présenterons les états de Rydberg des atomes

alcalins, nous introduirons les principales idées de la théorie du défaut quantique. Puis nous rappellerons les méthodes de calcul des éléments de matrice de l'opérateur dipolaire électrique que nous appliquerons au calcul des forces de transitions et des durées de vie des atomes de Rydberg. Enfin, nous introduirons le calcul du couplage des atomes de Rydberg avec un champ électrique statique que nous illustrerons dans le cas du sodium.

## 2.1.2 Fonctions d'ondes et premiers niveaux d'énergie du sodium

### 2.1.2.1 Atome hydrogénoïde

En première approximation, afin de se ramener aux solutions analytiques du traitement quantique de l'atome d'hydrogène, chaque électron est indépendant et ressent uniquement le potentiel coulombien du au coeur de charge  $Z_{\text{eff}}e$ , composé du noyau de l'atome de charge  $+Ze$  et des autres électrons :  $V(r) = -\frac{Z_{\text{eff}}e^2}{r}$ . L'approximation de l'atome hydrogénoïde consiste donc à ne considérer qu'un seul électron de l'atome ainsi que l'ion atomique.

Dans cette vision simple, l'équation de Schrödinger indépendante du temps s'écrit, dans le référentiel du centre de masse :

$$\left[ -\frac{\hbar^2 \nabla_{\vec{r}}^2}{2\mu_e} - \frac{Z_{\text{eff}}e^2}{r} \right] \psi(\vec{r}) = E\psi(\vec{r}) \quad (2.2)$$

où  $\mu_e = \frac{m_e m_c}{m_e + m_c}$  est la masse réduite. La masse de l'électron  $m_e$  étant très petite devant la masse du coeur ionique  $m_c$ , alors  $\mu_e \approx m_e$ .

Cette équation admet une infinité de solutions d'états propres liés dont les énergies propres sont données par :

$$E_n = \frac{-Z_{\text{eff}}e^2}{2a_{\mu_e} n^2} \quad (2.3)$$

avec  $a_{\mu_e} = \frac{a_0 m_e}{\mu_e}$  est le rayon de Bohr tenant compte de la masse fini du coeur ionique. Les états propres associés  $|nlm\rangle$  constituent une base de l'espace des états. Le nombre quantique  $l$  est associé au moment cinétique orbital de l'électron, et  $m$  à sa projection sur un axe de quantification. Les fonctions d'ondes  $\psi_{nlm}(\vec{r})$  sont séparables vis-à-vis de leurs coordonnées radiale et angulaire, usuellement :

$$\psi_{nlm}(\vec{r}) = \frac{u_{nl}(r)}{r} Y_{lm}(\theta, \phi) \quad (2.4)$$

### 2.1.2.2 Le sodium : atome alcalin

Les atomes alcalins sont les éléments de la première colonne du tableau de la classification périodique des éléments de Mendeleiev. Dans l'ordre de remplissage des couches électroniques, les atomes alcalins possèdent un unique électron de valence sur une couche  $ns$ . Les autres électrons sont plus fortement liés et constituent avec le noyau le coeur ionique. En ce sens les atomes alcalins ressemblent à l'atome d'hydrogène et nous pouvons appliquer la vision de l'atome hydrogénoïde où l'électron de valence ressent la charge  $+Ze$  du noyau écrantée par les électrons plus fortement liés au coeur à travers un potentiel effectif  $V_{\text{eff}}(r)$ . Le potentiel effectif ne possédant pas les mêmes symétries que le potentiel coulombien, la dégénérescence des niveaux d'énergie en fonction du nombre quantique  $l$



est généralement levée. Le potentiel effectif peut être déterminé par différentes méthodes d'approximation : le potentiel effectif moyen d'Hartree et Slater, la théorie classique de Thomas-Fermi, la méthode variationnelle d'Hartree-Fock, ou encore la théorie de la fonctionnelle de la densité [Messiah, 1959, Landau and Lifchitz, 1975, Friedrich, 1991]. Une méthode expérimentale consiste à choisir judicieusement une expression modèle du potentiel effectif servant à reproduire les mesures expérimentales des niveaux d'énergie, comme par exemple la forme suivante introduite par Klapisch [Klapisch, 1971] :

$$V_{\text{eff}}(r) = -\frac{1 + (Z - 1)e^{-\alpha_1 r} - r(\alpha_3 + \alpha_4 r)e^{-\alpha_2 r}}{r} - \frac{\alpha_c}{2r^4} \left[ 1 - e^{-\left(\frac{r}{r_c}\right)^6} \right] \xrightarrow{r \rightarrow \infty} \frac{1}{r} \quad (2.5)$$

Les coefficients  $\alpha_i$  peuvent dépendre du nombre quantique  $l$  afin d'augmenter la précision sur la détermination du potentiel effectif. Notons que le terme en  $r^{-4}$  provient du développement multipolaire des interactions électrostatiques et représente l'interaction au second ordre de l'électron de valence et du dipôle induit du coeur ionique polarisé. Cette effet est quantifié par le coefficient  $\alpha_c$  appelé polarisabilité du coeur. Les coefficients de ce développement  $\alpha_i, \alpha_c$  et  $r_c$  peuvent être trouver dans l'article [Marinescu et al., 1994] où ces coefficients sont ajustés à l'expérience.

Quelque soit le potentiel effectif utilisé, l'équation de Schrödinger indépendante du temps s'écrit :

$$\left[ -\frac{\hbar^2 \nabla_{\vec{r}}^2}{2\mu_e} + V_{\text{eff}}(r) \right] \psi(\vec{r}) = E\psi(\vec{r}) \quad (2.6)$$

En général, les niveaux d'énergies propres peuvent être écrits, eux, sous la forme approchée :

$$E(n, l) = \frac{-1}{2a_{\mu_e}(n - \delta_{nl})^2} \quad (2.7)$$

où  $\delta_{nl}$  est appelé le défaut quantique (par analogie avec les défauts quantiques introduits dans la théorie du défaut quantique décrivant les niveaux électroniques des états de Rydberg développé par Seaton [Seaton, 1983]). Il est usuel d'exprimer les niveaux d'énergie par  $n^* = n - \delta_{nl}$  appelé nombre quantique principal effectif.

Pour définir les niveaux d'énergie avec précision, il faut ajouter à l'équation 2.7 les corrections de structure fine et de structure hyperfine. La structure fine des niveaux atomiques provient de l'interaction spin-orbite représentant le couplage entre le spin de l'électron  $\vec{s}$  et son mouvement de rotation autour du noyau, soit son moment cinétique orbital  $\vec{l}$ . Les niveaux d'énergie de structure fine sont exprimés en fonction du nombre quantique  $j$  correspondant aux valeurs propres de l'opérateur moment cinétique total  $\vec{j} = \vec{l} + \vec{s}$ . La structure hyperfine provient, elle, du couplage entre le spin nucléaire  $\vec{i}$  et du moment cinétique total de l'électron  $\vec{j}$ . De même, les niveaux d'énergie de structure hyperfine sont représentés en fonction du nombre quantique  $f$  correspondant aux valeurs propres de l'opérateur moment cinétique total  $\vec{f} = \vec{j} + \vec{i}$ .

Le sodium possède un seul isotope stable à l'état naturel :  $^{23}_{11}\text{Na}$  (spin nucléaire  $\vec{i} = \frac{3}{2}$ ) avec 11 électrons dont l'électron de valence occupe l'orbitale 3s. Les figures 2.1 et 2.2

représentent les structures électroniques des premiers niveaux du sodium mis en jeu dans les deux transitions les plus intenses :  $3s_{1/2} \rightarrow 3p_{1/2}$  (figure 2.1) nommée la raie D1 et  $3s_{1/2} \rightarrow 3p_{3/2}$  (figure 2.2) nommée la raie D2. Ces deux transitions ont pour longueurs d'onde respectivement  $\lambda = 589.755 \text{ nm}$ , et  $\lambda = 589.158 \text{ nm}$  émettant dans le jaune. Ces transitions sont utilisées pour refroidir et piéger le sodium dans les pièges magnéto-optique [Raab et al., 1987]. Les niveaux d'énergie sont extraits de la revue de Daniel A. Steck [Steck, 2008].

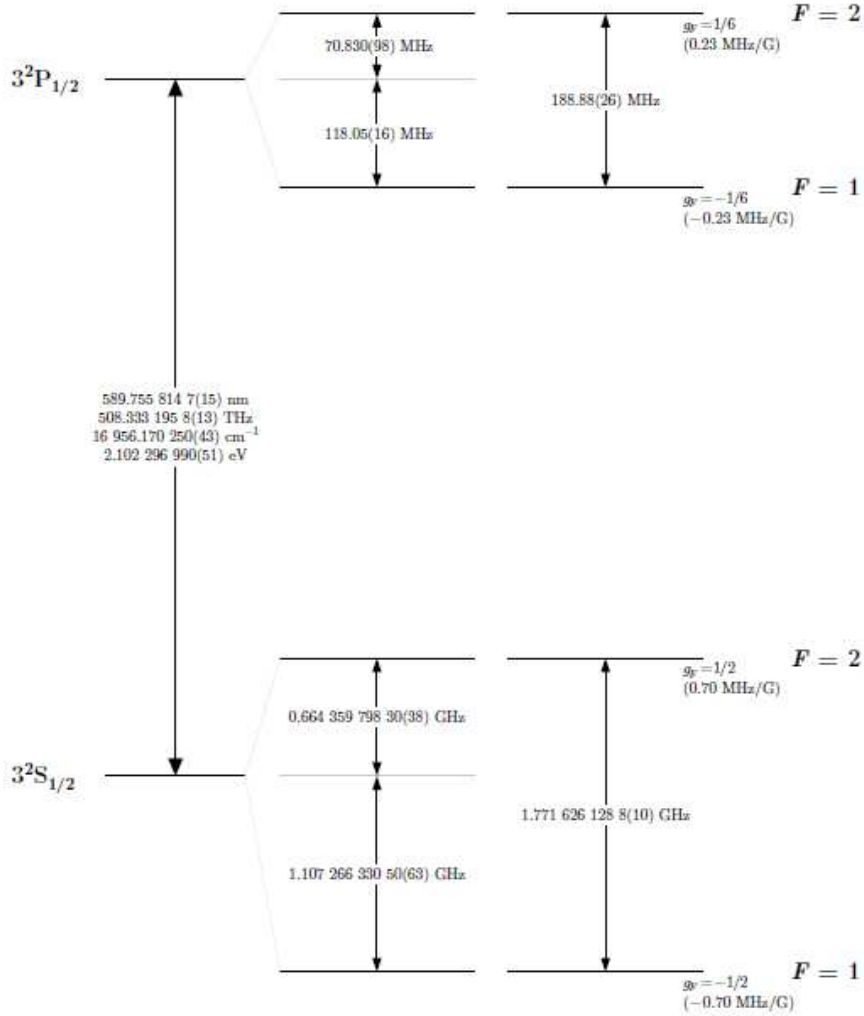


FIGURE 2.1 – Schéma des premiers niveaux d'énergie de structure fine du sodium pour la transition D1.

### 2.1.3 États de Rydberg des atomes alcalins

Les états électroniques atomiques dénommés états de Rydberg sont les états de nombre quantique principal  $n$  élevé. Dans le cas des états de Rydberg des atomes alcalins, l'approximation de l'atome hydrogénoïde prend tout son sens. Un atome alcalin peut être raisonnablement décomposé par un coeur ionique à couches fermées et un électron de valence. La correction des fonctions d'ondes et des niveaux d'énergie des atomes de Rydberg

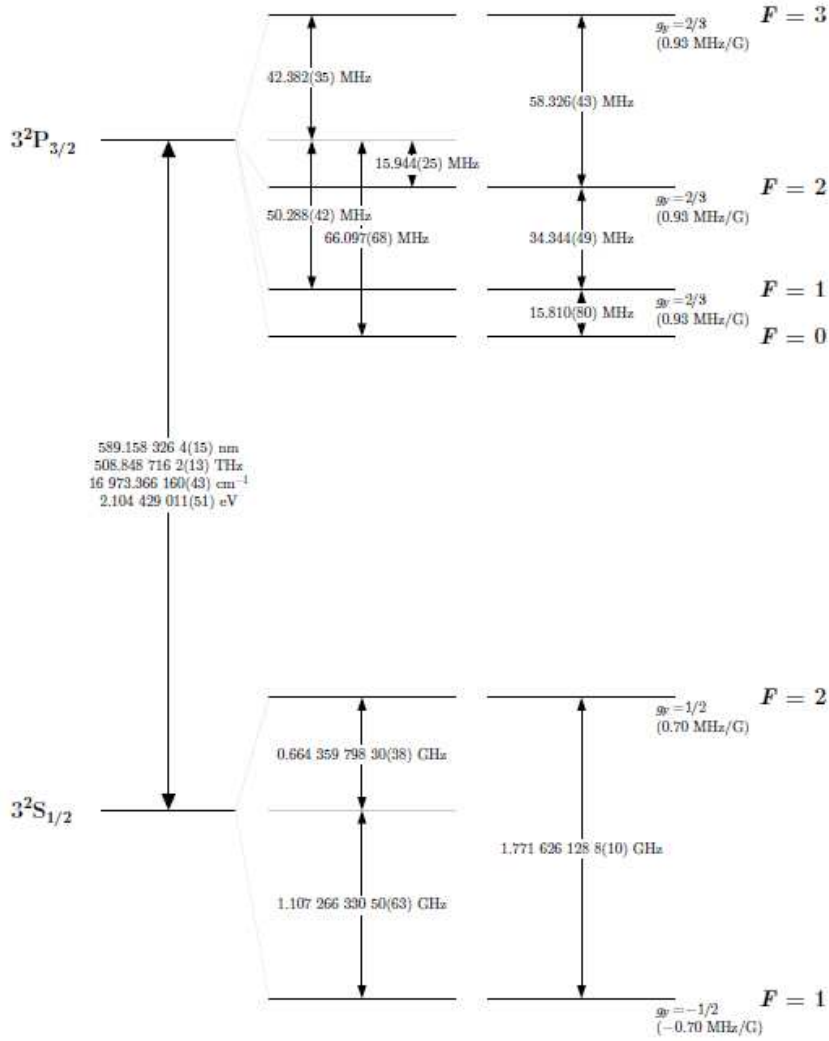


FIGURE 2.2 – Schéma des premiers niveaux d'énergie de structure fine du sodium pour la transition D2.

alcalins par rapport à ceux de l'hydrogène dépendra essentiellement de l'état de l'électron de valence, particulièrement de son nombre quantique orbital  $l$ .

### 2.1.3.1 Vision classique

Classiquement, l'interaction électrostatique entre deux charges est un problème de Kepler (force centrale conservative). L'électron interagissant avec le potentiel purement coulombien décrit des trajectoires elliptiques. Dans ce cas, le vecteur moment cinétique  $\vec{L}$  et le vecteur de Runge-Lenz  $\vec{A}$ , décrivant l'excentricité de la trajectoire elliptique, sont des constantes du mouvement. Le module de  $\vec{A}$  s'écrit :

$$A = \sqrt{m_e^2 e^4 + 2m_e E_{\text{totale}} L^2}$$

Par quantification du moment cinétique orbital  $L^2 \equiv \hbar^2 l(l+1)$ , on en déduit que les mouvements, dans la vision classique, associés aux petites valeurs de  $l$  sont très excentrés et l'électron passe à proximité du centre attracteur. Au contraire si  $l$  est grand, l'orbite

de l'électron est dans ce cas quasi-circulaire, et l'électron reste loin du coeur. Nous pouvons appliquer cette analogie classique à l'électron de valence de l'atome alcalin dans un état de Rydberg. On note  $Z_{\text{eff}}$  la charge électrique vu par l'électron de valence, constituée du noyau atomique écranté par les électrons du coeur. Si l'électron est dans un état de grande valeur de moment cinétique orbital  $l$ , la trajectoire classique associée est circulaire, alors l'électron ne ressent pas la structure du coeur ionique, et ressent principalement le potentiel coulombien. L'état électronique est décrit alors dans le cadre de l'atome hydrogénoïde avec  $Z_{\text{eff}} \approx 1$ . En revanche, si l'électron est dans un état de petite valeur de moment cinétique orbital, la trajectoire classique associée est dite pénétrante car l'électron s'approche près du coeur ionique, il peut alors pénétrer le coeur ionique et le polariser. La charge effective ressentie sera plus grande, l'énergie de liaison plus grande, et les énergies propres des états seront plus faibles que dans le cas de l'approximation de l'atome hydrogénoïde. Près du coeur ionique, le potentiel ressenti dévie alors du potentiel purement coulombien, le vecteur de Runge-Lenz n'est plus une constante du mouvement et tourne lentement dans le plan de l'orbite correspondant à une lente précession.

### 2.1.3.2 Théorie du défaut quantique

Dès le milieu du 20<sup>ème</sup>, les théories analytiques concernant les problèmes de diffusion ont connu un développement très rapide [Ross and Shaw, 1960, 1961]. Suite au développement de ces théories dans le cas de la diffusion d'un électron par un ion positif, Seaton généralisa la théorie du défaut quantique [Seaton, 1983] introduite par Ham d'après [Ross and Shaw, 1955] en physique du solide. L'hypothèse de base de la théorie du défaut quantique est la séparation de l'espace en deux régions à une certaine distance  $r_0$  de l'ordre de grandeur de la taille du coeur. La région définie par  $r \leq r_0$  représente la région où l'électron de valence et le reste de l'atome interagissent. Les interactions mises en jeu dans cette région sont exprimées à travers un seul paramètre : le défaut quantique  $\mu_l$  qui dépend du moment cinétique orbital et qui varie très peu avec l'énergie, c'est à dire avec le nombre quantique principal  $n$ . Au delà de cette région  $r > r_0$ , le potentiel vu par l'électron est purement coulombien. La fonction d'onde de l'électron est factorisable par une partie radiale et une harmonique sphérique dans le cadre d'un potentiel à symétrie sphérique :  $\psi(\vec{r}) = \frac{u(r)}{r} Y_l^m(\theta, \phi)$ .

La partie radiale de l'équation de Schrödinger indépendante du temps s'écrit (en u.a.) :

$$\left[ \frac{d^2}{dr^2} + 2(E - V(r)) \right] u(r) = 0 \quad (2.8)$$

où  $V(r) = -\frac{1}{r} + \frac{l(l+1)}{2r^2}$ .

Cette équation différentielle du second ordre est appelée équation de Coulomb et possède deux solutions analytiques indépendantes appelées fonctions de Coulomb [Abramowitz and Stegun, 1968]. Ces fonctions sont dites régulière, noté  $f(E, r)$ , et irrégulière, noté  $g(E, r)$ . Pour  $E > 0$  et  $E < 0$ , à l'origine, ces fonctions se comportent comme :

$$f(E, r, l) \xrightarrow[r \approx 0]{} r^{l+1} \quad (2.9)$$

$$g(E, r, l) \xrightarrow[r \approx 0]{} r^{-l} \quad (2.10)$$

Pour les états liés de l'électron, dans la partie de l'espace où le potentiel est purement coulombien, la fonction d'onde radiale doit être écrite comme une combinaison linéaire des deux solutions indépendantes de l'équation de Coulomb :

$$u(r) = f(E, r, l) \cos(\pi\mu_l) - g(E, r, l) \sin(\pi\mu_l) \quad (2.11)$$

Les coefficients de la combinaison linéaire,  $\cos(\pi\mu_l)$  et  $\sin(\pi\mu_l)$ , dépendent des conditions aux limites en  $r = r_0$ .  $\mu_l$  est le défaut quantique et  $\pi\mu_l$  représente la phase relative entre les deux solutions indépendantes  $f(E, r)$  et  $g(E, r)$ . Pour  $E < 0$ , en posant,  $E = \frac{-1}{2\nu^2}$  avec  $\nu$  le nombre quantique principal effectif, et connaissant le comportement asymptotique oscillant des fonctions de Coulomb, on obtient le comportement asymptotique pour  $u(r)$  suivant :

$$u(r) \xrightarrow{r \rightarrow \infty} A(r, \nu) \sin[\pi(\nu - l + \mu_l)] - B(r, \nu) \cos[\pi(\nu - l + \mu_l)] \quad (2.12)$$

Afin de trouver les états liés, la fonction d'onde radiale doit s'annuler à l'infini :  $\lim_{r \rightarrow \infty} u(r) = 0$ , soit :

$$\sin[\pi(\nu - l + \mu_l)] = 0 \Leftrightarrow \nu - l + \mu_l = n \text{ entier} \quad (2.13)$$

Puisque  $l$  est entier, l'énergie s'écrit alors :

$$E_n = -\frac{1}{2\nu^2} = -\frac{1}{(n - \mu_l)^2} \quad (2.14)$$

Nous pourrions trouver plus de détails dans les références [Seaton, 1983, Gallagher, 1994, Jungen, 2009] en particulier sur la généralisation de la théorie du défaut quantique pour des potentiels autres que le potentiel Coulombien, ou encore lorsqu'il faut considérer des atomes possédant plus qu'un électron de valence (la classe des alcalino-terreux), c'est à dire en considérant les corrélations électroniques (théorie généralisée du défaut quantique multi-voies [Aymar et al., 1996]).

Les défauts quantiques peuvent être mesuré expérimentalement avec précision. En prenant en compte la structure fine des états de Rydberg, le défaut quantique est exprimé par la formule de Ritz [Gallagher, 1994] :

$$\mu_{nlj} = \mu_0(lj) + \frac{\mu_2(lj)}{(n - \mu_0(lj))^2} + \dots \quad (2.15)$$

Les défauts quantiques des états de Rydberg du sodium sont bien connus, ils ont été mesurés par différentes méthodes spectroscopiques : micro-onde [Fabre et al., 1978, Gray et al., 1988, Dyubko et al., 1995], Stark [Ciocca et al., 1992, Baugh et al., 1998], ou encore optique [Ducas and Zimmerman, 1977]. Le tableau 2.1 récapitule les défauts quantiques pour les états de Rydberg du sodium pour les différents états de structure fine.

#### 2.1.4 Éléments de matrice de l'opérateur moment dipolaire électrique

Le moment dipolaire électrique  $\hat{\mu} = e\hat{r}$  de l'électron intervient dans de nombreux problèmes d'électrostatiques et d'électrodynamiques. En physique atomique, de nombreux

TABLE 2.1 – Table des défauts quantiques pour Na.

$nl_j$	$\mu_0$	$\mu_2$
$ns_{1/2}$	1.3479692	0.599735
$np_{1/2}$	0.85544502	0.11190
$np_{3/2}$	0.8546261	0.11236
$nd_{3/2}$	0.014909286	-0.042506
$nd_{5/2}$	0.01492422	-0.042585
$nf_{5/2}$	0.001632977	-0.0069906
$nf_{7/2}$	0.001630875	-0.0069824
$ng_{7/2}$	0.00043825	-0.00283
$ng_{9/2}$	0.00043740	-0.00297

observables font apparaître l'opérateur moment dipolaire électrique  $\hat{\mu}$  comme par exemple dans le calcul des probabilités de transitions et des durées de vie radiative, de l'effet Stark ou encore de l'interaction dipôle-dipôle. Il s'agit alors de calculer l'élément de matrice de couplage dipolaire électrique entre les états  $|njm_j\rangle$  et  $|n'j'm'_j\rangle$ , avec  $j$  un moment angulaire quelconque. Soit l'élément de matrice  $\langle njm_j | \hat{\mu} | n'j'm'_j \rangle$  correspondant à l'intégrale de recouvrement des fonctions d'ondes avec le moment dipolaire électrique.

L'opérateur dipolaire électrique  $\hat{\mu}$  est un opérateur vectoriel, soit un tenseur de rang 1, dont les composantes  $\mu_q$  dans la base des coordonnées sphériques ( $e_{+1}, e_0, e_{-1}$ ) s'expriment [Varshalovich et al., 1989] :

$$\hat{\mu} = e \begin{pmatrix} \sqrt{\frac{4\pi}{3}} r Y_{+1}^1(\theta, \varphi) \\ r \cos \theta \\ \sqrt{\frac{4\pi}{3}} r Y_{-1}^1(\theta, \varphi) \end{pmatrix} \quad (2.16)$$

Afin de simplifier le calcul des éléments de matrice d'un tel opérateur, la méthode consiste à appliquer successivement le théorème de Wigner-Eckart afin de séparer complètement la partie radiale du couplage angulaire de l'opérateur pris entre les états quantiques de structure fine  $|n, l, j, m_j\rangle$ .

En effet, d'une manière générale, les éléments de matrice de la composante  $q$  d'un tenseur irréductible de rang  $k$ ,  $T^k$ , dans la base des fonctions propres de l'opérateur moment angulaire, s'exprime à travers l'élément de matrice réduit du tenseur  $T^k$  indépendant de  $q, m_j$  et  $m'_j$ , et du coefficient 3j de Wigner (couplage de deux moments cinétiques) :

$$\langle n, j, m_j | T_q^k | n', j', m'_j \rangle = (-1)^{j-m_j} \begin{pmatrix} j & k & j' \\ -m_j & q & m'_j \end{pmatrix} \langle n, j || T^k || n', j' \rangle \quad (2.17)$$

Dans le cas de la composante  $q$  de l'opérateur dipolaire électrique, les éléments de matrice, dans la base  $|nlm\rangle$  se réduisent à, selon 2.17 :

$$\langle n, l, m_l | \mu_q | n', l', m'_l \rangle = (-1)^{l-m_l} \begin{pmatrix} l & 1 & l' \\ -m_l & q & m'_l \end{pmatrix} \langle n, l | \mu | n', l' \rangle \quad (2.18)$$

L'élément de matrice réduit est exprimé par l'élément de matrice radiale avec :

$$\langle n, l | \mu | n', l' \rangle = (-1)^l \sqrt{(2l+1)(2l'+1)} \begin{pmatrix} l & 1 & l' \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \langle n, l | er | n', l' \rangle \quad (2.19)$$

Enfin, l'élément de matrice radiale, correspond au recouvrement des fonctions d'ondes radiales et du moment dipolaire, pouvant être évalué numériquement [Zimmerman et al., 1979], s'écrit :

$$\langle nl | er | n'l' \rangle = \int r^2 R_{n,l}(r) er R_{n',l'}(r) dr \quad (2.20)$$

#### 2.1.4.1 Base de structure fine

Lorsque l'on prend en compte l'interaction spin-orbite  $V_{SO}$ ,  $l$  n'est plus un bon nombre quantique. La base propre de l'opérateur  $V_{SO}$  est associée au moment angulaire  $j = l + s$ . Cependant, l'opérateur dipolaire électrique n'agit que sur le moment orbital de l'électron  $l$ . Les éléments de matrice réduits dans la base couplée  $\langle nlj | \mu | n'l'j' \rangle$  s'expriment en fonction des éléments de matrice réduit dans la base non couplée  $\langle nl | \mu | n'l' \rangle$  par [Steck, 2008] :

$$\langle n, l, j | \mu | n', l', j' \rangle = (-1)^{j'+l+s+1} \sqrt{(2j+1)(2j'+1)} \begin{Bmatrix} l & l' & 1 \\ j' & j & s \end{Bmatrix} \langle nl | \mu | n'l' \rangle \quad (2.21)$$

#### 2.1.4.2 Forces de transition et durées de vie radiative

**Force d'oscillateur** L'excitation optique des atomes alcalins entre deux états non dégénérés  $|nlm\rangle$  (1) et  $|n'l'm'\rangle$  (2) peut être quantifié par le coefficient  $B(nlm, n'l'm')$  d'Einstein. Il est relié au moment dipolaire électrique de transition, par exemple, pour une polarisation du champ électrique selon  $x$ ,  $\mu_{12}^{(x)} = e \langle nlm | x | n'l'm' \rangle$  par :

$$B^{(x)}(nlm, n'l'm') = \frac{2\pi^2}{3\epsilon_0 h^2} \mu_{12}^{(x)2} \quad (2.22)$$

Dans la pratique, il est possible d'utiliser une grandeur sans dimension, la force d'oscillateur,  $f(nlm, n'l'm')$ . Pour une polarisation selon  $x$  du champ électrique, elle est donnée par [Hilborn, 1982] :

$$f^{(x)}(nlm, n'l'm') = \frac{4\epsilon_0 m h \nu}{e^2} B^{(x)}(nlm, n'l'm') \quad (2.23)$$

On peut alors exprimer la force d'oscillateur moyenne, prenant en compte les trois polarisations de l'espace cartésien. Après réduction de l'élément de matrice dipolaire électrique, la force d'oscillateur moyenne,  $\bar{f}(nl, n'l')$ , indépendante de  $m$ , s'exprime par [Gallagher, 1994] :

$$\bar{f}(nl, n'l') = \frac{4\pi}{3} \nu_{nl, n'l'} \frac{l_{max}}{2l' + 1} |\langle nl | r | n'l' \rangle|^2 \quad (2.24)$$

Cette expression dépend de l'intégrale radiale et de la fréquence de transition. La précision sur le calcul des forces d'oscillateur dépend donc de la précision du calcul de l'intégrale radiale, soit de la détermination des fonctions d'ondes à courtes distances. Pour l'excitation d'un état de Rydberg à partir d'un état plus fortement lié (ce qui est généralement le cas dans les expériences), la force d'oscillateur ne dépend plus que de l'élément de matrice radiale. Dans ce cas, l'élément de matrice radiale varie comme  $n^{*-\frac{3}{2}}$ . La force d'oscillateur et le coefficient  $B(nlm, n'l'm')$  d'Einstein pour l'excitation optique varient, eux, comme  $n^{*-3}$ .

**Durées de vie radiative** La désexcitation radiative d'un état  $|n'l'\rangle$  vers un état  $|nl\rangle$  par émission spontanée est donnée par le coefficient  $A(nl, n'l')$  d'Einstein, et est reliée à la force d'oscillateur moyenne par [Gallagher, 1994] :

$$A(nl, n'l') = -\frac{8\pi^2 e^2 \nu_{nl, n'l'}^2}{\hbar c^3} \bar{f}(nl, n'l') \quad (2.25)$$

La durée de vie radiative d'un état de Rydberg est donnée par toutes les contributions possibles de désexcitation vers les états inférieurs. On définit donc la durée de vie radiative,  $\tau_{n'l'}$ , de l'état  $|n'l'\rangle$  par :

$$\frac{1}{\tau_{n'l'}} = \sum_{nl} A(nl, n'l') \quad (2.26)$$

La désexcitation radiative par émission spontanée d'un état de Rydberg se fait principalement vers les états les plus liés. Pour des états de petits  $l$  (sauf pour  $l = 0$ ), la dépendance avec  $n$  de la durée de vie radiative est alors en  $n^{*3}$ . Pour les états circulaires,  $l = n - 1$ , la dépendance de la durée de vie radiative est en  $n^{*5}$  car la désexcitation par émission spontanée se fait uniquement entre des états de Rydberg adjacents.

La désexcitation radiative par émission spontanée n'est pas le seul processus à prendre en compte dans la détermination des durées de vie radiative des atomes de Rydberg. En effet, les expériences montrent que les durées de vie mesurées sont plus courtes que celles prévues par le calcul du seul processus d'émission spontanée [Gallagher and Cooke, 1979]. Il faut alors prendre en compte l'effet du rayonnement du corps noir afin de corriger les durées de vie radiatives :

$$\frac{1}{\tau_{nl}^{total}} = \frac{1}{\tau_{nl}} + \frac{1}{\tau_{nl}^{bbr}} \quad (2.27)$$

L'absorption du rayonnement du corps noir a pour effet de redistribuer les populations atomiques des états de Rydberg entre états voisins, en effet, les recouvrements des fonctions d'ondes sont importants et les éléments de matrice dipolaire électrique de transition sont grands. Le taux d'émission stimulé des populations atomiques par les photons thermiques, à la température  $T$  (en degré Kelvin), est donné par le produit du coefficient  $A_{nl}$  d'Einstein par le nombre moyen de photons à la fréquence  $\nu$ , donné par la loi de Planck [Planck, 1901]. La distribution de la densité d'énergie est maximale pour une certaine fréquence et décroît avec  $n^*$  comme [Gallagher, 1994] :



$$\frac{1}{\tau_{nl}^{bbr}} \approx \frac{4\alpha^3 k_B T}{3n^{*2}} \quad (2.28)$$

où  $\alpha$  est la constante de structure fine.

Nous donnons dans le tableau 2.2 les durées de vie typique d'états de Rydberg du sodium extrait de [Beterov et al., 2009].

TABLE 2.2 – Durée de vie typique d'états de Rydberg de Na (en  $\mu\text{s}$ ).

$n$	20			30			50			80		
$l$	$s$	$p$	$d$	$s$	$p$	$d$	$s$	$p$	$d$	$s$	$p$	$d$
$\tau$	8.9	81	7.5	32.4	292	25.4	159	1474	115	671	6567	470
$\tau^{bbr}$	23	28	37	48	59	69	130	154	175	331	386	412
$\tau^{total}$	6.4	21	6.3	19.3	48.7	18.6	72	140	70	222	364	220

## 2.1.5 Effet Stark pour les atomes alcalins

Les atomes de Rydberg ont des propriétés exacerbées par leur fort couplage à leur environnement. En particulier, et d'intérêt pour la suite de ce manuscrit, nous introduisons l'interaction entre un atome de Rydberg et un champ électrique statique. En effet, un champ électrique statique couple les états atomiques et lève la dégénérescence des niveaux. Ce couplage est appelé effet Stark. L'effet Stark sur les états de Rydberg des atomes alcalins a été étudié en détail théoriquement, numériquement et expérimentalement dans l'article de référence [Zimmerman et al., 1979].

### 2.1.5.1 Hamiltonien Stark

D'une manière générale, le hamiltonien d'un atome plongé dans un champ électrique statique  $\vec{F}$ , dirigé selon l'axe du laboratoire ( $Oz$ ), s'écrit, en prenant compte du couplage spin-orbite (en u.a.) :

$$H = -\frac{1}{2}\nabla^2 + V_{\text{pot}} + H_{\text{SO}} + Fz \quad (2.29)$$

Le terme d'interaction spin-orbite est supposé indépendant du champ électrique, d'après [Zimmerman et al., 1979], cette approximation est correcte dans le cadre de l'effet Stark sur les états de Rydberg des atomes alcalins.

### 2.1.5.2 Cas de l'hydrogène

Dans le cas de l'hydrogène, le potentiel  $V_{\text{pot}}$  est purement coulombien. L'interaction avec un champ électrique statique est résolu analytiquement par la théorie des perturbations en utilisant le système des coordonnées paraboliques, imposé par la symétrie du problème. Le nombre quantique  $l$  n'étant plus un bon nombre quantique dans ce système de coordonnées, les états sont représentés par les nombres quantiques  $(n, n_1, n_2, m)$  qui sont reliés entre eux par la relation :  $n = n_1 + n_2 + |m| + 1$  (avec  $n_1$  et  $n_2$  entiers positifs).

Jusqu'au deuxième ordre de la théorie des perturbations, les énergies propres sont données par la relation [Gallagher, 1994] :

$$E = -\frac{1}{2n^2} + \frac{3}{2}n(n_1 - n_2)F + \frac{n^4}{16} [17n^2 - 3(n_1 - n_2)^2 - 9m^2 + 19] F^2 \quad (2.30)$$

Au premier ordre, la variation des énergies est linéaire avec le champ électrique. Au second ordre, la dégénérescence n'est levée qu'en fonction de  $|m|$ , ce qui est attendu pour un problème à symétrie cylindrique, et expliqué par le vecteur champ électrique qui est un vecteur polaire. Pour un état  $n$  donné en champ nul, il apparaît une multiplicité de  $\frac{n(n+1)}{2}$  états repérés par le nombre  $n_1 - n_2$ , comme représenté sur la figure 2.3.

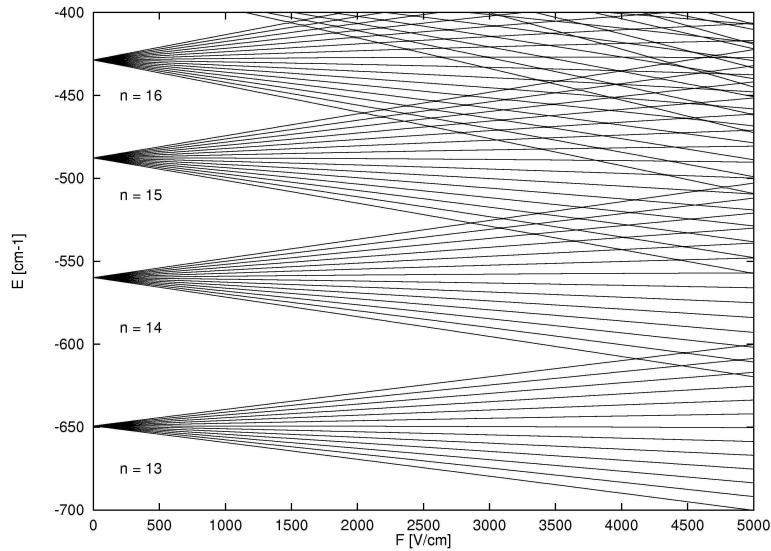


FIGURE 2.3 – Diagramme Stark de l'atome d'hydrogène de  $n = 13$  à  $n = 16$  pour  $|m| = 0$  en fonction du champ électrique statique  $F$ . Les états des différentes multiplicités se croisent et l'effet Stark est majoritairement linéaire.

Les états de  $n_1 - n_2 < 0$  diminuent leur énergie avec le champ électrique et sont appelés états rouges. Les états de  $n_1 - n_2 > 0$  augmentent leur énergie avec le champ électrique et sont appelés états bleus. Pour l'hydrogène, ce qui n'est pas le cas pour les atomes alcalins autre que l'hydrogène, les états de multiplicités différentes se croisent, il n'y a pas de couplage entre eux, du à la symétrie sphérique du potentiel coulombien. Le champ électrique pour lequel l'état bleu de la multiplicité  $n$  croise l'état rouge de la multiplicité  $n + 1$  est le champ d'Inglis-Teller, et vaut :  $F_{IT} = \frac{1}{3n^5}$ .

### 2.1.5.3 Cas du sodium

Comme nous l'avons vu dans la partie 2.1.3, le potentiel d'interaction entre l'électron de valence et le coeur atomique,  $V_{\text{pot}}$ , intervenant dans le hamiltonien 2.29 n'est pas purement coulombien. Le problème de l'effet Stark sur les atomes alcalins n'est pas résolu analytiquement. La méthode générale consiste à calculer numériquement les éléments de

matrice de le hamiltonien 2.29, puis à diagonaliser le hamiltonien. Les éléments de matrice de la partie de couplage avec le champ électrique statique s'écrivent, dans la base sphérique  $\langle n, l, j, m_j | Fr \cos(\theta) | n', l', j', m'_j \rangle$ . En utilisant la réduction des éléments de matrice dipolaire présentée dans la partie 2.1.4, les éléments de matrice sont séparables en une partie angulaire et une partie radiale. La partie angulaire s'exprime analytiquement par les harmoniques sphériques donnant les règles de sélection :  $\Delta l = \pm 1$  et  $\Delta m_j = 0$ . La partie radiale est calculée numériquement par résolution de l'équation de Schrödinger radiale dans le cadre de la théorie du défaut quantique (méthode de Numerov [Zimmerman et al., 1979, Gallagher, 1994]).

Cette méthode de calcul est utilisée par un programme Fortran77 (développé au laboratoire par J.M Lecomte, A. Bleton et L. Pruvost), permettant de calculer les niveaux d'énergie en champ électrique, ainsi que les moments dipolaires de transition entre états électroniques pour les atomes alcalins dans le cadre de la théorie du défaut quantique. Les niveaux d'énergie de Rydberg du sodium en fonction du champ électrique  $F$  sont représentés sur la figure 2.4. Sur cette figure, sont représentées les multiplicités  $n = 46, 47$  et  $48$ . Dus aux valeurs significatives des défauts quantiques des états  $ns$  et  $np$  (voir la table 2.1), ils sont séparés de leur multiplicité et les états  $ns$  s'intercalent entre les multiplicités  $n - 1$  et  $n - 2$ . Les valeurs des défauts quantiques pour les états  $nd, nf$  et  $ng$  étant proches de zéro, ces états sont très peu éloignés de leur multiplicité en champ nul. Pour les états non dégénérés en champ nul,  $ns, np$  et  $nd$ , l'effet Stark, pour des champs électriques relativement faibles, est donc quadratique, et devient linéaire pour des champs électriques plus intenses par couplage avec les états de la multiplicité. Les états  $nd$  se couplent rapidement aux états rouges de la multiplicité  $n$ , les états  $ns$  se couplent aux états rouges de la multiplicité  $n - 1$  et les états  $np$  se couplent aux états bleus de la multiplicité  $n - 1$ . Comme pour l'hydrogène, pour les états de la multiplicité et les états quasi-dégénérés en champ nul, l'effet Stark est principalement linéaire. Au champ d'Inglis-Teller, défini comme pour l'hydrogène, les états des multiplicités se repoussent et il apparait des séries de croisement évités. Ceci est du à la brisure de symétrie par le coeur ionique (les nombres quantiques  $n_1$  et  $n_2$  ne sont plus bons).

#### 2.1.5.4 Polarisabilité statique

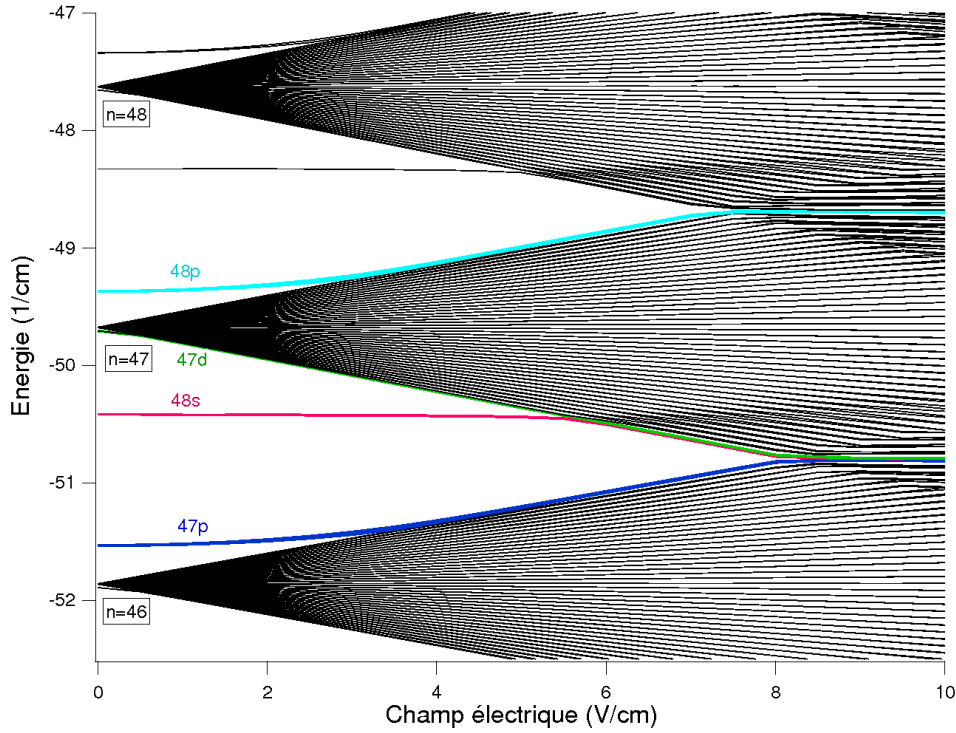
Pour les états non dégénérés en champ électrique nul, en appliquant la théorie des perturbations jusqu'au second ordre, soit pour des champs électriques statiques faibles, le décalage en énergie est principalement quadratique avec le champ électrique. Il s'écrit :

$$\Delta E^{(2)} = \frac{1}{2} \alpha F^2 \quad (2.31)$$

où  $\alpha$  est la polarisabilité statique. Pour un état  $|nljm_j\rangle$ , la polarisabilité statique est donc définie par :

$$\alpha = \sum_{n', l', j' \neq n, l, j} \frac{|\langle nljm_j | \hat{\mu} | n' l' j' m_j \rangle|^2}{E_{n' l' j'} - E_{nlj}} \quad (2.32)$$

Le moment dipolaire électrique de transition  $\hat{\mu}$  varie comme  $n^{*2}$ . L'écart en énergie des états de Rydberg  $E_{n' l' j'} - E_{nlj}$  varie comme  $n^{*-3}$ . Alors, la polarisabilité  $\alpha$  varie avec le


 FIGURE 2.4 – Diagramme Stark du sodium pour  $|m_j| = \frac{1}{2}$ 

nombre quantique principal effectif comme :  $\alpha \propto n^{*7}$ . Les états de Rydberg sont donc très sensibles au champ électrique, ce qui en fait des systèmes privilégiés pour l'étude de l'interaction des états atomiques avec un champ électrique statique, en particulier, les états de Rydberg atomiques peuvent être utilisés comme sonde pour de petits champs électriques de l'ordre de quelques V/cm (précision de  $\approx 20 \mu\text{V}/\text{cm}$ ) [Osterwalder and Merkt, 1999].

### 2.1.6 Détection par ionisation classique par champ électrique

Les états de Rydberg sont des états électroniques faiblement liés. Dans le cas des atomes alcalins, l'application d'un relativement petit champ électrique suffit à extraire l'électron de valence, et ainsi à ioniser l'atome de Rydberg. Bien que cette méthode soit destructive, elle possède l'avantage d'être (semi-)sélective avec l'état interne de l'atome de Rydberg, c'est à dire en fonction de l'énergie de liaison.

Considérons l'atome d'hydrogène soumis à un champ électrique statique  $\vec{F}$  dirigé selon (Oz). L'énergie potentielle de l'électron s'écrit :

$$V_{pot}(r, z) = -\frac{1}{r} + Fz \quad (2.33)$$

Comme le montre la figure 2.5, l'application d'un champ électrique statique externe a pour effet d'abaisser la barrière de potentielle.  $V_{pot}$  présente alors un maximum le long de l'axe (Oz) à  $V_{max}(F) = -2\sqrt{F}$ . L'électron est donc éjecté lorsque son énergie de liaison est strictement supérieure à  $V_{max}(F)$ . Nous pouvons alors définir le seuil de champ électrique d'ionisation classique  $F_c$  pour un état quantique donné :

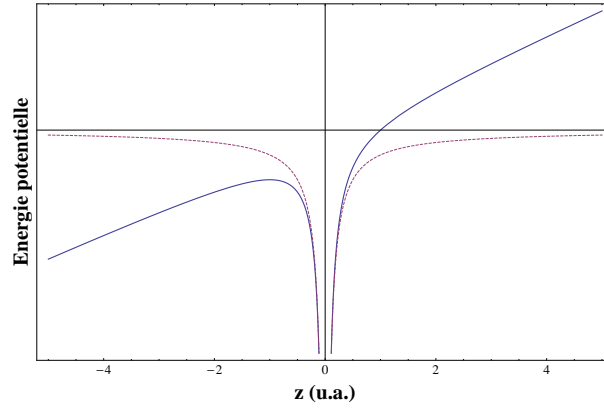


FIGURE 2.5 – Représentation de l'énergie potentielle de l'électron interagissant avec le champ coulombien créé par le noyau atomique (en pointillés) auquel se superpose un champ électrique statique externe dirigé selon (Oz) (en trait plein).

$$F_c = \frac{1}{16n^4} \quad (2.34)$$

Cette détermination classique ne prend donc pas en compte la variation des niveaux d'énergie par effet Stark, ni de la façon dont est appliqué le champ électrique statique externe. Si l'on prend en compte l'effet Stark linéaire de l'état le plus rouge d'une multiplicité, alors le seuil de champ électrique pour l'ionisation vaut  $F = \frac{1}{9n^4}$ . Pour les états bleus, il n'y a pas d'expression simple permettant d'estimer le seuil d'ionisation en champ électrique. Le seuil d'ionisation de ces états est en général environ deux fois plus grand que pour les états rouges (pour un même  $n$ ). Notamment, pour les atomes alcalins autres que l'atome d'hydrogène, il existe un processus d'ionisation rapide, comparable à l'autoionisation. En effet, en champ électrique, le nombre quantique parabolique  $n_1$  n'est plus bon, les états bleus sont couplés, au niveaux du coeur ionique, aux états rouges, qui peuvent être libres. Ainsi les états bleus sont ionisés par couplage avec le continuum des états rouges [Gallagher, 1994].

Comme nous l'avons vu dans la partie 2.1.5.3, les états de Rydberg des atomes alcalins en champ électrique présentent des croisements évités dus au couplage entre ces états. La manière dont est appliqué le champ électrique statique, et particulièrement son temps de montée, va donc déterminer si les états électroniques en champ électrique seront suivis plutôt diabatiquement ou plutôt adiabatiquement. En suivant un modèle Landau-Zener de passage adiabatique au travers un croisement évité (que nous étudierons plus en détail dans le chapitre 3 dans le cadre des états électroniques de paire d'atomes de Rydberg), si  $\frac{dE}{dt} < \Delta E^2$ , alors le passage à travers le croisement évité sera plutôt adiabatique, sinon le passage sera plutôt diabatique. Dans nos expériences, des temps de montée de l'ordre de la  $\mu\text{s}$  permettent des passages adiabatiques à travers la série de croisements évités.

### 2.1.7 Loi d'échelle de quelques propriétés des atomes de Rydberg et conclusion

Le tableau 2.3 résume quelques propriétés des états de Rydberg atomique pour des états de petit  $l$ . Une des propriétés remarquable des états de Rydberg est leur très grand

TABLE 2.3 – Loi d'échelle des propriétés des états de Rydberg [Gallagher, 1994].

Propriétés	
Energie de liaison	$n^{*-2}$
Rayon orbital	$n^{*2}$
Différence d'énergie entre 2 niveaux adjacents	$n^{*-3}$
Moment dipolaire électrique	$n^{*2}$

rayon orbital, soit des moments dipolaires électriques importants. Les sections efficaces de collisions sont alors très grandes, faisant des états de Rydberg des systèmes privilégiés pour l'étude des interactions à longues distances [Safinya et al., 1981, Gallagher et al., 1982]. De plus, ils possèdent des temps de vie relativement long, et sont donc de très bons candidats pour de futures applications en information quantique [Saffman et al., 2010, Brion et al., 2007].

Dans cette partie, nous avons donc rappelé les principales considérations théoriques des atomes de Rydberg alcalins. Nous allons maintenant, dans la seconde partie de ce chapitre, décrire le dispositif expérimental permettant d'obtenir un échantillon froid d'atomes de Rydberg de sodium.

## 2.2 Production d'un jet supersonique d'atomes de sodium froid dans un état de Rydberg

### 2.2.1 Introduction

La partie suivante décrit le montage expérimental utilisé pour la production d'un jet supersonique pulsé d'atomes de sodium dans leur état fondamental et de leur excitation vers un état de Rydberg. Le montage expérimental comporte la source atomique : le jet supersonique, il est constitué de deux enceintes. La première enceinte est destinée à l'expansion supersonique du gaz atomique en présence d'un gaz porteur. L'autre est consacrée à l'expérience et contient la zone de détection. L'excitation laser des atomes de sodium dans leur état fondamental est obtenue à l'aide de deux lasers accordables en fréquence qui seront décrits dans cette partie. Il s'agit alors de réaliser une impulsion de jet supersonique, constituant un gaz froid et rapide en translation, contenant des atomes de sodium dans leur état fondamental, obtenus par un processus d'ablation laser, et qui seront excités dans un état de Rydberg. La détection est basée sur la technique d'ionisation sélective par champ électrique pulsé des atomes de Rydberg. Différentes études seront menées avec les états de Rydberg atomiques du sodium : la mise en évidence de transitions Landau-Zener autour d'une résonance de Förster détaillée au chapitre 3 ; la mesure précise de la densité du nuage d'atomes de Rydberg basée sur le transfert adiabatique entre des états de paire, que nous détaillerons au chapitre 4 ; enfin ce même dispositif expérimental sera utilisé pour la mesure de la fluctuation quantique lors d'oscillations de Rabi à deux photons, détaillée au chapitre 5.

Dans cette partie, nous introduirons les principes de l'expansion supersonique et de l'ablation laser, ainsi que les améliorations apportées au dispositif expérimental. Puis nous décrirons le montage expérimental et les caractéristiques du jet supersonique d'atomes de sodium (mesure des températures et influence des paramètres expérimentaux accessibles). Enfin nous détaillerons le schéma d'excitation laser des atomes de sodium de l'état fondamental vers un état de Rydberg.

### 2.2.2 Principe de l'expansion supersonique

L'expansion supersonique est une technique de refroidissement souvent utilisée dans différents domaines de la physique, de la chimie-physique, ou de la chimie. Elle permet l'obtention d'échantillons d'atomes froids et de molécules froides pour leurs degrés de libertés externes et internes (de rotation et de vibration dans les états électroniques fondamentaux ou excités [Miller, 1984]). Ces systèmes ont permis la spectroscopie laser de haute précision de ces espèces, l'étude des différents chemins de réactions en jets croisés [Balucani et al., 2005], ou plus généralement des interactions entre des espèces neutres dans leurs états fondamentaux [Koperski, 2003].

La littérature concernant l'expansion supersonique est riche. La théorie des jets supersoniques d'un gaz pur monoatomique a été introduite par [Kantrowitz and Grey, 1951], puis développée principalement par [Toennis and Winkelmann, 1977], et par [Beijerinck and Verster, 1981], étendue notamment dans le cas d'un mélange de deux gaz purs monoatomiques. La théorie permet d'évaluer, par résolution numérique, la température longitudinale finale d'un jet supersonique en traitant, par différents modèles, les collisions

entres les espèces présentes qui sont responsables du refroidissement longitudinal. Dans cette partie, nous ne décrirons pas les différents modèles utilisés pour prendre en compte les collisions lors de l'expansion supersonique, nous rappellerons seulement les équations de bases de l'écoulement hydrodynamique lors de la formation d'un jet supersonique.

### 2.2.2.1 Généralités

Pour réaliser l'expansion supersonique d'un gaz, on considère un réservoir de gaz sous haute-pression  $p_0$ , à la température  $T_0$ , l'enceinte est pourvue d'un orifice de diamètre  $D$  par lequel les espèces gazeuses peuvent s'échapper du réservoir dans un environnement vide de pression  $p_1$ , comme représenté sur la figure 2.6. Si  $D$  est bien inférieur au libre parcours moyen du gaz, les espèces s'échappent sans entrer en collision les unes avec les autres, alors la distribution en sortie correspond alors à la distribution de Maxwell-Boltzmann des vitesses à l'intérieur du réservoir, et le jet est dit effusif. Si, au contraire,  $D$  est beaucoup plus grand que le libre parcours moyen du gaz, les espèces entrent en collisions lorsqu'elles s'échappent du réservoir et ressentent une force moyenne qui les pousse vers l'extérieur de l'orifice. Le gaz s'expand alors librement dans le vide, ce qui permet un abaissement de l'énergie interne du gaz. En effet, une partie de l'énergie thermique de la source est transférée dans l'expansion par collisions qui convertissent une partie de l'enthalpie interne en énergie cinétique du jet. Lorsque la vitesse moyenne du jet varie jusqu'à atteindre une vitesse égale à la vitesse du son dans le milieu, on parle de régime supersonique.

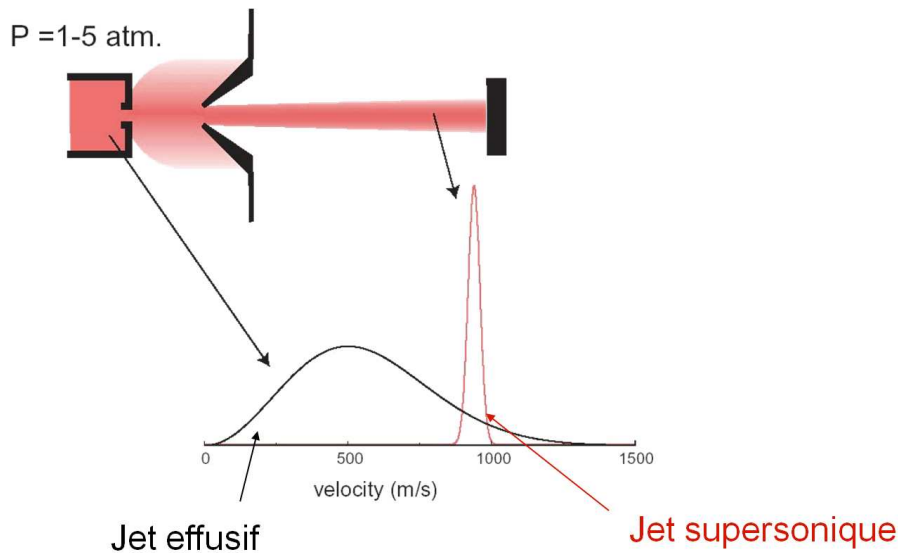


FIGURE 2.6 – Expansion adiabatique dans le vide d'un gaz sous pression au travers un orifice de diamètre  $D$ . La distribution des vitesses du jet supersonique est très étroite et possède une valeur moyenne très élevée dans le référentiel du laboratoire.

Dans le régime supersonique, en sortie du réservoir, la densité du gaz est encore importante et les collisions assurent un équilibre continu permettant de décrire complètement l'état du gaz en équilibre thermodynamique. On considère les paramètres  $n$ ,  $p$ , et  $T$  comme étant respectivement la densité locale de particule, la pression et la température d'un gaz



parfait compressible. Un processus isentropique est un processus adiabatique sans échange de chaleur avec l'extérieur, et le gaz compressible s'expand au travers un orifice dont la surface croit légèrement avec l'axe du jet  $z$ . La conservation de l'énergie totale s'écrit :

$$E_{c0} + U_0 + p_0V_0 = E_{c1} + U_1 \quad (2.35)$$

où  $E_c$  est l'énergie cinétique du gaz que l'on peut décomposer en deux termes : l'énergie cinétique du centre de masse et l'énergie cinétique des particules dans le centre de masse.  $U$  est l'énergie interne des particules et  $pV$  leur énergie potentielle. L'indice 0 réfère aux grandeurs thermodynamiques dans le réservoir, et l'indice 1 réfère aux grandeurs dans le jet. On a considéré de plus que la pression dans le jet est beaucoup plus petite que la pression dans le réservoir.

On peut réécrire la loi de conservation de l'énergie en fonction de l'enthalpie du gaz  $H = U + pV$  :

$$H_0 = H_1 + \frac{1}{2}m\bar{v}_1^2 \quad (2.36)$$

Dans l'absolu, toute l'énergie disponible est convertie en vitesse moyenne de translation, avec une température de translation nulle dans le repère du centre de masse du gaz. Ceci est impossible en réalité car les espèces du jet peuvent rentrer en collision et ainsi réchauffer le gaz.

En ajoutant l'équation de continuité du milieu et la conservation de l'impulsion, il est possible de connaître les paramètres de cet écoulement tout le long de son axe en fonction du nombre de Mach. Le nombre de Mach est, en un point donné, défini comme le rapport de la vitesse moyenne du jet, en ce point, sur la vitesse du son dans le milieu :

$$M_{\text{eff}} = \frac{v_{\text{eff}}}{v_{\text{son}}} \quad (2.37)$$

avec :

$$v_{\text{son}} = \sqrt{\gamma \frac{p}{n}} \quad (2.38)$$

où  $\gamma$  est le rapport des capacités massiques à pression constante  $C_p$ , et à volume constant  $C_v$  :  $\gamma = \frac{C_p}{C_v}$ .

### 2.2.2.2 Caractéristiques

Soit une position dans le jet  $z_{\text{eff}}$  après la vanne, par une analyse de la partie continue de l'écoulement, Ashkenas et Sherman, ont déduit que le nombre de Mach augmente avec la distance  $z_{\text{eff}}$ , suivant la loi [Ashkenas and Sherman, 1966] :

$$M_{\text{eff}} = 3.26 \left( \frac{z_{\text{eff}}}{D} \right)^{0.67} \quad (2.39)$$

Il est possible d'écrire la température longitudinale  $T_{\text{eff}}$  et la densité effective  $n_{\text{eff}}$  en fonction de  $M_{\text{eff}}$  :

$$\frac{T_{\text{eff}}}{T_0} = \left[ 1 + \frac{1}{2}(\gamma - 1)M_{\text{eff}}^2 \right]^{-1} \quad (2.40)$$

$$\frac{n_{\text{eff}}}{n_0} = \left[ 1 + \frac{1}{2}(\gamma - 1)M_{\text{eff}}^2 \right]^{\frac{-1}{\gamma-1}} \quad (2.41)$$

Pour un gaz monoatomique ( $\gamma = \frac{5}{3}$ ), la densité diminue avec la distance  $z$  au réservoir comme  $z^{-2}$ . Il est possible de définir une distance  $z_m$  correspondant à une distance moyenne où se produit la dernière collision, où la distribution en vitesse se fige. Après  $z_m$ , le jet entre dans le régime moléculaire : régime sans collisions. C'est à partir de là que l'on sélectionne la partie axiale du jet avec un écorceur (skimmer en anglais). Les propriétés du jet après l'écorceur dépendent de l'écoulement en régime hydrodynamique entre la sortie du réservoir et  $z_m$ . Après  $z_m$ , on peut estimer la vitesse moyenne finale du jet et la température finale dans la limite où le nombre de Mach est infini (dans la limite où toute l'enthalpie a été convertie en énergie cinétique). Pour un gaz monoatomique :

$$v_\infty = \sqrt{\frac{5kT_0}{m}} \quad (2.42)$$

$$T_\infty = \frac{3T_0}{M_\infty^2} \quad (2.43)$$

La description précédente concerne la partie centrale du jet. Le jet global est caractérisé par la formation d'un système d'ondes de choc permanent (figure 2.7) comportant une onde de choc latérale et particulièrement une onde frontale appelée disque de Mach dont la distance  $z_{\max}$  à la vanne est donnée par [Ashkenas and Sherman, 1966] :

$$z_{\max} = 0.67D\sqrt{\frac{p_0}{p_1}} \quad (2.44)$$

Au niveau de ces ondes de choc, la densité des particules est beaucoup plus grande que la densité du jet, les particules entrent alors en collision avec les particules environnantes. En aval du disque de Mach, le régime devient subsonique.

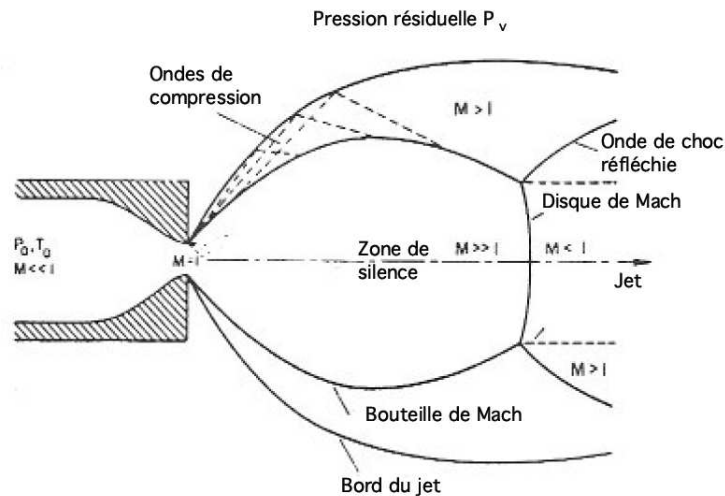


FIGURE 2.7 – Structure d'un jet supersonique [Scoles, 1988].

### 2.2.2.3 Distribution en vitesse des atomes dans un jet supersonique :

Un jet supersonique est donc un gaz froid possédant une vitesse importante dans le référentiel du laboratoire. La température de ce gaz froid le long de l'axe du jet caractérise la distribution des vitesses suivant son axe. Nous allons rappeler les équations décrivant la distribution des vitesses parallèles dans le cas d'un jet supersonique monoatomique. Dans le cadre de nos expériences, les atomes de sodium sontensemencés et thermalisés à la température du gaz porteur. Les équations suivantes décrivent la distributions des vitesses longitudinales du gaz porteur, on peut alors supposer que la température de l'espèceensemencée soit égale ou supérieure à celle des atomes du gaz porteur. En effet, le traitement d'une espèce lourde ensemencé dans un gaz porteur léger montre que les températures longitudinales finales obtenues sont différentes pour les deux espèces (citons par exemple les travaux [Anderson, 1967, Raghuraman and Anderson, 1977]). Notamment, la température longitudinale finale des espèces ensemencées est toujours plus grande que celle du gaz porteur.

Dans le régime moléculaire, lorsque les grandeurs thermodynamiques sont gelées, la température parallèle est donnée par :

$$\frac{1}{2}k_B T_{//} = \frac{1}{2}m\delta v_{//}^2 \quad (2.45)$$

La densité de probabilité de la distribution des vitesses longitudinales est donnée par [Haberland et al., 1985] :

$$P(v) \propto v^2 e^{-\left(\frac{v-v_{//\infty}}{v_{//\infty}}\right)^2 S_{//\infty}^2} \quad (2.46)$$

où  $S_{//\infty}$  est le rapport de la vitesse longitudinale finale sur la dispersion finale des vitesses longitudinales, et  $v_{//\infty}$  la vitesse moyenne dans le référentiel du laboratoire.

Dans la théorie de la dynamique des fluides, le paramètre  $S$  caractérise la distribution des vitesses du jet supersonique. Des modèles théoriques (sphères dures, potentiel interatomique ou inter-moléculaire) permettent de calculer ce paramètre. Il est exprimé dans la littérature [Toennis and Winkelmann, 1977] sous la forme :

$$S_{//\infty} = A [n_0 D (C_6 / k_B T_0)^{1/3}]^\delta \quad (2.47)$$

où  $C_6$  est le coefficient de Van der Waals et  $A$  et  $\delta$  deux paramètres de simulation dépendant du modèle utilisé. Expérimentalement, le rapport des vitesses  $S_{//\infty}$ , dépend des conditions expérimentales de l'expansion supersonique et peuvent varier de plusieurs centaines [Campargue, 1984] à mille [Wang et al., 2007].

Dans cette partie, nous avons donc décrit les principes de base de l'expansion supersonique en régime continu (ou stationnaire). Nous utilisons, dans notre expérience, un jet supersonique pulsé dont les pulses de gaz sont suffisamment long pour être décrit par les équations de l'expansion supersonique en régime stationnaire. Ceci étant bien vérifié dans la partie centrale du pulse de gaz.

### 2.2.3 Ablation laser d'une cible solide de sodium

Après avoir brièvement introduit les principes généraux de formation d'un jet supersonique, nous allons aborder sa réalisation, il s'agit de réaliser un jet supersonique pulsé de

gaz rareensemencé par l'atome alcalin de sodium. La production des atomes de sodium est réalisée par ablation laser. Dans cette partie nous décrivons en détail le dispositif expérimental qui s'est avéré être un élément clé pour la réussite des expériences, en particulier pour l'obtention de conditions expérimentales stables pour la prise de données. Après une brève introduction de quelques généralités du processus d'ablation laser, nous décrivons les améliorations apportées au dispositif expérimental. Au début de cette thèse, le jet supersonique d'atomes de sodium avait déjà fonctionné, et les améliorations ont permis l'obtention d'un signal d'atomes de sodium plus intense et relativement stable.

### 2.2.3.1 Généralités

L'ablation laser est une technique consistant à extraire une certaine quantité de matière d'une cible solide lors du couplage avec un laser. Cette technique est utilisée comme méthode pour réaliser des dépôts en couches minces sur un substrat [Chrissey and Hubler, 1994] (films superconducteurs [Dijkkamp et al., 1987], nano-cristaux, nano-tubes [Guo et al., 1995]). L'ablation laser est aussi utilisée pour caractériser des matériaux [Winefordner et al., 2004], ou encore pour la micro-structuration (guides d'onde, microstructuration en 3D [Heyl et al., 2001]). Elle fait partie d'un domaine de recherche fondamentale actif possédant de nombreuses applications. Les mécanismes fondamentaux – interactions laser-solide-gaz et formation de plasmas – sont bien connus mais restent complexes à modéliser. Dans le domaine de la physique des jets moléculaires et atomiques, elle est utilisée pour l'obtention d'espèces synthétisées (réaction entre l'espèce ablatée et le gaz porteur), ou encore pour la formation d'agrégats qui sont formés par condensation de la matière évaporée et peuvent croître très rapidement. Le contrôle des caractéristiques de l'ablation permet de contrôler la distribution de la taille des agrégats. C'est le groupe du Dr. Smalley, à l'université de Rice en 1981, qui employa la première fois l'ablation laser pour la formation d'agrégats dans un jet supersonique [Dietz et al., 1981].

Les résultats obtenus lors d'une ablation laser dépendent en grande partie de la durée de l'impulsion laser [Chichkov et al., 1996]. En effet, lors de l'interaction laser avec une cible solide métallique, l'énergie laser est d'abord absorbée par les électrons de conduction. Ensuite, cette énergie est transférée aux électrons liés, à la structure cristalline, ou encore perdue par des phénomènes de transports. Ces phénomènes n'ont pas tous les mêmes constantes de temps. Pour des durées d'impulsion de l'ordre de la femtoseconde, l'ablation laser est considérée comme une transition directe solide-vapeur ou solide-plasma, dans ce cas, la structure cristalline n'est chauffée que sur des échelles de temps de la picoseconde qui a pour effet la création de vapeur et d'un plasma qui s'expand rapidement. Alors que pour des durées d'impulsion de l'ordre de la picoseconde, des phénomènes de conduction de chaleur apparaissent accompagnés de formation de zone de phase liquide à l'intérieur du matériau. Enfin, pour des durées d'impulsion laser longues (nanoseconde), il y a assez de temps pour que l'énergie absorbée chauffe le matériau jusqu'à la température de fusion puis jusqu'à la température de vaporisation. Dans ce cas, on parle de processus thermique (équation de diffusion de la chaleur), ce qui est généralement le cas pour des lasers dans le domaine spectral du visible à l'infrarouge. Pour une durée d'impulsion laser  $\tau = 10$  ns focalisé sur la surface d'une taille de  $r = 0.1$  à  $1$  mm, la longueur de diffusion thermique est donnée par :  $\delta_{th} = \sqrt{\chi\tau}$ , où  $\chi$  est la diffusivité thermique. Dans le cas du sodium,  $\chi = 1.41 \cdot 10^4$  J/cm<sup>3</sup>/K, et  $\delta_{th} = 10^{-2}$  cm. Le sodium est un relativement mauvais conducteur

thermique, pour ces durées d'impulsion laser, l'énergie absorbée ne se dissipe pas dans le matériau et reste concentrée dans un petit volume, l'ablation laser s'en trouve alors facilitée.

### 2.2.3.2 Mise en oeuvre expérimentale

**Barreau de sodium pour l'ablation laser** Dans la pratique, nous partons de sodium solide pur. Puis nous façonnons un barreau en forme de cylindre creux, sous atmosphère de gaz rare, pour le monter sur une tige, représentée en rose sur la figure 2.8. Ce cylindre de sodium fait environ 2 cm de long. Un façonnage fin à la main à l'aide d'un scalpel est indispensable afin d'obtenir un cylindre régulier en translation et en rotation. Le diamètre extérieur du cylindre doit s'adapter à son logement dans la chambre d'ablation. Nous avons pu constater que plus le diamètre extérieur est important, plus la quantité de sodium ablatée est importante, ce qui nous a amené à agrandir le diamètre du logement du barreau de sodium, qui subit un mouvement hélicoïdal autour de l'axe vertical de la chambre d'ablation.

Concernant la stabilité du mouvement hélicoïdal, nous avons pu observer qu'en bout de chaîne, moteur – cardan – tige filetée, la tige solidaire du barreau de sodium précessait autour de l'axe de rotation, ce qui avait des répercussions sur la stabilité du signal d'atomes de sodium observé dans les expériences. Pour éviter cette précession, nous avons ajouté un fourreau de guidage, représenté en bleu sur la figure 2.8, servant à contraindre le bout de la tige solidaire du barreau de sodium autour de l'axe de rotation.

Enfin, la translation de la tige filetée est contrôlée par un dispositif d'électronique analogique grâce à des micro-interrupteurs fixés sur le trajet d'un disque se situant au bout du cardan. Le disque, représenté en vert sur la figure 2.8 est une pièce reliant le cardan à la tige filetée. Le disque est aussi soumis à un mouvement de précession, et peut toucher deux fois le même interrupteur (haut ou bas). La logique implémentée est représentée sur la figure 2.9.

**Laser d'ablation pour l'ensemencement d'un gaz porteur** Le laser d'ablation est un laser pulsé Nd :YAG doublé en fréquence délivrant une puissance de 2 mJ/pulse à 1064 nm et 1 mJ/pulse à 532 nm, de marque *Ekspla*, de modèle NL-208. La durée des pulses laser est de 9 ns. Le faisceau laser est focalisé sur le barreau de sodium par une lentille convergente de focale 30 cm située à l'extérieur de l'enceinte. Nous utilisons l'émission à 532 nm pour ablater le sodium. La synchronisation du moteur pas à pas sur le pulse du laser d'ablation à un taux de répétition de 10 Hz (pouvant atteindre 1 kHz) n'a aucun effet, car aux temps caractéristiques où se produisent les mécanismes de l'ablation, le barreau peut être considéré comme fixe. Le tir du laser est de plus synchronisé sur l'arrivée du pulse de gaz porteur.

En conclusion de cette partie, nous représentons sur la figure 2.10, sous forme d'histogramme de la quantité de signal mesurée à chaque expérience, les distributions typiques du jet d'atomes de sodium produit par l'ablation laser. La distribution en noir représente une distribution typique du signal d'atomes de sodium sans les améliorations que j'ai

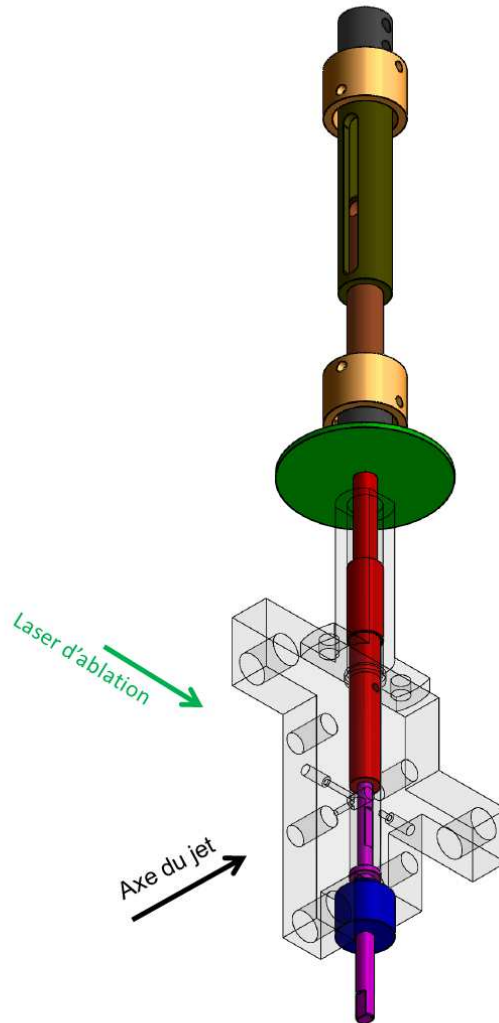


FIGURE 2.8 – Système mécanique permettant la rotation du barreau de sodium autour de l'axe de la chambre d'ablation. La chambre d'ablation se trouve au centre de la pièce représentée en gris en transparence. De haut en bas : le cardan (relié au moteur non représenté sur la figure), le disque (en vert), la tige filetée (en rouge), le porte barreau (en rose), enfin le fourreau, solidaire de la chambre d'ablation, servant à contraindre la rotation autour de l'axe (en bleu).

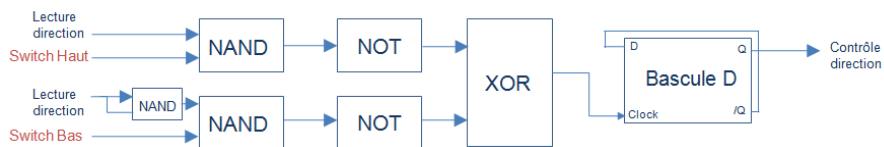


FIGURE 2.9 – Logique de contrôle de la direction du moteur pas à pas en fonction du déclenchement des micro-interrupteurs haut et bas.

décrites dans cette partie. Les distributions en rose (faible puissance du laser d'excitation) et violet représente les distributions de signal obtenues après améliorations (taille du barreau, stabilité de rotation) pour un barreau de sodium récent. Au fur et à mesure de l'utilisation du barreau, les distributions en rose et violet tendent vers la distribution en noir.

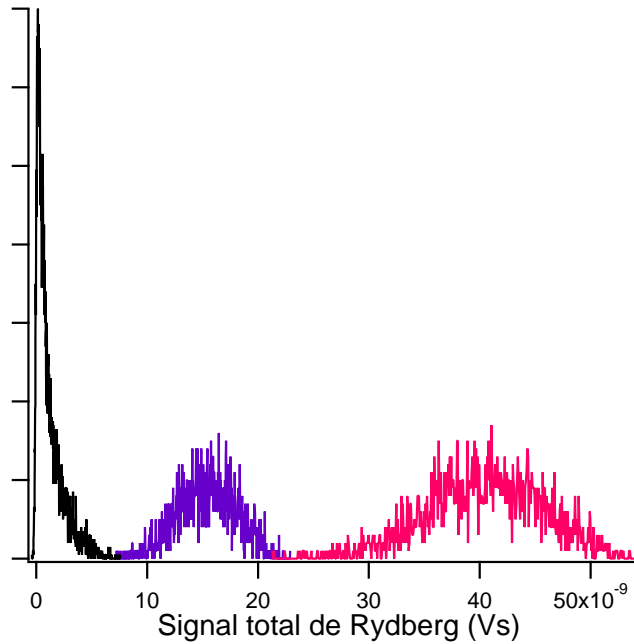


FIGURE 2.10 – Distributions typiques du signal d’atomes de sodium produit par ablation laser d’un barreau de sodium solide en rotation. En noir est représentée une distribution typique sans les améliorations présentées dans cette partie. En violet et en rose sont représentées les distributions typiques du signal après les améliorations décrites précédemment, pour des puissances du laser d’excitation (laser infrarouge) de respectivement 700 mW et 1.5 W.

## 2.2.4 Dispositif expérimental du jet supersonique

### 2.2.4.1 Description

Le dispositif expérimental est constitué de deux enceintes à vide conçues et réalisées au laboratoire en 2006-2007. Les enceintes sont en acier 316L amagnétique. Les deux chambres accolées forment un dispositif de longueur 84 cm. Elles ne communiquent entre elles que par l’écorceur de diamètre 800  $\mu\text{m}$ . L’enceinte contenant la vanne, dédiée à la production du jet supersonique, est soumise en fonctionnement à une charge de gaz importante, le système de pompage est donc constitué au plus près de l’enceinte d’une pompe turbo-moléculaire *Pfeiffer* de débit 2000 L/s, suivi d’une pompe sèche *Busch* de débit 30 m<sup>3</sup>/h assurant un vide primaire. L’enceinte où se déroule la manipulation des atomes de sodium, moins chargée en gaz lors du fonctionnement de la vanne, est pompée au plus près de l’enceinte par une pompe turbo-moléculaire *Pfeiffer* de débit 1200 L/s, suivi d’une pompe sèche de débit 18 m<sup>3</sup>/h. L’isolation du vide est réalisée par des joints

toriques et permet d'atteindre un vide suffisant pour cette expérience : sans charge de gaz, la pression atteinte est de quelques  $10^{-8}$  mbar.

**Chambre source** La chambre de production du jet supersonique contient la vanne, la chambre d'ablation et l'écorceur. Elle comprend aussi de nombreux accès optiques et des connexions électriques. La vanne est de marque *Parker - General Valve*, de modèle série 9. Une modification a été apportée à la vanne, lors de la conception du dispositif expérimental, afin de pouvoir contrôler la longueur de la course lors de son ouverture et de sa fermeture. Le contrôleur de la vanne est un contrôleur *IOTA one*, permettant de délivrer des pulses de longueurs variables : de  $10 \mu\text{s}$  à 1 s, et pouvant atteindre un taux de répétition de 250 Hz. De plus, cette vanne est adaptée à un système de refroidissement à l'azote liquide.

**Chambre expérience** Après l'écorceur, le jet atomique rentre dans la chambre expérience. Cette chambre est dédiée à la manipulation des atomes de sodium du jet et à leur détection. En effet, dans un premier temps, cette chambre contenait deux systèmes d'optiques de collections (miroirs, lentilles, photo-diodes) détectant la fluorescence des atomes de sodium soumis à une radiation laser à 589 nm (résonnant pour la transition  $3S-3P$ ). Ce premier dispositif a permis la caractérisation du jet supersonique d'atomes de sodium : influences du gaz porteur, de l'énergie d'ablation, ainsi que la détermination des températures transverse et longitudinale [Saquet, 2009].

#### 2.2.4.2 Caractérisation

Nous rappellerons ici brièvement les principaux résultats de la caractérisation du jet supersonique en fonction des différents paramètres accessibles dans l'expérience [Saquet, 2009]. Cette étude a été menée avec le système de détection de fluorescence induite par laser sur la transition  $3S_{1/2} - 3P_{3/2}$  du sodium représenté sur la figure 2.11.

Le dispositif expérimental est à symétrie cylindrique, de fait le jet supersonique également. Nous définissons l'axe du jet comme axe longitudinal (Oz), ainsi que le plan perpendiculaire au jet (Oxy). Toutes les directions transverses sont équivalentes, et nous sélectionnons une direction transverse d'étude avec l'axe du laser d'excitation. Le jet supersonique peut donc être caractérisé par une vitesse moyenne et une température longitudinale, ainsi que par une vitesse moyenne (a priori nulle car le jet ne dévie pas) et une température transverse.

Le laser d'excitation émettant à 589 nm est de marque *Tekhnoscan*, de modèle *DYE-SF-077*. Il s'agit d'un laser à colorant continu pompé par un laser *Millenia* émettant à 532 nm et délivrant une puissance de 6 W. Nous l'utilisons dans sa configuration de cavité en anneau. Dans cette configuration, la largeur spectrale du laser est de 100 kHz, la fréquence est balayable sur 20 GHz, et la polarisation en sortie de la cavité est rectiligne horizontale. Le colorant utilisé est un mélange de Rhodamine 610 (83%) et de Rhodamine 590 (17%) dissout dans de l'éthylène glycol. Le laser est asservi sur le signal d'absorption saturée d'une cellule de sodium à  $\approx 400$  K. L'électronique d'asservissement (détection synchrone et génération du signal d'erreur) a été développée par le service électronique du laboratoire.



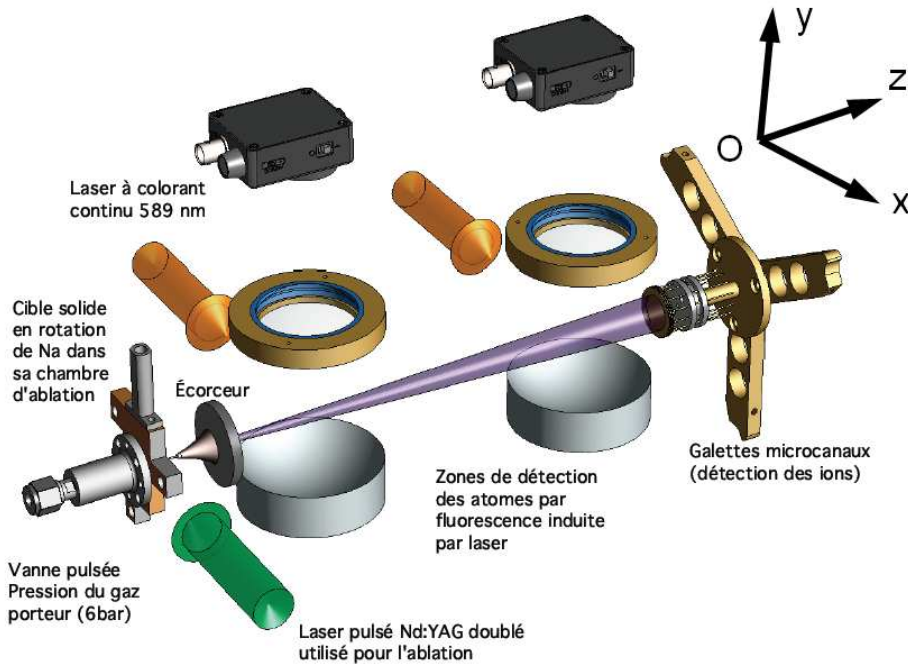


FIGURE 2.11 – Schéma décrivant le dispositif expérimental pour la production d'un jet supersonique de sodium (contenu dans la chambre source) : la vanne pulsée, la chambre d'ablation contenant le barreau de sodium solide en rotation. Les atomes de sodium sont détectés dans la deuxième partie de l'expérience (chambre expérience) par fluorescence induite par laser dans deux zones de détection séparées de 15 cm. À la fin, dans l'axe du jet, nous avons représenté les galettes de micro-canaux qui détectent les ions et les particules neutres suffisamment énergétiques.

**Détermination de la température longitudinale** La température longitudinale est déterminée par une méthode de temps de vol. La chambre d'expérience présente deux accès optiques et permet d'obtenir deux zones d'interaction entre les atomes de sodium et le laser à 589 nm (laser non focalisé de taille  $\approx 1.5$  mm). Connaissant la distance entre ces deux zones d'interaction et l'écorceur (à partir du régime moléculaire), on mesure une distribution en temps d'arrivée des atomes de sodium, directement reliée à la distribution des vitesses longitudinales du jet [Scoles, 1988]. Une étude précédente a montré qu'il n'est pas nécessaire de convoluer la distribution en temps d'arrivée avec la distribution initiale en position des atomes de sodium (extension initiale du nuage d'atomes) car cette distribution est trop fine pour contribuer à élargir le temps de vol. Les temps de vol obtenus sont dominés par la distribution initiale des vitesses longitudinales. Nous verrons que dans nos conditions expérimentales, le paramètre  $S^2$  est de l'ordre de 4, et nous ne pouvons pas omettre le facteur  $v^2$  dans l'expression de la distribution des vitesses longitudinales donnée par la formule 2.48. Nous exprimons cette expression en fonction de la largeur en vitesse de la distribution  $\delta v$  :

$$P(v) \propto v^2 e^{-\frac{(v-v_\infty)^2}{2\delta v^2}} \quad (2.48)$$

On peut également exprimer la distribution en temps d'arrivée par rapport à un temps  $t_0$  :

$$P(t) \propto \frac{e^{-\frac{(t-t_0)^2}{2\delta v^2 t^2}}}{t^2} \quad (2.49)$$

La figure 2.12 représente les temps de vol expérimentaux obtenus par fluorescence des atomes de sodium dans la première zone d'interaction (soit 6 cm après l'écorceur) pour différents gaz porteurs : l'hélium, le néon, et l'argon pour une pression de 3 bars. On ajuste alors la fonction  $P(t)$  de l'équation 2.49, on en déduit la vitesse moyenne du nuage ainsi que la largeur de la distribution des vitesses longitudinales  $\delta v$ . On trouve :  $7.3 \pm 1.5$  K pour l'hélium,  $4.3 \pm 0.5$  K pour le néon, et  $5 \pm 0.5$  K pour l'argon.

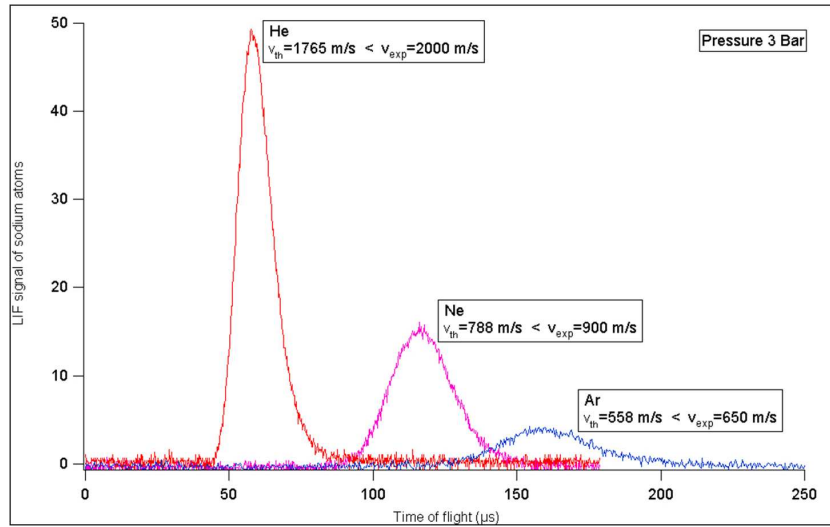


FIGURE 2.12 – Temps de vol d'atomes de sodium chargés dans différents gaz porteurs pour une pression de 3 bars : en rouge l'hélium, en rose le néon, en bleu l'argon.

**Détermination de la température transverse** La mesure du profil Doppler des vitesses transverses du jet atomique permet de déterminer la température transverse des atomes de sodium du jet. En effet, le faisceau laser croise perpendiculairement le jet de sodium, nous sondons donc les projections des vecteurs vitesses des atomes sur l'axe de propagation du laser, soit une composante transverse. Nous disposons du laser asservi sur une transition atomique de la raie D2 du sodium (par la technique d'absorption saturée) :  $3^2S_{1/2}, F = 2 - 3^2P_{3/2}, F'$  de notre choix (ainsi que les cross-over). Nous disposons donc de plusieurs valeurs de référence absolue en fréquence, nous permettant de désaccorder précisément la fréquence sur quelques points couvrant une gamme de quelques dizaines de MHz autour de la résonance. Un laser dont la fréquence est désaccordée par rapport à la fréquence de transition excitera les atomes d'une classe de vitesse transverse non nulle. Nous mesurons la fluorescence pour différentes valeurs du désaccord en fréquence. En première approximation, on néglige la structure hyperfine de l'état  $3^2P_{3/2}$  contenue dans le profil Doppler. Le profil Doppler est alors dominé par la dispersion des vitesses transverses. Le profil de raie mesuré est gaussien centré sur la transition  $3^2S_{1/2} - 3^2P_{3/2}$

de fréquence  $\nu_0$  et s'écrit en fonction de la température transverse  $T_t$  :

$$g(\nu_0, T_t) \propto e^{-\frac{(\nu-\nu_0)^2}{\nu_0^2 \frac{kT_t}{mc^2}}} \quad (2.50)$$

La figure 2.13 représente les points expérimentaux (points bleus) et l'ajustement gaussien des points expérimentaux (courbe rouge). Cet ajustement donne une température transverse  $T_t = 1.8$  K. Si l'on prend en compte la structure hyperfine, représentée dans l'encadré en haut à gauche de la figure 2.13 en convoluant le profil gaussien par les profils de Voigt de chaque transition hyperfine, l'ajustement du profil Doppler donne  $T_t = 0.9$  K.

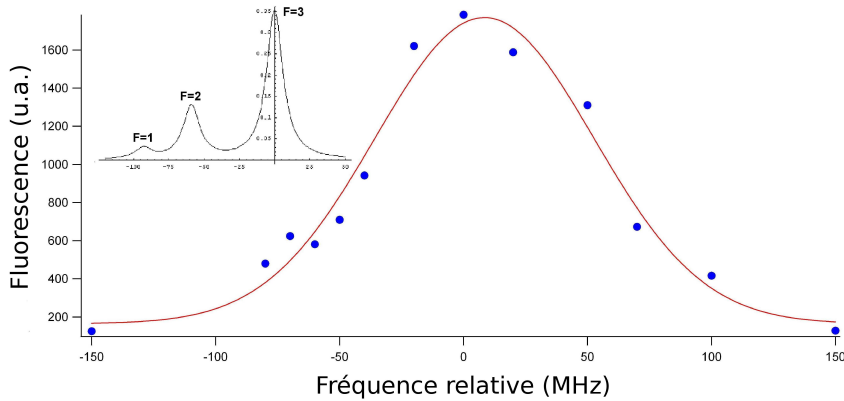


FIGURE 2.13 – Profil Doppler transverse et son ajustement gaussien dans les conditions expérimentales suivantes : argon à 6 bars et puissance du laser d'ablation de 0.6 mJ/pulse. Dans l'encadré en haut à gauche, on représente les raies hyperfines contribuant au signal.

**Influence du gaz porteur** Il s'agit ici d'optimiser la température longitudinale du jet atomique en fonction de la pression du gaz porteur dans le réservoir à 300 K. Pour trois gaz porteurs différents (hélium, néon, argon), nous mesurons la vitesse longitudinale moyenne, et la température longitudinale, pour différentes pressions dans le réservoir. Cette étude est résumée sur la figure 2.14.

Les courbes de gauche représentent la vitesse moyenne du jet normalisée à la vitesse théorique du jet supersonique (lorsque toute l'énergie disponible a été convertie en énergie cinétique) pour les trois gaz porteurs différents. Les trois courbes n'ont pas le même comportement aux basses pressions, cependant elles semblent converger vers la même vitesse moyenne finale, elle même supérieure à la vitesse théorique attendue.

Les courbes de droite représentent la température longitudinale finale pour ces mêmes gaz porteurs en fonction de la pression dans le réservoir. La température longitudinale a le même comportement pour les trois gaz : diminution avec la pression jusqu'à atteindre une valeur de saturation. Cette pression de saturation vaut environ 10 bars pour l'hélium et 5 bars pour le néon et l'argon. De plus, la température longitudinale la plus basse accessible est plus élevée dans l'hélium que pour le néon et l'argon. En effet, le néon et l'argon sont des éléments plus massifs, la conversion d'énergie par collisions est alors plus efficace. Cependant, nous avons pu constater que l'ensemencement des atomes de sodium dans des gaz porteurs lourds est moins efficace, il s'agit donc d'un compromis à trouver.

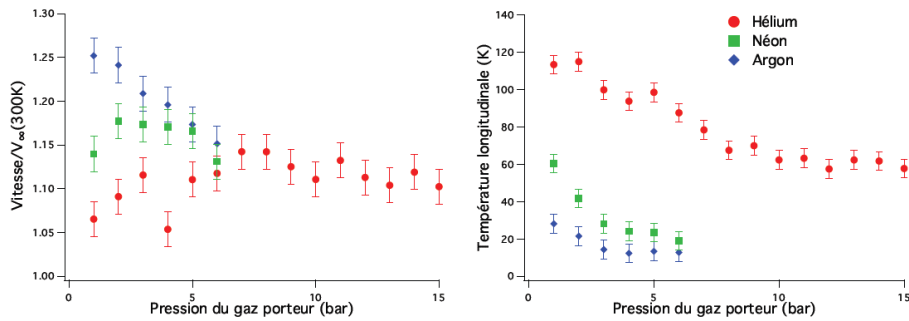


FIGURE 2.14 – Influence de la pression du gaz porteur sur la vitesse moyenne du jet (à gauche) et sur la température longitudinale (à droite) pour différents gaz porteurs. L'énergie du laser d'ablation est de 0.6 mJ/pulse.

**Influence de l'énergie d'ablation** Nous avons vu au paragraphe précédent que les vitesses moyennes mesurées pour les différents gaz porteurs sont supérieures aux valeurs théoriques. Il en est de même pour les températures longitudinales. Nous attribuons ce réchauffement à l'énergie apportée lors du processus d'ablation. Pour quantifier plus précisément cet effet, nous mesurons la vitesse moyenne du jet ainsi que la température longitudinale pour les trois gaz porteurs comme précédemment, en fonction de la puissance du laser d'ablation. Les résultats sont résumés sur la figure 2.15. Concernant la vitesse moyenne et la température longitudinale, les tendances sont similaires : une augmentation de ces grandeurs avec l'énergie du laser d'ablation. En effet, les atomes de sodium emportent plus d'énergie lors du processus d'ablation, il y a alors plus d'énergie à convertir lors de l'expansion supersonique. Sans le processus d'ablation, nous mesurerions la même vitesse moyenne et la même température si le réservoir de gaz était plus chaud. En conclusion, l'énergie apportée par le laser d'ablation participe à réchauffer le jet atomique ainsi qu'à l'accélérer, mais cet effet reste raisonnable. À puissance maximale du laser d'ablation, la vitesse moyenne finale est environ 10% supérieure à la vitesse moyenne finale théorique, et la température longitudinale a augmenté d'environ 10 K.

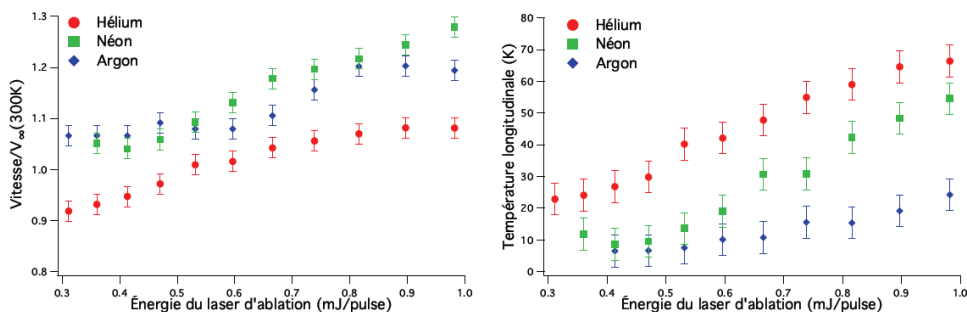


FIGURE 2.15 – Influence de l'énergie du laser d'ablation sur la vitesse moyenne du jet (à gauche) et sur la température longitudinale (à droite) pour différents gaz porteurs de pression 6 bars dans le réservoir.

## 2.2.5 Excitation laser des atomes de sodium vers un état de Rydberg

Nous décrivons dans cette partie l'excitation des atomes de sodium vers un état de Rydberg. Le schéma d'excitation choisi est une excitation simple à deux photons représentée sur la figure 2.16. Nous décrivons les deux étapes du schéma d'excitation. Le premier étage est réalisé par un laser pulsé à  $\approx 330$  nm pour la transition  $3^2S_{1/2} \rightarrow 4^2P_{3/2}$ . Le second étage, vers un état de Rydberg, est réalisé par un laser continu à  $\approx 900$  nm pour la transition  $4^2P_{3/2} \rightarrow nS_{1/2}$ .

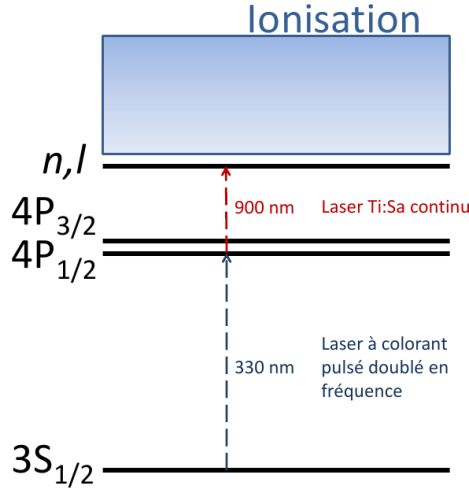


FIGURE 2.16 – Schéma d'excitation des atomes de sodium dans l'état fondamental  $3s_{1/2}$  vers un état de Rydberg  $nl$  par absorption de deux photons : un photon UV pour la transition  $3S_{1/2} - 4P_{3/2}$  et un photon IR pour la transition  $4P_{3/2} - nl$ .

### 2.2.5.1 Excitation pulsée 3S-4P

Le laser utilisé pour cette transition est un laser à colorant *Continuum ND6000* doublé en fréquence par un cristal doubleur. Le colorant utilisé est du DCM. Le laser de pompe est un laser Nd :YAG (*Continuum Powerlite Precision 8050*) doublé en fréquence délivrant des impulsions de durée 9 ns, de puissance 160 mJ/pulse et de largeur spectrale  $\approx 1$  cm $^{-1}$ , à un taux de répétition de 10 Hz. On obtient une radiation à  $\approx 660$  nm de puissance  $\approx 1.4$  mJ/pulse qui est focalisée, en un seul passage, dans un cristal BBO de type I. Le rendement du doublage est de l'ordre de 10%, et on obtient une radiation à  $\approx 330$  nm de puissance  $\approx 150$   $\mu$ J/pulse. Nous disposons d'une puissance suffisante pour caractériser la transition du niveau fondamental vers les états de la structure fine de l'état  $4P$  par photoionisation par l'intermédiaire du niveau  $4P$  résonnant avec le laser à 330 nm. Le schéma de photoionisation est représenté sur la figure 2.17.

**Sections efficaces de photoionisation** Il est usuel de décrire les phénomènes d'absorption de la lumière par les atomes par leurs sections efficaces. Le taux de photoionisation  $\Gamma_{PI}(n, l, m, \nu)$  s'exprime en fonction de la section efficace de photoionisation d'un

état  $|n, l, m\rangle$ ,  $\sigma_{PI}(n, l, m, \nu)$  et du flux de photons  $\Phi$  de fréquence  $\nu$  :

$$\Gamma_{PI}(n, l, m, \nu) = \sigma_{PI}(n, l, m, \nu)\Phi \quad (2.51)$$

Dans le cas d'une radiation de polarisation linéaire, la section efficace de photoionisation s'écrit, avec  $\varphi(\epsilon, l', m)$  l'état du continuum d'énergie  $\epsilon$  au dessus de la limite d'ionisation [Friedrich, 1991] :

$$\sigma_{PI}(n, l, m, \nu) = 4\pi^2\alpha h\nu |\langle\varphi(n, l, m)|\hat{z}|\varphi(\epsilon, l', m)\rangle|^2 \quad (2.52)$$

où  $\alpha$  est la constante de structure fine.

Sans prendre en compte la sous-structure en  $m$ , le calcul des sections efficaces de photoionisation se ramène aux calculs des intégrales radiales des fonctions d'ondes d'un état lié et d'un état du continuum (ici un état  $d$ ). Dans le cas de la photoionisation de l'état  $4P$  du sodium, pour la longueur d'onde du laser pulsé ( $\lambda_{UV} \approx 330$  nm), on trouve  $\sigma_{PI} \approx 6 \times 10^{-22}$  m<sup>2</sup>. Le flux de photons  $\Phi = \frac{P_{UV}\lambda_{UV}}{\pi(d/2)^2 hc}$  est évalué pour une puissance moyennée dans le temps  $P_{UV} = 1.5$  mW et un diamètre de faisceau de 5 mm. On trouve alors, avec l'expression 2.51,  $\Gamma_{PI} = 0.3$  s<sup>-1</sup>. Pour un taux de répétition de 10 Hz, cela signifie que 3% des atomes sont photoionisés à chaque expérience. Cette photoionisation à partir de l'état  $4P$  peut donc être une source importante d'ions dans le nuage atomique.

**Spectre de l'état  $4P$  par photoionisation** Nous balayons la fréquence du laser UV, et mesurons le signal d'ions provenant de la photoionisation de l'état  $4P$  avec les galettes de microcanaux situées dans l'axe du jet. Le spectre obtenu est représenté sur la figure 2.18. Nous résolvons bien la structure fine de l'état  $4P$ . La largeur des raies est dominée par la largeur spectrale du laser UV, elle est d'environ 40 GHz.

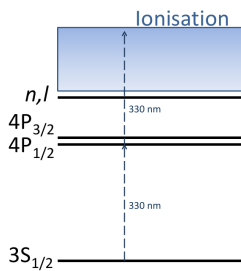


FIGURE 2.17 – Schéma de photoionisation par absorption de deux photons à 330 nm résonnant avec l'état  $4P$ .

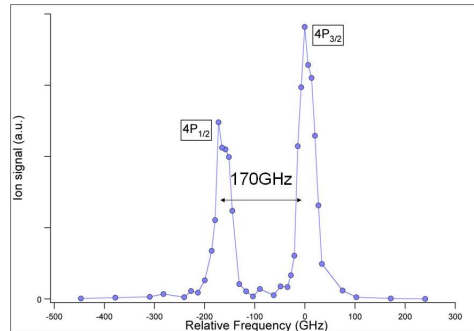


FIGURE 2.18 – Spectre de la structure fine de l'état  $4P$  obtenu par photoionisation.

### 2.2.5.2 Excitation continue $4P$ -ns

Le deuxième étage de l'excitation est la transition  $4^2P_{3/2} \rightarrow ns$ , vers un état de Rydberg. Pour cela, nous disposons d'un laser Titane : Saphir continu et monomode. Il s'agit d'un laser 'tout solide' *Coherent MBR-110* qui possède une grande accordabilité (couvrant de 700 à 1000 nm avec seulement trois jeux d'optiques de cavité) et une très bonne

stabilité. Il possède une largeur spectrale inférieure à 75 kHz, et délivre une puissance de 1.5 W dans la gamme de 900 nm. Le cristal Ti : Sa est pompé par un laser *Verdi Single FAP Diode-Pumped laser* de marque *Coherent*. Il s'agit d'un cristal Neodymium Vanadate pompé par une diode laser et doublé en fréquence. Il délivre une puissance de 9.5 W.

**Chaîne d'asservissement** Dans le cadre des expériences présentées dans ce manuscrit, il est indispensable d'asservir le laser Ti : Sa pour l'excitation des atomes de sodium vers un état de Rydberg. La chaîne d'asservissement choisie est décrite ci-après. Notre référence absolue est une transition entre les premiers niveaux électroniques de l'atome de césium. Pour cela, une diode laser est asservie sur la transition atomique en utilisant les méthodes d'absorption saturée par des vapeurs atomiques. Puis nous asservissons la longueur d'une cavité Fabry-Pérot sur la référence précédente. Une fois la cavité Fabry-Pérot asservie, nous pouvons alors asservir la fréquence du laser Ti : Sa sur une résonance du Fabry-Pérot (mesurée en transmission). Nous voulons compenser les dérives lentes du laser Ti : Sa, nous choisissons alors deux asservissements par différence au niveau d'un flan d'un pic de résonance du Fabry-Pérot. Le schéma complet de l'asservissement est représenté sur la figure 2.19.

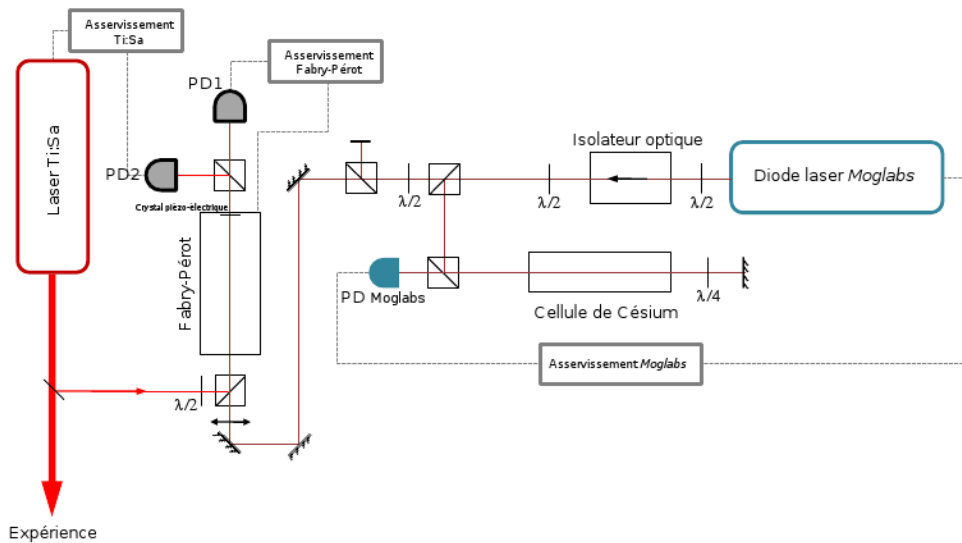


FIGURE 2.19 – Montage expérimental de la chaîne d'asservissement du laser Ti : Sa. La diode laser *Moglabs* est asservie sur une raie d'absorption saturée du césium. La photodiode PD1 enregistre la transmission du signal de la diode laser à travers le Fabry-Pérot. La photodiode PD2 enregistre la transmission du signal du Ti : Sa à travers le Fabry-Pérot.

**Absorption saturée** La spectroscopie par absorption saturée repose sur l'utilisation de deux faisceaux contra-propageants : un faisceau pompe et un faisceau sonde se recou-

vrant spatialement dans une vapeur atomique, ici du césium, et permet de s'affranchir de l'effet Doppler présent dans un gaz à température ambiante. En effet, pour des atomes de classe de vitesse  $v$ , la probabilité d'absorption est une lorentzienne de largeur  $\Gamma$  centrée en  $\omega_0 + k_{laser}v$  dû à l'effet Doppler. À la température de 300 K, la vitesse quadratique moyenne vaut  $\sqrt{\langle v^2 \rangle} = \sqrt{3k_B T/m} \approx 200 \text{ m.s}^{-1}$  et  $k_{laser}\sqrt{\langle v^2 \rangle} \approx 1.5 \text{ GHz}$ . La forme de raie d'absorption correspond à la convolution de la raie d'absorption pour chaque classe de vitesse et de la distribution des vitesses dans la vapeur atomique. Le profil obtenu est un profil de Voigt, largement dominé par la distribution de Maxwell-Boltzmann des vitesses. La largeur de ce profil est donc de l'ordre de  $k_{laser}\sqrt{\langle v^2 \rangle} \gg \Gamma$ . Dans le cadre du schéma d'absorption saturée présenté, un premier faisceau (pompe) a pour rôle de saturer la transition  $6S_{1/2} - 6P_{3/2}$  (raie D2 à  $\approx 852 \text{ nm}$ ) pour les atomes initialement dans l'état fondamental  $6S_{1/2}$ ,  $F = 3, 4$  sans résoudre la structure hyperfine (effet Doppler). Un deuxième faisceau (sonde), d'intensité inférieure à l'intensité de saturation des transitions hyperfines, sert à sonder les niveaux hyperfins des atomes dont la classe de vitesse est résonnante avec le faisceau pompe. Pour ces transitions, l'absorption de la sonde est diminuée et on observe un trou dans le profil d'absorption dont la largeur est égale à la largeur naturelle de la transition. Pour des atomes à deux niveaux, seuls ceux de classe de vitesse nulle seront résonnant à la fois avec le faisceau pompe et le faisceau sonde car ces deux faisceaux ont la même longueur d'onde et sont contra-propageants. Dans le cas où il y a plusieurs transitions possibles, prenons par exemple deux transitions de fréquence  $\omega_1$  et  $\omega_2$ , un pic d'absorption saturée apparaît pour chaque transition (classe de vitesse nulle), mais il est aussi possible qu'une classe de vitesse soit résonnante pour les deux transitions, une avec la pompe et l'autre avec la sonde. Alors :

$$\omega_1 = \omega_{laser} - k_{laser}v \quad (2.53)$$

$$\omega_2 = \omega_{laser} + k_{laser}v \quad (2.54)$$

On observera également un trou dans le profil d'absorption pour :  $\omega_{laser} = (\omega_1 + \omega_2)/2$ . Ces pics sont appelés *crossover*. La figure 2.20 représente un spectre expérimental d'absorption saturée pour la transition  $6S_{1/2} - 6P_{3/2}$  du césium, nous allons utiliser ces pics pour asservir la première partie de la chaîne d'asservissement : une diode laser.

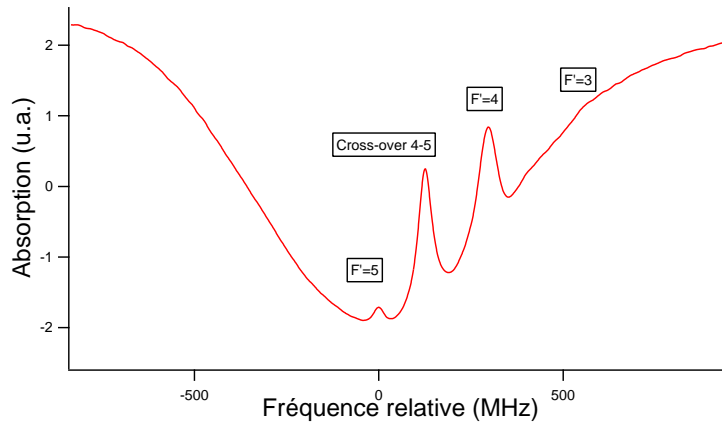


FIGURE 2.20 – Spectre d'absorption saturée de la diode laser à 852 nm à partir du niveau fondamental hyperfin  $6S_{1/2}$ ,  $F = 4$  vers les états  $6P_{3/2}$ ,  $F'$ .

Nous avons choisi d'acquérir une diode *Moglabs*, *ECD - 003* à 780 nm, en cavité éten-



due et asservie en température. La diode délivre une puissance maximum de 100 mW, et possède une largeur spectrale de 150 kHz. Elle est balayable au maximum sur une largeur de 15 GHz. Nous disposons d'une cellule de vapeur de césium dont les niveaux atomiques sont modulés par effet Zeeman grâce à un système de bobines externes.

**Asservissement de la cavité Fabry-Pérot** Nous voulons maintenir la longueur de la cavité Fabry-Pérot fixe en rétroagissant sur un cristal piézoélectrique donnant la position d'un miroir de la cavité. Nous voulons compenser les dérives lentes, pour cela nous construisons un circuit proportionnel-intégrateur permettant de s'asservir au niveau d'un flan d'un pic de résonance en transmission de la diode laser asservie sur le signal d'absorption saturée. Le signal de correction est renvoyé au cristal piézoélectrique par l'intermédiaire d'un amplificateur haute-tension.

**Asservissement du Ti : Sa sur la cavité Fabry-Pérot** La cavité Ti : Sa possède son propre asservissement pour les dérives rapides mais ne possède pas de référence. Nous voulons donc compenser les dérives lentes. Nous construisons alors un deuxième circuit proportionnel-intégrateur afin d'asservir la fréquence du laser Ti : Sa sur un flan d'un pic de résonance en transmission du laser Ti : Sa dans la cavité Fabry-Pérot maintenue fixe. Connaissant l'intervalle spectral libre de la cavité Fabry-Pérot (750 MHz) et sa finesse ( $\mathcal{F} = 24$ ), nous pouvons quantifier l'excursion en fréquence du signal de correction renvoyé au contrôle de la fréquence du laser Ti : Sa : elle est de  $\approx 200 \text{ mV.MHz}^{-1}$  au niveau de la plus grande pente d'un pic de transmission. Le montage réalisé, nous pouvons quantifier le bruit en fréquence du laser Ti : Sa asservi comme décrit précédemment. Nous estimons le bruit (ou "jitter") à  $\Delta\nu_{Ti:Sa} = 500 \text{ kHz}$

### 2.2.5.3 Profil Doppler de l'état 48s

Afin de réaliser expérimentalement l'excitation laser des atomes de sodium vers un état de Rydberg, nous devons contrôler précisément le champ électrique ressenti par les atomes de sodium lors de l'excitation laser. Pour cela, le dispositif expérimental de la chambre expérience a été modifié. Le système de détection par fluorescence induite par laser a été remplacé par un système de quatre plaques de  $200 \mu\text{m}$  d'épaisseur, percées en leurs centres d'un trou de 3 mm de diamètre. Les plaques sont séparées les unes de autres de 10 mm. Ce système permet d'exciter les atomes de sodium en champ électrique contrôlé, mais aussi de les faire évoluer en champ électrique lors de leur vol (par exemple pour réaliser l'ionisation des états de Rydberg par champ électrique pulsé). Le nouveau dispositif expérimental est représenté sur la figure 2.21

Pour la mesure du profil Doppler de l'état 48s, nous balayons la fréquence du laser d'excitation en champ nul pour différentes puissances du laser d'excitation. Nous utilisons la technique d'ionisation par champ électrique pulsé pour ioniser l'état 48s. Nous mesurons le signal des galettes de microcanaux. Les spectres sont représentés sur la figure 2.22. Aux températures typiques d'un jet supersonique, les raies mesurées sont dominées par la largeur Doppler. Nous ajustons alors les raies mesurées par une gaussienne. La largeur à mi-hauteur est une mesure de la température transverse. Pour une puissance de 0.75 W et 1 W, on trouve une largeur spectrale de  $59.7 \pm 0.5 \text{ MHz}$ , correspondant à une température

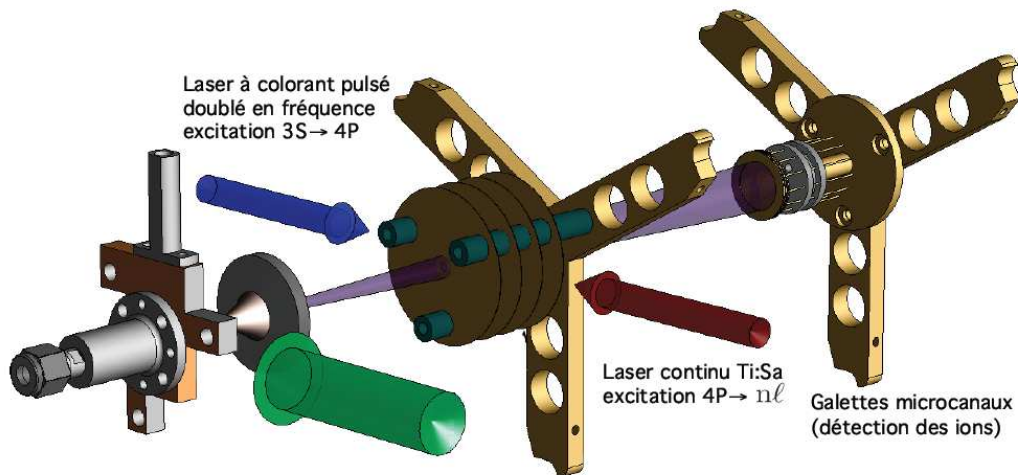


FIGURE 2.21 – Dispositif expérimental destiné à contrôler les champs électriques ressentis par les atomes de sodium lors de l’excitation dans un état de Rydberg et tout au long du vol des atomes de Rydberg dans le jet supersonique.

de 2 K. Pour une puissance de 1.24 W, la largeur spectrale mesurée est de  $66.7 \pm 0.6$  MHz, correspondant à un élargissement du profil Doppler par puissance.

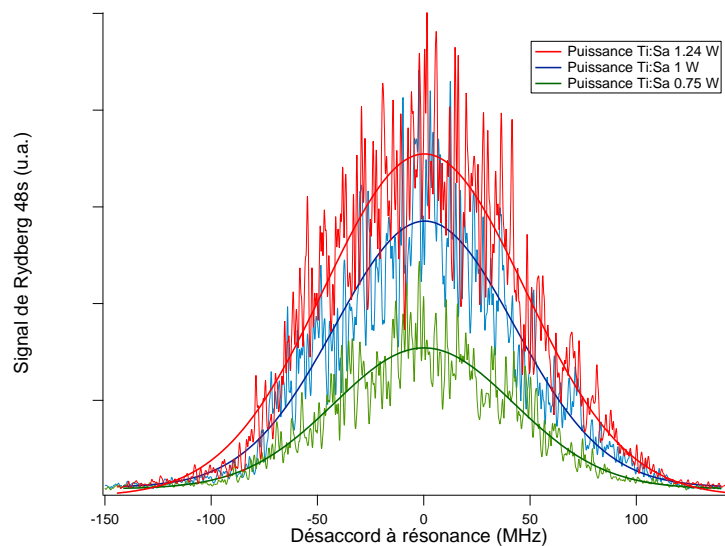


FIGURE 2.22 – Profil Doppler de l’état 48s en champ électrique nul pour différentes puissance du laser Ti : Sa : 0.75 W, 1 W, 1.24 W. Le gaz porteur est de l’hélium à 6 bar. L’énergie du laser d’ablation est d’environ 0.6 mJ/pulse.

## Conclusions

Les conclusions de ce chapitre portent sur le dispositif expérimental. Pour la suite des expériences, nous disposons donc d'un jet supersonique pulsé d'atomes de sodium dans un état de Rydberg, dont les températures, pour les atomes de sodium dans l'état fondamental, ont été déterminées expérimentalement. Nous obtenons 10 K pour la température longitudinale et 1 K pour la température transverse. Les influences des différents paramètres accessibles expérimentalement ont été caractérisées, notamment l'effet de chauffage apporté par le processus d'ablation laser d'une cible solide de sodium pour l'ensemencement des atomes de sodium dans le jet supersonique de gaz porteur. Nous avons pu constater que l'expérimentateur a peu de contrôle sur le processus d'ablation laser. De ce fait, le façonnage du barreau de sodium, étant la source du signal, sa taille, ainsi que le système mécanique de rotation de ce barreau sont des éléments clés si l'on souhaite obtenir un signal intense et relativement stable. Nous ne pouvons malheureusement pas éviter l'altération de la surface du barreau de sodium par les tirs répétés du laser d'ablation, lui conférant une durée de vie finie.

# Chapitre 3

## Transitions Landau-Zener dans des paires d'atomes de Rydberg froids

### Introduction

La première expérience présentée dans ce manuscrit a pour objectif la mise en évidence expérimentale de passage adiabatique basé sur le modèle de transition Landau-Zener, entre des états électroniques de paire d'atomes de Rydberg en champ électrique (autour d'une résonance de Förster) couplés par l'interaction dipôle-dipôle.

Les états de Rydberg atomiques sont connus de longue date pour être des systèmes privilégiés dans l'étude des interactions binaires [Safinya et al., 1981, Gallagher et al., 1982, Gallagher, 1994]. Les atomes de Rydberg présentent en effet des sections efficaces de collision très importantes avec un partenaire atomique [McLaughlin and Duquette, 1994] ou moléculaire. Ceci est généralement attribué à la très grande taille d'un atome de Rydberg dont l'électron est dans un état de nombre quantique principal élevé. Cependant, les sections efficaces du transfert d'énergie entre atomes de Rydberg par collisions résonantes sont beaucoup plus larges que les sections efficaces géométriques. Cela est dû à la très longue portée des interactions mises en jeu dans ces collisions inélastiques, l'interaction dipôle-dipôle. Ces systèmes de Rydberg en interaction à très longue portée reçoivent depuis quelques années un intérêt accru, en particulier à cause des perspectives importantes qu'ils offrent en information quantique, par exemple [Mestayer et al., 2008].

Nous proposons dans ce chapitre, la mise en évidence de l'interaction dipôle-dipôle entre deux atomes de Rydberg froids, dans un jet supersonique, à travers l'étude des transitions Landau-Zener dans des systèmes de paires de Rydberg, induites par l'application d'un champ électrique homogène dépendant du temps. L'adiabaticité de la transition dépend de la distance entre les atomes de la paire, ainsi que de la vitesse de balayage du champ électrique. Nous verrons que la réalisation expérimentale de passage adiabatique entre des états de paire d'atomes de Rydberg autour d'une résonance de Förster est possible car les atomes de Rydberg peuvent être considérés gelés le temps que dure la transition.

Dans une première partie, nous introduirons les éléments théoriques utiles afin de formuler la probabilité de passage adiabatique, dans le modèle Landau-Zener, à travers un croisement évité entre les états de paire d'atomes de Rydberg en champ électrique.

La dégénérescence étant levée par l'interaction dipôle-dipôle. Nous caractériserons donc l'interaction dipôle-dipôle dans le développement multipolaire des interactions électrostatiques entre deux atomes de Rydberg alcalins. Puis nous traiterons le cas de la transition  $ns\ ns - np\ (n - 1)p$  (pour  $n = 48$ ) pour les régimes de températures et de densités typiques du jet supersonique d'atomes de sodium dans un état de Rydberg. Nous verrons que, pour ces régimes de températures et de densités, le gaz d'atomes de Rydberg peut être considéré comme gelé sur le temps que dure une transition Landau-Zener, permettant de négliger les degrés de liberté externes des atomes de Rydberg dans le modèle proposé. Pour la détection des états atomiques de Rydberg, nous décrivons la séquence de pulse de champ électrique utilisée afin de ioniser les atomes de Rydberg nous permettant de distinguer en temps d'arrivée les états de Rydberg  $ns$  et  $np$ . Ceci nous permet de normaliser la production d'atomes dans l'état  $np$  lors d'un passage adiabatique. Enfin, nous présenterons les résultats expérimentaux des passages adiabatiques pour  $n = 43, 48$  et  $53$ . Les résultats obtenus étant en accord avec le modèle Landau-Zener.

## 3.1 Supports Théoriques

Dans cette partie, nous rappellerons les aspects théoriques utilisés dans les expériences présentées dans ce chapitre. Nous allons expérimentalement mettre en évidence le principe de passage adiabatique lors d'un croisement évité entre deux niveaux de paire d'atomes de sodium dans un état de Rydberg couplés par l'interaction dipôle-dipôle. L'application d'un champ électrique statique permet, par effet Stark, de faire varier les énergies des états de Rydberg et permet donc de contrôler la différence en énergie entre ces états. Nous aborderons, dans une première partie, le traitement général d'un système à deux niveaux couplés par une interaction. Puis nous développerons le modèle Landau-Zener pour le passage adiabatique. Enfin, nous préciserons le couplage entre les niveaux de paire d'atomes comme étant l'interaction entre les dipôles atomiques.

### 3.1.1 Le système à deux niveaux

Dans cette partie, nous rappellerons les résultats du calcul d'un système à deux niveaux couplés par une interaction  $W$ . Ce concept de base en mécanique quantique peut être trouvé dans de nombreux ouvrages de référence, par exemple [Cohen-Tannoudji et al., 2000, Messiah, 1959].

On considère un système dont l'espace des états est de dimension 2  $\{|i\rangle, |f\rangle\}$  : états propres du hamiltonien  $H_0$  de valeurs propres  $E_i, E_f$ . Soit  $W$  le couplage entre ces états ( $W$  réel), le hamiltonien  $H = H_0 + W$  s'écrit dans cette base :

$$\begin{pmatrix} E_i & W \\ W & E_f \end{pmatrix}$$

La diagonalisation de cette matrice  $2 \times 2$  donne les états propres et énergies propres du système :

$$E_+ = \frac{E_i + E_f}{2} + \sqrt{\Delta^2 + W^2} \quad (3.1)$$

$$E_- = \frac{E_i + E_f}{2} - \sqrt{\Delta^2 + W^2} \quad (3.2)$$

Où l'on a posé  $\Delta = \frac{E_f - E_i}{2}$  comme étant l'écart en énergie. Les états propres, ou états adiabatiques sont :

$$|+\rangle = \cos \frac{\theta}{2} |i\rangle + \sin \frac{\theta}{2} |f\rangle \quad (3.3)$$

$$|-\rangle = -\sin \frac{\theta}{2} |i\rangle + \cos \frac{\theta}{2} |f\rangle \quad (3.4)$$

avec :  $\sin \theta = \frac{W}{\sqrt{\Delta^2 + W^2}}$  et  $\cos \theta = -\frac{\Delta}{\sqrt{\Delta^2 + W^2}}$

$\theta$  est appelé angle de mélange et donne les composantes des états propres dans la base :  $\{|i\rangle, |f\rangle\}$ .

La figure 3.1 représente le croisement évité (en rouge) dans la base adiabatique pour un système à deux niveaux couplés par l'interaction  $W$ . L'écart en énergie  $\Delta$  représente

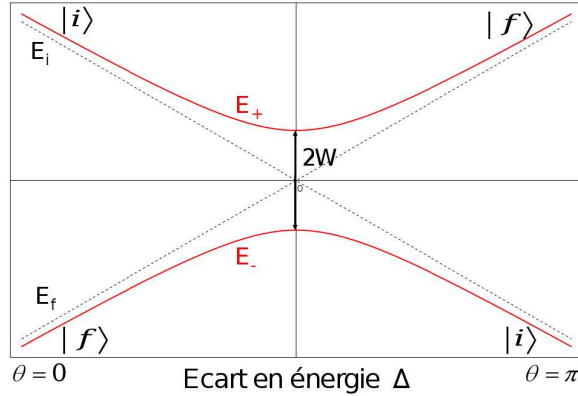


FIGURE 3.1 – Croisement évité dans le cas d’un système à deux niveaux couplés par une interaction  $W$ . Dans la base diabatique, les énergies des états sont représentées en noir (pointillés), les énergies des états adiabatiques sont représentées en rouge. Les énergies sont représentées en fonction de la différence en énergie  $\Delta$ .

l’écart entre les 2 niveaux, et doit être comparé au couplage  $W$ . Ces états peuvent être mis en résonance, par exemple, par l’application d’un champ laser, ou par effet Stark sur les atomes de Rydberg (très polarisables). En l’absence de couplage  $W$ , les niveaux se croisent (états diabatiques). Sous l’effet du couplage non diagonal  $W$ , les deux niveaux s’anticroisent (états adiabatiques). Le croisement est d’autant plus prononcé que le couplage est fort, et lorsque l’écart  $|\Delta|$  devient très grand devant le couplage, les énergies adiabatiques deviennent égales aux énergies diabatiques.

L’angle de mélange  $\theta$  peut varier en fonction du temps par exemple en appliquant un chirp laser, ou un champ électrique dépendant du temps lorsque l’on considère des atomes excités dans des états de Rydberg. Alors, l’évolution est adiabatique lorsque le système physique reste dans un état propre à tout instant de son évolution. M. Born et V. Fock sont à l’origine de ce théorème [Born and Fock, March 1928].

Le théorème adiabatique, [Bohm, 1951, Messiah, 1959], exprime que pour un système dont le hamiltonien est hermitique et varie lentement avec le temps, la fonction d’onde du système correspond aux états propres instantanés du système. Pour réaliser une évolution adiabatique, il faut que la variation de l’interaction, donnée par  $\hbar \frac{\partial \theta}{\partial t}$  soit faible devant l’écart d’énergie  $W(t)$  :  $\hbar \frac{\partial \theta}{\partial t} \ll W(t)$ . L’angle de mélange  $\theta$  peut dépendre du temps à travers  $\Delta$ .

Dans les expériences qui seront présentées dans ce chapitre, chaque niveau considéré est un état de paire d’atomes de Rydberg en champ électrique couplés par l’interaction dipôle-dipôle.

### 3.1.2 Modèle Landau-Zener

L’application d’un champ externe dépendant du temps pour un système à deux niveaux présentant un croisement évité est un cas général, largement utilisé, et présent dans de nombreuses situations : lors de collisions atomiques ou moléculaires, de résonances magnétiques, ainsi qu’en physique de la matière condensée. En 1932, Landau [Landau, 1932]

et Zener [Zener, 1932] formulèrent, indépendamment, une expression analytique de la probabilité de passage adiabatique dans le cas d'une collision atomique, en traitant de manière classique le mouvement des noyaux. La même année, Stückelberg [Stückelberg, 1932] prêta une attention particulière à la phase accumulée pour la probabilité de transition lors d'un double passage. La forme analytique de la probabilité d'un simple passage adiabatique est appelée modèle Landau-Zener, pour les hypothèses suivantes : la variation de la différence des énergies est une fonction linéaire du temps ; autour du croisement, la transition a lieu dans un petit intervalle de temps où le couplage est constant. Ces hypothèses sont satisfaites dans de nombreux cas, et le modèle Landau-Zener permet de bonnes prédictions. Nous pourrions consulter les articles [Vitanov and Garraway, 1996, Wittig, 2005, Giacomo and Nikitin, 2005].

Les observations expérimentales des oscillations de Stückelberg ont été réalisées dans différents systèmes : dans des états internes de molécules ultrafroides [Mark et al., 2007], dans des paires d'atomes de Rydberg en interaction dipôle-dipôle [van Ditzhuijzen et al., 2009], ainsi que lors d'effets tunnels dans des systèmes de condensats de Bose-Einstein dans des réseaux optiques [Zenesini et al., 2010].

Dans le modèle Landau-Zener, pour  $t \rightarrow \infty$ , la probabilité de passage adiabatique s'écrit, de manière générale :

$$P_{ad} = 1 - \exp\left(\frac{-2\pi |W|^2}{\hbar \left|\frac{d(E_i - E_f)}{dt}\right|}\right) \quad (3.5)$$

Nous considérons que, dans ce chapitre, les niveaux d'énergie  $E_i$ , et  $E_f$  sont des états de Rydberg en champ électrique, noté  $F$ . Dû à leur très grande taille,  $\propto n^2 a_0$ , un atome de Rydberg étant fortement polarisable, il possède un fort moment dipolaire, noté respectivement  $\mu_i(F)$  et  $\mu_f(F)$ . L'application d'un champ électrique permet de faire varier la différence des énergies entre ces niveaux, soit :

$$\frac{d(E_i - E_f)}{dt} = \frac{dF}{dt} \left( \frac{dE_i}{dF} - \frac{dE_f}{dF} \right) \quad (3.6)$$

Dans notre cas, on considère une variation linéaire en champ électrique, et l'on note  $F_r$  le champ électrique où les courbes des états diabatiques se croisent. On a alors :

$$\frac{d(E_i - E_f)}{dt} = \frac{dF}{dt} (\mu_i(F_r) - \mu_f(F_r)) = \frac{dF}{dt} \Delta\mu(F_r) \quad (3.7)$$

### 3.1.3 Interaction dipôle-dipôle entre atomes de Rydberg

Nous introduisons dans cette partie l'interaction de type dipôle-dipôle par un calcul d'électrostatique classique, décrivant l'interaction de deux dipôles [Cohen-Tannoudji et al., 2000], puis par une généralisation, en présentant les résultats du développement multipolaire électrique de deux systèmes atomiques hydrogénoïdes [Dalgarno and Davison, 1966], [Bussery and Aubert-Frécon, 1985], [Spelsberg et al., 1993]. Il ne s'agit ici que d'une introduction, un traitement complet du terme d'interaction dipôle-dipôle dans le cas spécifique des états de paire étudiés sera présenté dans le chapitre 4 se basant sur le développement multipolaire pour deux systèmes hydrogénoïdes présenté en annexe de ce manuscrit.



### 3.1.3.1 Calcul classique de l'interaction électrostatique entres deux atomes d'hydrogène

On considère deux atomes d'hydrogène (soit deux dipôles) séparés d'une distance  $R$ , soit  $\vec{R}$  le vecteur interatomique

Les moments dipolaires des deux atomes s'écrivent :  $\vec{d}_A = er_A\vec{r}_A$  et  $\vec{d}_B = er_B\vec{r}_B$

On suppose que :  $R \gg |r_A|, |r_B|$ , de sorte que les électrons de chaque atome soit séparés.

Le potentiel électronique  $V(\vec{R})$  créé par  $\vec{d}_A$  en  $\vec{R}$  s'écrit :  $V(\vec{R}) = \sum_i \frac{e}{4\pi\epsilon_0} \frac{1}{|\vec{R}-\vec{r}_i|}$

Pour  $R \gg |r_A| \Rightarrow$  un développement limité donne :  $V(\vec{R}) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{\vec{d}_A \cdot \vec{R}}{R^3}$ .

Le champ électrique associé est : (avec  $\vec{n} = \frac{\vec{R}}{|\vec{R}|}$ )

$$\vec{E} = \frac{-e}{4\pi\epsilon_0 R^3} (r_A\vec{r}_A - 3(r_A\vec{r}_A \cdot \vec{n})\vec{n}) \quad (3.8)$$

L'interaction entre le dipôle  $B$  et le champ créé par le dipôle  $A$  s'écrit :

$$W_{dd} = -\vec{E} \cdot \vec{d}_B = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 R^3} [r_A\vec{r}_A \cdot r_B\vec{r}_B - 3(r_A\vec{r}_A \cdot \vec{n})(r_B\vec{r}_B \cdot \vec{n})] \quad (3.9)$$

### 3.1.3.2 Généralisation : développement multipolaire

On considère 2 systèmes atomiques hydrogénoïdes, suffisamment éloignés l'un de l'autre pour que les fonctions d'ondes électroniques ne se recouvrent pas. Le hamiltonien du système s'écrit :  $H = H_0(A) + H_0(B) + V_{int}$  avec  $H_0(A/B)$  représentant le hamiltonien de l'atome isolé A/B.

$V_{int}$  peut être représenté par un développement multipolaire en puissance de  $\frac{1}{R}$  :

$$V_{int} = \sum_{i=0}^{\infty} \sum_{j=0}^{\infty} \frac{V_{ij}(AB)}{R^{i+j+1}} \quad (3.10)$$

$V_{ij}$  représente l'interaction entre le  $2^i$ -pôle de l'atome A et le  $2^j$ -pôle de l'atome B. Dans le cas d'un atome alcalin où l'on considère un seul électron externe en  $\vec{r}$  orbitant autour d'un coeur ponctuel de charge  $+e$ , on a :

$$V_{ij} = (-1)^j \sum_{-min(i,j)}^{min(i,j)} d_m(i,j) Q_m^i(A) Q_{-m}^j(B) \quad (3.11)$$

avec :  $d_m(i,j) = (i+j)! [(i-m)!(i+m)!(j+m)!(j-m)!]^{-\frac{1}{2}}$ ,

et :  $Q_m^l(A) = (-1)^m \sqrt{\frac{4\pi}{2l+1}} er^l Y_l^m(\theta, \phi)$ ,  $Q_m^l(A)$  représente la composante irréductible du tenseur moment  $2^l$  polaire, de rang  $l$  de l'atome A.

Ainsi, quelque soit la répartition de charges, cette forme contient toutes les interactions "en regroupant les charges par 2" :

- charge-charge en  $\frac{1}{R}$
- charge-dipôle en  $\frac{1}{R^2}$
- charge quadrupôle et dipôle-dipôle en  $\frac{1}{R^3}$

– charge octupôle et dipôle-quadrupôle en  $\frac{1}{R^4}$  etc...

Dans le cas de l'interaction entre deux atomes neutres, le premier terme non-nul est le terme d'interaction dipôle-dipôle dans le développement multipolaire électrique présenté (pour  $i = j = 1$ ). Il s'agit de ce terme que nous prendrons en compte dans les simulations de deux atomes de sodium en interaction dipôle-dipôle. Le développement multipolaire permet de retrouver l'expression de l'interaction dipôle-dipôle 3.9 calculée dans le cadre de l'électrostatique classique. Dans la suite du chapitre, nous exprimerons l'interaction dipôle-dipôle sous cette forme classique. Nous détaillerons l'interaction dipôle-dipôle du développement multipolaire pour notre système atomique dans le chapitre 4.

Le traitement de l'interaction dipôle-dipôle par la théorie des perturbations donne, au premier ordre, la correction en énergie (pour un état non dégénéré) donnée par la valeur moyenne de l'opérateur d'interaction. Le premier ordre de la théorie des perturbation traduit alors le déplacement des niveaux d'énergie. Cette correction s'écrit :

$$V_{dd}^{(1)} = \langle \varphi_1 \varphi_2 | V_{dd} | \varphi_1 \varphi_2 \rangle \quad (3.12)$$

avec  $\varphi_{1/2}$  : état propre de l'atome 1/2.

Les opérateurs positions sont impaires,  $V_{dd}$  couple alors des états de moments cinétiques orbitaux  $l$  différents. On peut, par exemple, appliquer un champ électrique qui lève la dégénérescence des niveaux atomiques en induisant un couplage entre les états de la base sphérique  $|n, l, m\rangle$  (effet Stark).  $\varphi_{1/2}$  s'exprime comme une superposition d'états  $|n, l, m\rangle$ . Si  $V_{dd}^{(1)} = 0$ , il faut alors recourir à la correction en énergie au deuxième ordre de la théorie des perturbations (interaction de Van der Waals).

### 3.1.4 Probabilité de passage adiabatique en fonction de la distance interatomique

En première approche, nous exprimons l'interaction  $W$ , présenté dans le modèle Landau-Zener (3.1.2) comme étant l'interaction dipôle-dipôle s'écrivant, formule 3.9 :

$$W \approx \frac{\langle n_1 l_1 m_1 | \hat{\mu} | n_3 l_3 m_3 \rangle \langle n_2 l_2 m_2 | \hat{\mu} | n_4 l_4 m_4 \rangle}{4\pi\epsilon_0 R^3} \quad (3.13)$$

où  $R$  est la distance interatomique.

Nous pouvons réécrire  $P_{ad}$  en fonction de la variable  $R$  et d'un paramètre  $R_0$  comme suit :

$$P_{ad} = 1 - \exp\left(-\left(\frac{R}{R_0}\right)^{-6}\right) \quad (3.14)$$

avec :

$$R_0 = \left( \frac{2\pi \langle n_1 l_1 m_1 | \hat{\mu} | n_3 l_3 m_3 \rangle^2 \langle n_2 l_2 m_2 | \hat{\mu} | n_4 l_4 m_4 \rangle^2}{(4\pi\epsilon_0)^2 \hbar |\Delta\mu(F_r)| \left| \frac{dF}{dt} \right|} \right)^{\frac{1}{6}} \quad (3.15)$$

La figure 3.2 représente la probabilité de passage adiabatique  $P_{ad}$  en fonction de la distance interatomique  $R$  pour un  $R_0$  arbitraire ( $5 \mu\text{m}$ ). Nous pouvons voir que la coupure entre  $P_{ad} \approx 1$  et  $P_{ad} \approx 0$  est assez franche. Pour se donner une image physique, on peut

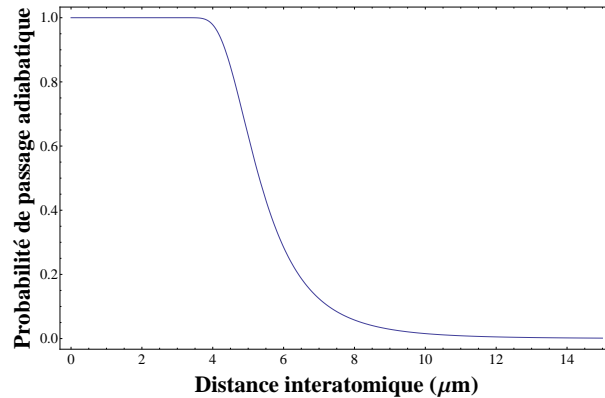


FIGURE 3.2 – Probabilité de passage adiabatique en fonction de la distance interatomique  $R$  dans le cas d'un croisement évité de deux niveaux de paire d'atomes couplés par l'interaction dipôle-dipôle.

approximer la probabilité de passage adiabatique par une marche. Autrement dit, pour un  $R_0$  donné, lors d'un passage adiabatique, une paire d'atomes ayant une distance interatomique inférieure à  $R_0$  aura une évolution adiabatique à travers le croisement évité ; et une paire ayant une distance interatomique supérieure à  $R_0$  aura une évolution diabatique. Nous voyons que la distance de coupure  $R_0$  dépend de plusieurs paramètres :

- des éléments de matrice de couplage dipolaire à 1 atome (écrit ici dans le cas des états purs labélisés  $nlm$ )
- de la différence des moments dipolaires des états de paire au croisement (différence des pentes)
- de la vitesse de passage à travers la résonance, ie de la dérivée temporelle du champ électrique.

En conclusion, le système à considérer doit satisfaire aux critères précédents dans les limites expérimentales accessibles. Précisons ici que le mouvement relatif des atomes (traité de manière classique) doit être négligeable par rapport à la distance interatomique afin de pouvoir considérer les atomes fixes dans l'espace.

### 3.2 Expériences et résultats expérimentaux

Après avoir rappelé les régimes de température et de densité atteints dans l'expérience pour les atomes de sodium dans un état de Rydberg, nous présenterons la probabilité de passage adiabatique (pour le modèle Landau-Zener) dans le cas de la transition  $ns\ ns - np\ (n-1)p$  pour  $n = 48$ . Cette représentation de la probabilité de passage adiabatique nous renseigne sur la gamme de variation du champ électrique utile pour les atomes de Rydberg dans  $n = 48$ , et de ce fait sur les distances interatomiques permettant le changement d'état électronique des atomes de la paire. Une autre condition essentielle à la réalisation d'un passage adiabatique est la conservation du même "partenaire d'interaction" lors du temps de transition. Nous verrons que le régime de température du jet supersonique nous permet de satisfaire à cette condition. Puis nous détaillerons le montage expérimental et les améliorations effectuées dans le but de contrôler précisément le champ électrique ressenti par les atomes de Rydberg : homogénéité du champ électrique, génération du pulse de champ électrique induisant le passage adiabatique. Nous détaillerons alors les

seuils d'ionisation expérimentaux par champ électrique pulsé des états initiaux et finaux concernés lors de la transition Landau-Zener. Enfin, nous présenterons les résultats expérimentaux. Nous avons réalisé expérimentalement ce passage adiabatique pour différents nombres quantiques principaux  $n$ , en mettant en évidence, pour  $n = 48$ , la dépendance de la probabilité de passage adiabatique avec la dérivée du champ électrique, dans le modèle Landau-Zener. Enfin, nous discuterons de la validité des résultats obtenus.

### 3.2.1 Régime de fonctionnement du jet supersonique

La première étape de l'expérience consiste à la formation d'un jet supersonique d'un gaz rare (l'hélium est ici utilisé pour l'efficacité d'ensemencement des atomes de sodium). La technique d'ablation laser permet d'extraire des atomes de sodium d'une cible solide. L'ensemencement des atomes de sodium par les atomes du gaz porteur permet l'obtention d'un jet supersonique d'atomes de sodium dans l'état fondamental.

#### 3.2.1.1 Températures

La technique de formation d'un jet supersonique au travers un écorceur est une technique directe de formation d'un gaz froid. La température des atomes de sodium dans l'état fondamental atteinte dans le sens de propagation du jet est de l'ordre de 10 K (avec une vitesse moyenne de  $1800 \text{ m.s}^{-1}$  dans l'hélium et  $350 \text{ m.s}^{-1}$  dans le xénon). Dans un plan perpendiculaire à l'axe de propagation (axe du laser d'excitation), la température du gaz est de l'ordre de 1K. La température longitudinale est mesurée précisément en utilisant la technique de temps de vol. La température transverse est déterminée par effet Doppler en désaccordant le laser d'excitation par rapport à la résonance atomique. Un résultat important est la mesure de la température transverse (réalisé sur les atomes de sodium dans l'état fondamental), de 0.9 K, correspondant à une dispersion des vitesses des atomes de sodium dans l'état fondamental de  $\Delta v = 18 \text{ m.s}^{-1}$ .

En ce qui concerne les atomes de sodium dans un état de Rydberg, les propriétés des deux lasers pour l'excitation vers un état de Rydberg permettent, en plus, une sélection en classe de vitesses suivant l'axe de propagation des lasers (même axe et contrapropageants) ainsi que suivant l'axe du jet.

- Le premier étage de l'excitation Rydberg :  $3S_{1/2} \rightarrow 4P_{3/2}$  se fait à l'aide d'un laser pulsé. La taille du faisceau ayant une extension finie, l'excitation laser sélectionne les atomes de sodium en classe de vitesses longitudinales (effet chopper). Si la taille du faisceau vaut  $\Delta l = 1 \text{ mm}$ , et la distance entre la zone de production et la zone d'excitation vaut  $l = 20 \text{ cm}$ , alors pour une vitesse moyenne de  $1800 \text{ m.s}^{-1}$ , on trouve une dispersion des vitesses sélectionnées  $\Delta v = 18 \text{ m.s}^{-1}$ , correspondant à  $T_L \approx 500 \text{ mK}$ .
- La cavité  $Ti : Sa$  est très stable en fréquence et possède une haute finesse spectrale  $\Delta \nu \approx 100 \text{ kHz}$  dans la gamme des fréquences accessibles par le laser. Le laser d'excitation opère alors une sélection en classe de vitesses suivant l'axe de propagation du laser (transverse au jet) à l'intérieur du profil Doppler du jet supersonique. La dispersion en vitesse sélectionnée est alors :  $\Delta v = \left( \frac{\nu_L - \nu_0}{\nu_L} \right) c = \left( \frac{\Delta \nu}{\nu_L} \right) c$ , on trouve  $\Delta v \approx 1 \text{ m.s}^{-1}$ , soit  $T_t \approx 3 \text{ mK}$ .

### 3.2.1.2 Densité

L'ablation laser utilisée est une technique où l'expérimentateur a peu de contrôle sur la quantité de signal produite, l'efficacité du processus est soumise à une forte instabilité dépendant de la qualité ou encore de l'ancienneté du barreau de sodium. L'ablation laser donne une large gamme de signal produit, soit une large gamme de densité. De plus, des mesures préliminaires de fluorescence sur les atomes de sodium dans l'état fondamental estiment la densité du nuage d'environ  $10^8 \text{ cm}^{-3}$ . Nous décrirons, dans le chapitre 4, une méthode afin de mesurer précisément la densité du gaz d'atomes de Rydberg par l'utilisation de transition Landau-Zener (détaillée dans ce chapitre) entre des états de paires d'atomes de Rydberg, tirant ainsi parti d'un processus à deux corps, dépendant de la densité du gaz atomique. L'estimation de la densité, par mesure de fluorescence induite sur les atomes de sodium dans l'état fondamental sera détaillée dans la partie 4.4.1 du chapitre 4.

## 3.2.2 Simulation : transition $ns \ ns - np \ (n - 1)p$

### 3.2.2.1 Dépendance avec le champ électrique

Dans cette partie, nous approximerons l'interaction dipôle-dipôle et nous ne tiendrons pas compte de la structure fine des états de paire considérés. Nous nous intéresserons plus particulièrement à la dépendance de la probabilité Landau-Zener avec le champ électrique. Plus particulièrement, il s'agit de la dérivée temporelle du champ électrique au champ de résonance qui est significative dans la probabilité de passage adiabatique à travers le croisement évité. On considère la probabilité de passage adiabatique en fonction du paramètre distance interatomique  $R$ , donnée par les équations 3.14 et 3.15.

Le paramètre  $R_0$  du modèle, qui peut-être vu comme une distance interatomique de coupure pour la probabilité de passage adiabatique (dans l'approximation marche), contient la dérivée temporelle du champ électrique. La valeur de la dérivée du champ électrique est un contrôle expérimental du paramètre  $R_0$ .

Les moments dipolaires de transition à 1 atome peuvent être approximatés par la formule suivante [Gallagher et al., 1982] :

$$\mu_{ns,np} \approx \mu_{ns,(n-1)p} \approx 0.6n^{*2} \quad (3.16)$$

où  $n_s^*$  est le nombre quantique principal effectif des états  $s$  (pour le sodium  $n_s^* = n - 1.35$ ). Considérons les états électroniques de  $n = 48$ , pour la transition :  $|ns0, ns0\rangle - |np0, (n - 1)p0\rangle$ . On peut alors représenter la probabilité de passage adiabatique  $P_{LZ}$ , voir figure 3.3, en fonction de la distance interatomique et de la dérivée du champ électrique au champ de résonance.

Cette représentation nous renseigne sur la gamme de variation en champ électrique, et de fait, sur les distances interatomiques mis en jeu lors d'un passage adiabatique pour le système de paire d'atomes de Rydberg couplés par l'interaction dipôle-dipôle. Nous avons estimé la densité d'atomes de Rydberg de l'ordre de  $10^8 \text{ cm}^{-3}$ . À cette densité, les distances interatomiques sont de quelques micromètres. Nous pouvons conclure que nous devons appliquer des taux de variation de champ électrique de l'ordre de quelques  $\text{V.cm}^{-1}.\mu\text{s}^{-1}$  afin de pouvoir observer un passage adiabatique entre les états de paire atomiques. Ces

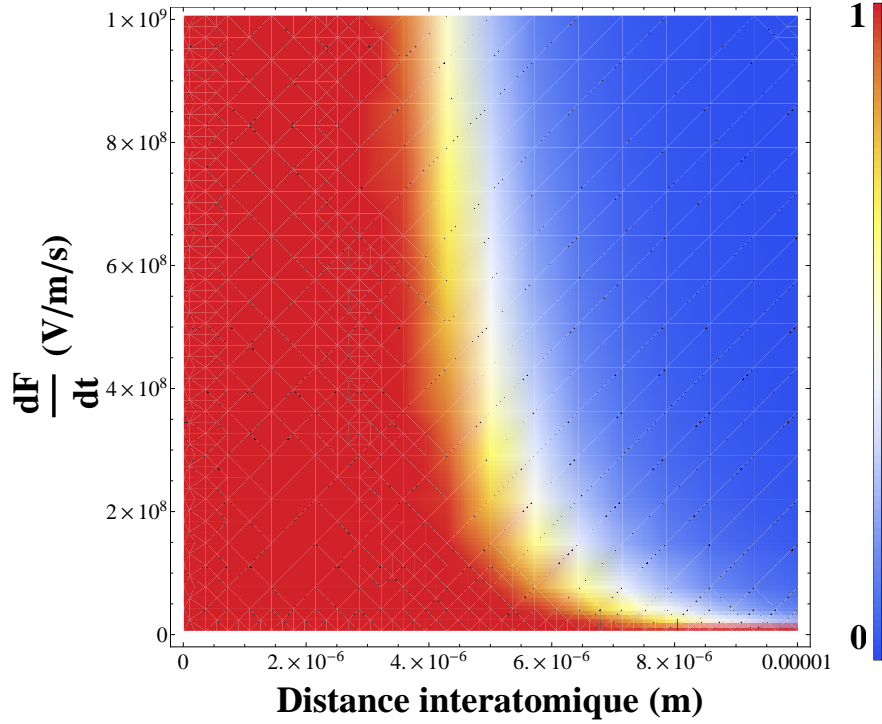


FIGURE 3.3 – Probabilité de passage adiabatique en fonction de la distance interatomique et de la dérivée du champ électrique au croisement dans le cas de paire d’atomes de sodium pour  $n = 48$  et dans l’approximation de la formule 3.16.

paramètres semblent accessibles, pour le contrôle de la variation temporelle du champ électrique, ainsi qu’aux densités du gaz d’atomes de Rydberg dans notre expérience.

### 3.2.2.2 Temps de transition

Tout comme il est utile de connaître la probabilité de transition adiabatique, il est tout aussi important de connaître le temps de transition, c’est à dire le temps pendant lequel la transition a lieu [Vitanov, 1999]. Dans le modèle Landau-Zener, la transition se produit dans un petit intervalle de temps autour du croisement afin de satisfaire aux conditions suivantes : la différence des énergies varie linéairement avec le temps et le couplage est considéré constant autour du croisement. Ce temps de transition est important, par exemple dans le cas de croisements évités multiples, afin de savoir si il est licite de traiter les différents croisements évités séparément. On définit alors le temps de transition, comme le temps pour lequel la probabilité de transition a atteint sa valeur asymptotique :  $P(t \rightarrow \infty)$ . Il est possible de définir le temps de transition dans la base adiabatique :  $\tau_{LZ} \approx \frac{|H_{12}|^2}{|\Delta E_{12}|}$  où  $H_{12}$  est l’interaction entre les états de paire et  $\Delta E_{12}$  est la variation temporelle de la différence des énergies. On peut reformuler le temps de transition avec des quantités utiles dans notre cas, la distance interatomique et la dérivée temporelle du champ électrique :

$$\tau_{LZ} \approx \frac{(0.6\mu_{at})^2 n^{*4}}{4\pi\epsilon_0 R^3 |\mu_{1/2}(F_r)| \left| \frac{dF}{dt} \right|} \quad (3.17)$$

En considérant les conditions suivantes :  $R = 5 \mu\text{m}$ ,  $n = 48$  et  $\frac{dF}{dt} = 10^8 \text{ V.m}^{-1}.\text{s}^{-1}$ , on trouve  $\tau_{LZ} \approx 5 \text{ ns}$ . La connaissance du temps de transition est cruciale ici. Etant donné le régime de température du jet supersonique des atomes de Rydberg, nous voulons connaître la variation de la distance interatomique pendant le temps de transition, afin de savoir si l'on peut considérer les atomes "gelés" durant la transition.

La température la plus chaude du jet est celle où il ne s'opère aucune sélection en classe de vitesses par les lasers d'excitation, donc dans le plan transverse au jet, et transverse à la direction de propagation des lasers. Si  $T_z = 1 \text{ K}$ , alors  $\Delta v_{rel} \approx 20 \text{ m.s}^{-1}$ . Pendant le temps de transition Landau-Zener, les atomes d'une paire se seront déplacés l'un de l'autre d'une distance :  $\Delta R_{LZ} = \Delta v_{rel} \tau_{LZ} \approx 100 \text{ nm}$ . Il faut comparer cette distance aux distances interatomiques typiques du jet supersonique. La distance interatomique moyenne peut-être estimée par le rayon de Wigner-Seitz. Le rayon de Wigner-Seitz  $a_\eta$  est le rayon d'une sphère dont le volume est le volume par particule du système, ie l'inverse de la densité  $\eta$ . Il est défini par :  $\frac{4\pi}{3} a_\eta^3 = \eta^{-1}$ . Nous trouvons une distance interatomique moyenne de plusieurs  $\mu\text{m}$  pour les densités accessibles dans l'expérience. On a bien  $\Delta R_{LZ}$  négligeable par rapport aux distances interatomiques typiques :  $\Delta R_{LZ} \ll a_\eta$ . Nous pouvons donc conclure que l'on peut considérer le gaz de Rydberg gelé au cours du passage adiabatique considérant l'interaction dipôle-dipôle entre deux atomes de Rydberg pour ces conditions. En d'autres termes, un atome conservera son "partenaire d'interaction" lors du passage adiabatique à travers le croisement évité.

### 3.2.2.3 Passage adiabatique à $R$ constant

En reprenant les énergies adiabatiques 3.1 et 3.2, on peut représenter les deux surfaces en fonction du paramètre distance interatomique et du paramètre champ électrique, voir figure 3.4.

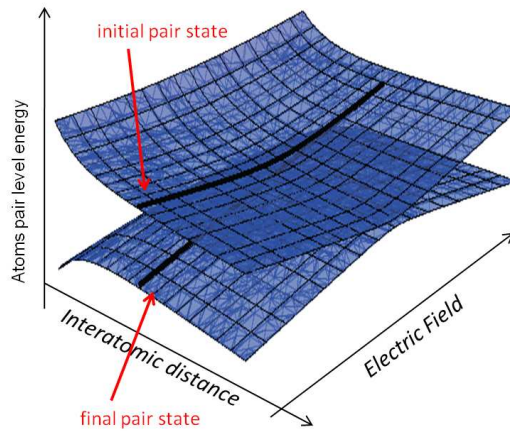


FIGURE 3.4 – États adiabatiques de paire d'atomes de Rydberg couplés par l'interaction dipôle-dipôle en fonction du champ électrique et de la distance interatomique.

La différence en énergie entre les deux surfaces adiabatiques peut donc être contrôlée

par la valeur du champ électrique, et nous avons vu dans la section précédente (3.2.2.1) que le mouvement relatif des atomes, représenté par le tracé noir en fonction de la distance interatomique, est négligeable par rapport aux distances interatomiques des paires d'atomes pendant le temps de transition. De plus, il est important de conserver l'état adiabatique de la paire après le passage adiabatique. Ceci peut être réalisé en éteignant rapidement le champ électrique ressenti par les atomes, avant leur détection. En éteignant le champ électrique, les états de paire vont alors croiser une deuxième fois le champ de résonance, si la redescente en champ électrique est suffisamment rapide, le deuxième passage est adiabatique, l'état adiabatique de paire est conservé.

### 3.2.3 Montage Expérimental

Partant du jet supersonique d'atomes de sodium dans l'état fondamental (détaillé au chapitre 2), le dispositif expérimental est constitué de quatre plaques cylindriques en cuivre (P1-P4) espacées de 10.0 mm l'une de l'autre, possédant une ouverture de 3 mm en leurs centres, au travers desquels les atomes de sodium passent. Les atomes de sodium sont alors excités dans un état de Rydberg, bien défini, par une excitation laser résonnante à deux photons :  $3S_{1/2} \rightarrow 4P_{3/2} \rightarrow ns_{1/2}$ . Entre P2 et P3, le jet atomique traverse à angle droit le laser UV et le laser infrarouge (lasers contrapropageants). Les plaques P2 et P3 sont aussi utilisées pour appliquer un champ électrique aux atomes de Rydberg, éventuellement dépendant du temps, pendant ou juste après l'excitation. Ensuite, les plaques P3 et P4 sont dédiées à l'ionisation des atomes de Rydberg par la technique d'ionisation par champ électrique pulsé. Les ions ainsi formés, sont alors accélérés en direction des galettes de microcanaux (MCP) qui se situent 8 cm après P4.

#### 3.2.3.1 Champ électrique homogène

Le champ électrique nous permet de contrôler la différence en énergie entre les deux états de paire. Le nuage d'atomes possédant une extension transverse, il est donc impératif de connaître l'allure du champ le long de l'axe de propagation du jet, ainsi que suivant l'axe transverse, afin d'évaluer les inhomogénéités de champ électrique ressenties par les différents atomes du nuage. À l'aide du logiciel *Simion*, nous pouvons modéliser le montage expérimental constitué des quatre plaques et ainsi calculer le champ électrique ressenti effectivement par les atomes tout au long de leurs vols à travers du dispositif. Le système possédant la symétrie cylindrique, nous représentons le champ électrique dans le demi-plan ( $Ozx$ ). ( $Oz$ ) est la direction de propagation du jet et ( $Ox$ ) est un axe transverse au jet. La figure 3.5 représente l'amplitude du champ électrique en fonction des dimensions  $z$  et  $x$  pour un potentiel de 2 V sur P2 (ordre de grandeur des potentiels utiles pour l'expérience), et avec P1, P3 et P4 au potentiel nul.

Effectivement, au passage de P2 (situé à  $z = 0$  mm), le champ électrique s'annule puisque le vecteur champ électrique change de sens. Nous pouvons estimer que de part et d'autres de chaque plaque, sur une extension de 2mm, l'inhomogénéité de champ électrique est supérieure à 10%. Par contre, au milieu de deux plaques, sur une extension de 6 mm, le champ électrique est bien défini et l'inhomogénéité n'est plus que de 0.6%. Due à la géométrie du dispositif, le champ électrique n'est pas purement longitudinal mais possède une composante transverse. Cette composante est bien nulle exactement au



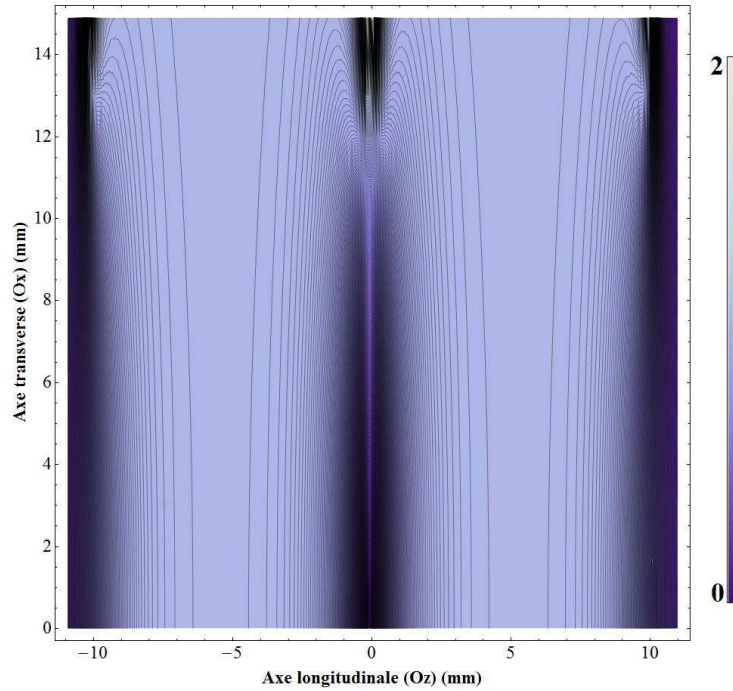


FIGURE 3.5 – Module du champ électrique, en V/cm, dans le demi-plan (Ozx) pour un potentiel de 2 V sur P2, et P1, P3, P4 au potentiel nul. On représente la région entre P1 et P3 centrée sur P2 ( $z = 0$  mm).

milieu de deux plaques et tout le long de l'axe transverse. La situation empire au niveau du trou des plaques où la composante transverse atteint environ 10% du champ total, à 2 mm seulement du centre du trou. Ces inhomogénéités de champ électrique peuvent être réduites en réduisant de moitié la taille du trou des plaques (sans réduire trop fortement l'intensité du signal).

### 3.2.3.2 Ecrantage des MCP

Un autre problème rencontré concerne le haut potentiel électrique appliqué aux bornes du détecteur (MCP). En effet, les MCP se trouvent non loin du dispositif des 4 plaques, à environ 8 cm dans l'axe. La tension appliquée sur la face avant des MCP est comprise entre -2 kV et -3 kV, et nous voulons contrôler le champ électrique entre les plaques avec une précision de  $\approx 10$  mV). Il est possible de modéliser sous *Simion* le dispositif des 4 plaques, un élément de support (l'hélice), ainsi que la face avant des MCP. Les MCP sont entourées d'un cylindre servant à écranter les différents étages des MCP.

Pour un potentiel de -3 kV sur la face avant des MCP, il s'avère que le champ électrique généré par les MCP pénètre aux milieux des plaques, sur le trajet des atomes lors de l'application des champs électriques. Ce champ électrique de biais est de quelques 10  $\text{mV}\cdot\text{cm}^{-1}$  entre les plaques et atteint plusieurs 100  $\text{mV}\cdot\text{cm}^{-1}$  autour du dispositif. Pour éviter cela, une structure supplémentaire cylindrique a été ajoutée afin d'écranter les MCP et d'éviter tout champ électrique de biais dans le dispositif. Cette structure supplémentaire est constituée d'un disque métallique venant s'insérer dans l'hélice, et d'un cylindre, s'adaptant au disque métallique. Le dispositif complet : les quatre plaques, le cylindre, les MCP et les éléments de support, est représenté sur la figure 3.6. L'ajout de cette structure

a permis la non pénétration des lignes de champ électrique au centre du dispositif expérimental, dans le but de contrôler finement le champ électrique ressenti par les atomes lors de leurs passages entre les plaques.

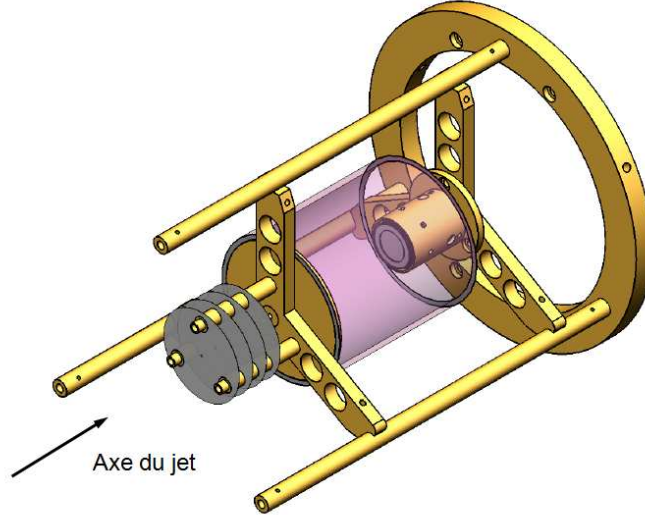


FIGURE 3.6 – Représentation du dispositif expérimental contenu dans la chambre expérience. Il est constitué, dans le sens du jet, des quatre plaques (en gris), d'un cylindre permettant d'écranter les MCP (représenté en transparence, en violet). Enfin, les MCP sont montées sur l'hélice de fond.

### 3.2.3.3 Pulse Landau-Zener

La gamme de variation en champ électrique devant être appliquée pour pouvoir accomplir un changement d'état de paire (transition Landau-Zener) est de quelques  $\text{V}\cdot\text{cm}^{-1}\cdot\mu\text{s}^{-1}$ . Les atomes de Rydberg doivent ressentir une rampe de champ électrique pour ces taux de variation. Pour ce faire, nous utilisons un pulse droit (un TTL généré par un générateur de délai de marque *Stanford*, modèle DG 535) dont le niveau haut est contrôlé au mV, suivi d'un circuit RC.

La partie gauche de la figure 3.7 représente le croisement évité dans le cas  $n = 48$  (à distance interatomique constante, ie à couplage constant). On note  $F_{48}$  le champ de résonance, c'est à dire le champ électrique pour lequel les courbes diabatiques se croisent. La partie droite de la figure 3.7 représente l'allure du pulse de champ électrique en fonction du temps, plus précisément en fonction du délai après l'excitation des atomes dans un état de Rydberg. Ce champ électrique dépendant du temps est appliqué entre P2 et P3. La valeur finale du pulse de champ électrique est supérieure ou égale au champ électrique de résonance dans les cas (b) et (c). La dépendance temporelle du champ électrique étant analytique, la dérivée au champ de croisement est connu en fonction de la valeur de la résistance du circuit RC et de la valeur finale de l'exponentiel. Nous pouvons alors faire varier le temps d'application du pulse et la valeur du champ électrique final.

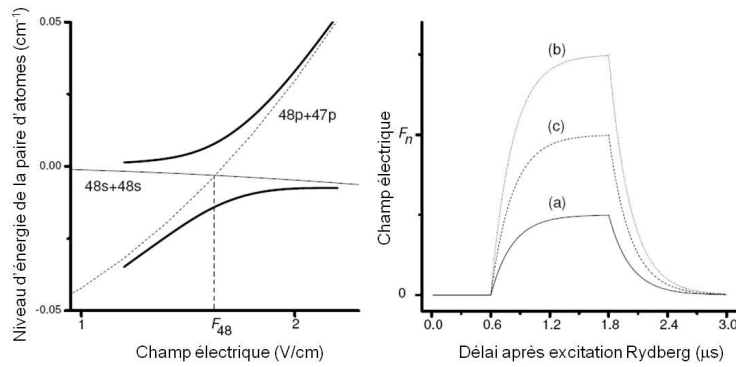


FIGURE 3.7 – À gauche : croisement évité entre les états de paire  $48s,48s$  et  $47p,48p$  couplés par l'interaction dipôle-dipôle en fonction du champ électrique. On note  $F_{48}$  le champ électrique de résonance, au point de croisement des courbes adiabatiques. À droite : dépendance en temps du champ électrique appliqué entre P2 et P3 (pulse Landau-Zener) après l'excitation des atomes dans un état de Rydberg. On distingue trois cas : (a) le champ électrique final atteint est inférieur à  $F_r$ , (b) le champ électrique final est supérieur à  $F_r$ , (c) le champ électrique final est égale à  $F_r$

### 3.2.3.4 Ionisation par champ électrique pulsé

Comme mentionné précédemment, la technique d'ablation laser pour la formation du jet supersonique d'atomes de sodium dans leur état fondamental, ne permet pas de contrôler la stabilité et la quantité de la production d'atomes. Au coup à coup de l'ablation, la quantité d'atomes dans l'état initial  $ns$  fluctue beaucoup. Il est donc important de pouvoir normaliser le signal de l'état final de la transition au coup à coup. Pour cela, la détection doit permettre de détecter l'état  $np$  séparément de l'état  $ns$ . C'est le but de cette étude sur les seuils d'ionisation des états intervenant dans la transition  $48s\ 48s - 48p\ 47p$ .

Nous employons la technique usuelle pour la détection des atomes de Rydberg : l'ionisation par champ électrique pulsé (PFI), décrite dans la partie 2.1.6 du chapitre 2. Les ions ainsi formés sont ensuite accélérés en direction du détecteur, les MCP. Nous devons alors connaître précisément les champs électriques pour lesquels les états mis en jeu lors de la transition s'ionisent.

Pour cela, nous utilisons un switch haute-tension (*Behlke*) dont la constante de temps est de l'ordre de 100 ns, dans ces conditions, c'est à dire pour une variation très rapide du champ électrique, les croisements évités (entres états électroniques à 1 atome) présents sur le chemin d'ionisation seront traversés diabatiquement. Alors, les valeurs de champ électrique pour lesquelles les états sont ionisés suivent la loi classique d'ionisation par champ électrique  $F_c = \frac{1}{16n^{*4}}$  (correspondant au point selle du potentiel coulombien abaissé par un champ électrique statique mais ne tenant pas compte de la variation des états électroniques en champ électrique), et dépendent de la projection de l'état de départ dans la base Stark (ie du  $m$  considéré, base sphérique  $nlm$  projeté sur la base parabolique  $nn_1n_2m$ ). Dans ce cas, les états  $s, p$  du sodium possèdent un seuil d'ionisation bien défini car ils ne sont pas dégénérés en champ nul, contrairement aux états des multiplicités.

Or, pour des pulses dont les temps de montée sont de l'ordre de la  $\mu s$ , la variation du champ électrique étant plus lente, les croisements évités rencontrés sur le chemin de l'ionisation seront traversés plutôt adiabatiquement. Les états  $s, p$  et  $d$  suivent alors les états

Stark jusqu'au point de croisement avec les multiplicités (champs d'Inglis-Teller). Ils rencontreront alors de nombreux croisements évités, et ils conserveront un niveau d'énergie relativement constant. Ils s'ioniseront alors à un champ proche du champ d'ionisation classique. C'est cette dépendance en temps de l'ionisation des états de Rydberg que nous voulons appliquer dans l'expérience. Pour cela, nous rajoutons un circuit RC en sortie du switch haute-tension, dont la constante de temps est de l'ordre de la  $\mu\text{s}$ . La valeur de champ électrique finale pour laquelle les atomes de Rydberg s'ionisent dépend fortement de la variation du champ électrique donc des conditions expérimentales (champ électrique de biais, inhomogénéités). La figure 3.8 représente les seuils d'ionisation expérimentaux de quelques états  $ns$ . Il est clairement possible de définir un seuil d'ionisation pour chacun de ces états, et d'ioniser sélectivement ces différents états. Pour répondre à la problématique de pouvoir détecter l'état final et l'état initial lors d'une transition Landau-Zener, nous mesurons les seuils expérimentaux de l'état  $48p$  et de l'état  $48s$ . Partant de l'état  $4P_{3/2}$ , nous excitons en champ électrique l'état relié adiabaticquement à l'état  $48p$  en champ électrique nul et nous appliquons le pulse d'ionisation. La figure 3.9 représente les seuils d'ionisation expérimentaux de l'état  $48s$  et  $48p$ . On peut alors définir les seuils expérimentaux d'ionisation adiabatique : l'état  $48p$  s'ionise à  $75 \text{ V}\cdot\text{cm}^{-1}$  et l'état  $48s$  s'ionise à  $80 \text{ V}\cdot\text{cm}^{-1}$ . Malheureusement, nous ne pouvons détecter qu'un seul des deux états finaux de la paire, l'état  $47p$  s'ionise, lui, environ au même champ électrique que l'état  $48s$ .

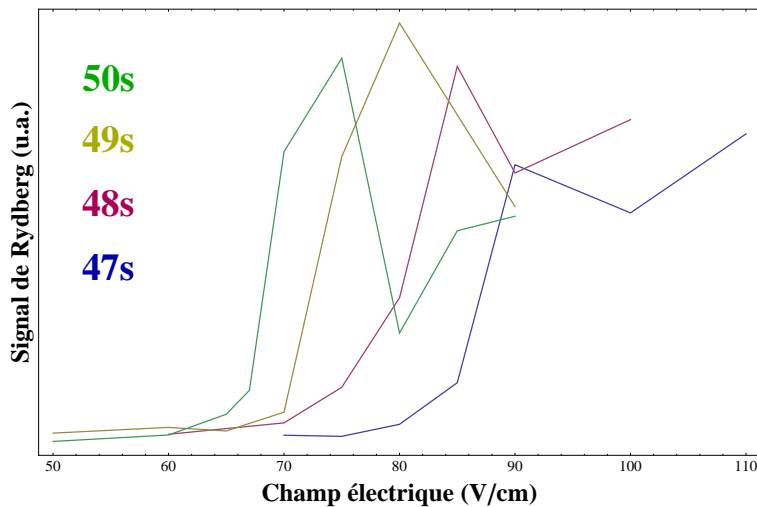


FIGURE 3.8 – Seuils d'ionisation expérimentaux par ionisation par champ électrique pulsé pour les états :  $47s$ ,  $48s$ ,  $49s$  et  $50s$ .

Le pulse PFI est appliqué entre les plaques P3 et P4. L'idée est d'utiliser un potentiel appliqué sur P4 pour compenser le potentiel appliqué sur P3. Ainsi, le champ électrique d'ionisation entre P3 et P4 présente un plateau, se situant entre les 2 seuils d'ionisation des états  $48p$  et  $48s$ , permettant d'ioniser les atomes de Rydberg de l'état  $48p$  plus tôt que les atomes de l'état  $48s$ , et de pouvoir séparer en temps d'arrivée, au niveau du détecteur, les deux paquets d'ions provenant des ces deux états. En ajustant les constantes de temps des deux pulses, les tensions finales et le temps d'application du pulse sur P4, il est possible d'obtenir un champ électrique entre P3 et P4 représenté en vert sur la figure 3.10. Les pulses appliqués sur P3 et P4 de la figure 3.10 ont été mesurés directement sur les plaques du dispositif expérimental.

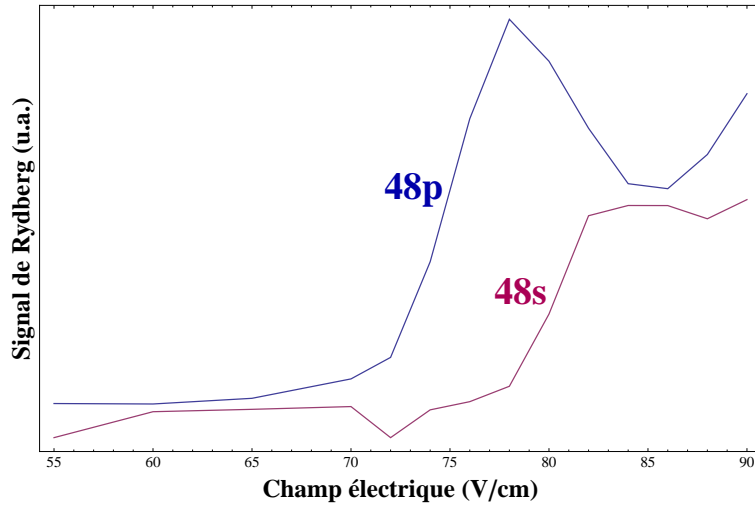


FIGURE 3.9 – Seuils d’ionisation expérimentaux par ionisation par champ électrique pulsé pour les états : 48s et 48p.

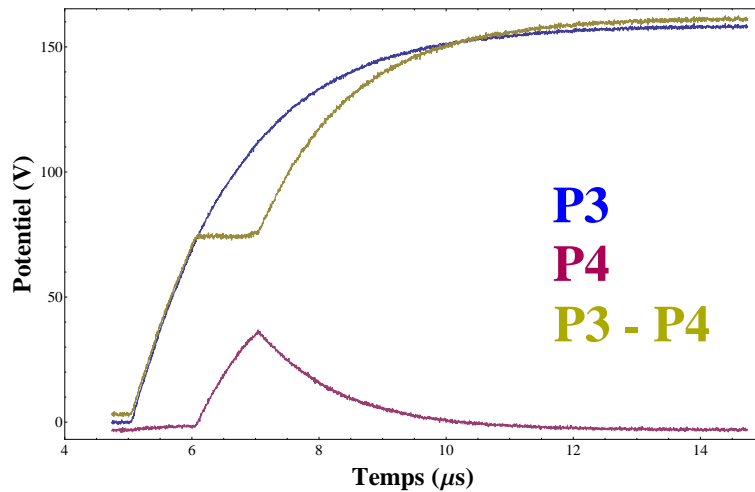


FIGURE 3.10 – Potentiels dépendant du temps appliqués sur P3 et sur P4. Les plaques étant séparées de 1 cm, la différence de potentiel P3-P4 représente le champ électrique, en V/cm, entre ces plaques.

## 3.2.4 Résultats

### 3.2.4.1 Séquence expérimentale

L’excitation optique des atomes de sodium dans un état de Rydberg est réalisée en champ nul au milieu de P2-P3. Puis, toujours dans cette zone, où le champ électrique est bien défini, nous appliquons pendant un temps  $t_p$ , un champ électrique homogène dépendant du temps entre les plaques P2 et P3. Ce pulse de champ électrique est appliqué 600 ns après l’excitation optique afin de s’assurer que le nuage d’atomes de Rydberg ne se trouve plus dans la zone d’excitation laser. En effet, deux iris intersectent les deux faisceaux laser afin de ne sélectionner que la partie centrale du mode transverse et de pouvoir ajuster la taille de la zone d’excitation qui correspond à un cylindre de diamètre  $\approx 1$  mm. Le nuage d’atomes de Rydberg est suffisamment lent pour que les atomes ressentent

à la fois la montée et la redescente en champ nul du pulse qui varie exponentiellement avec une constante de temps  $\tau$ . Puis lorsque les atomes se trouvent entre les plaques P3 et P4, nous appliquons la séquence temporelle d'ionisation par champ électrique pulsé décrite précédemment. Les deux signaux d'ions distincts sont intégrés dans le temps, et permettent alors de normaliser le signal de  $48p$  détecté. La figure 3.11 représente une séquence expérimentale typique pour observer une production d'état  $48p$ , partant de l'état  $48s$ , par passage adiabatique à travers la résonance.

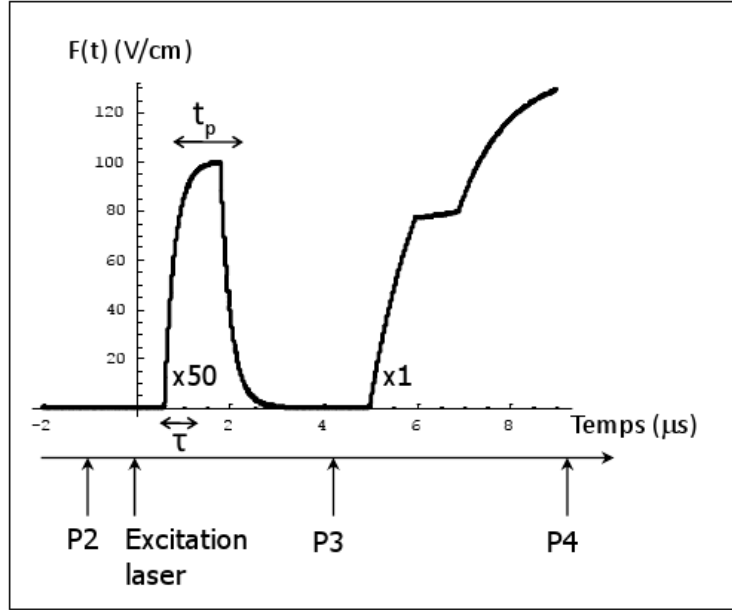


FIGURE 3.11 – Séquence expérimentale des champs électriques dépendant du temps appliqués sur le trajet des atomes de Rydberg à travers du dispositif constitué des quatre plaques. Entre P2 et P3, le pulse de champ électrique est appliqué pour induire le passage adiabatique. Entre P3 et P4, la séquence d'ionisation par champ électrique pulsé est appliquée afin de séparer en temps l'ionisation des états  $48s$  et  $48p$ .

### 3.2.4.2 Résonance pour $n = 43, 48, 53$

Pour les conditions expérimentales suivantes :  $t_p = 1.2 \mu\text{s}$ , et  $\tau = 220 \text{ ns}$ , nous mesurons le signal normalisé d'ions provenant de l'état  $np$  en fonction de la valeur finale du pulse de champ électrique. La figure 3.12 représente le signal normalisé d'ions provenant de l'état  $np$  pour une excitation dans l'état de Rydberg (a) :  $n = 43$ , (b) :  $n = 48$  et (c) :  $n = 53$ . Chaque point représenté résulte de 1000 réalisations d'une expérience, et les barres d'erreur ont été déterminées en effectuant 10 fois une même mesure. Nous pouvons observer, en fonction du champ électrique final, trois régimes distincts :

- si le champ électrique appliqué  $F$  est inférieur au champ de résonance  $F_r$ , nous observons un fond de production d'atomes dans l'état  $np$ . Nous attribuons cette production à l'absorption du rayonnement du corps noir des atomes dans l'état  $ns$ . Cette production est bien indépendante de la valeur du champ électrique. Sur la figure 3.12, nous avons retranché aux points expérimentaux ce signal de production par absorption du rayonnement du corps noir.

- si le champ appliqué est égal au champ de résonance, soit  $F = F_r$ , nous pouvons observer un pic de production d'atomes dans l'état  $np$ , dû aux collisions résonnantes entre deux atomes dans l'état  $ns$ . En effet, dans la gamme de température du jet supersonique, les atomes de Rydberg sont mobiles pendant le temps où ils ressentent le champ de résonance, champ électrique pour lequel l'énergie de l'état de paire  $|ns, ns\rangle$  est égale à l'énergie de l'état de paire  $|np, (n-1)p\rangle$ . Le taux de collisions résonnantes étant important, on observe donc un pic de résonance pour cette valeur de champ électrique. De plus, en prenant en compte la structure fine des états  $np$  et  $(n-1)p$ , il existe en fait quatre croisements évités, que nous ne résolvons pas dans notre expérience pour ces gammes de températures et d'énergies. En effet, dans une vision "sphères dures", on peut définir un temps de collision [Gallagher, 1994] :

$$t_c = \frac{n^2}{v^{\frac{3}{2}}} \quad (3.18)$$

Pour  $n = 48$  et  $v \approx 20$  m/s, on trouve  $t_c \approx 2 \mu\text{s}$ . On attend alors des résonances de quelques MHz de largeur. Or, connaissant les moments dipolaires électriques des états de Rydberg mis en jeu, nous mesurons une seule résonance de  $\approx 100$  MHz de large. Nous attribuons cet élargissement inhomogène aux inhomogénéités de champ électrique.

- si le champ électrique appliqué est supérieur au champ de résonance  $F_r$ , les atomes de Rydberg dans l'état  $ns$  ressentent un champ électrique dépendant du temps qui traverse le champ pour lequel les états  $ns$   $ns - np$   $(n-1)p$  sont dégénérés en énergie. Alors, dans ce cas, nous observons une production significative d'atomes dans l'état  $np$ , et cela indépendamment de la valeur finale du pulse de champ électrique.

Uniquement lorsque le champ électrique appliqué est supérieur ou égal au champ de dégénérescence, nous observons une production de l'état  $np$ . Ce résultat est en faveur d'un passage adiabatique au travers le champ de résonance pour des valeurs de champs électriques supérieures à  $F_r$ .

### 3.2.4.3 Indépendance du temps d'application du champ électrique

Pour se convaincre des observations précédentes, nous mesurons la production d'atomes dans l'état  $np$  en fonction du temps pendant lequel les atomes, initialement dans l'état  $ns$ , ont senti le champ électrique final appliqué. Pour  $n = 48$  et  $\tau = 220$  ns, nous faisons donc varier le temps d'application  $t_p$ . La figure 3.13 représente la dépendance du signal d'ions normalisé, provenant des atomes dans l'état  $48p$ , en fonction du temps d'application du pulse de champ électrique pour les trois valeurs finales différentes de champ électrique correspondant aux trois cas décrit précédemment.

Nous observons que :

- si le champ électrique est inférieur au champ électrique de résonance  $F_r$  (courbe noire : 1.1 V/cm), les atomes dans l'état  $48p$  sont uniquement produit par l'absorption du rayonnement du corps noir des atomes dans l'état  $48s$ , la production est bien indépendante du temps d'application du pulse de champ électrique.
- si le champ électrique appliqué est égal au champ électrique de résonance (courbe rouge : 1.8 V/cm), alors on peut observer que la production d'atomes dans l'état

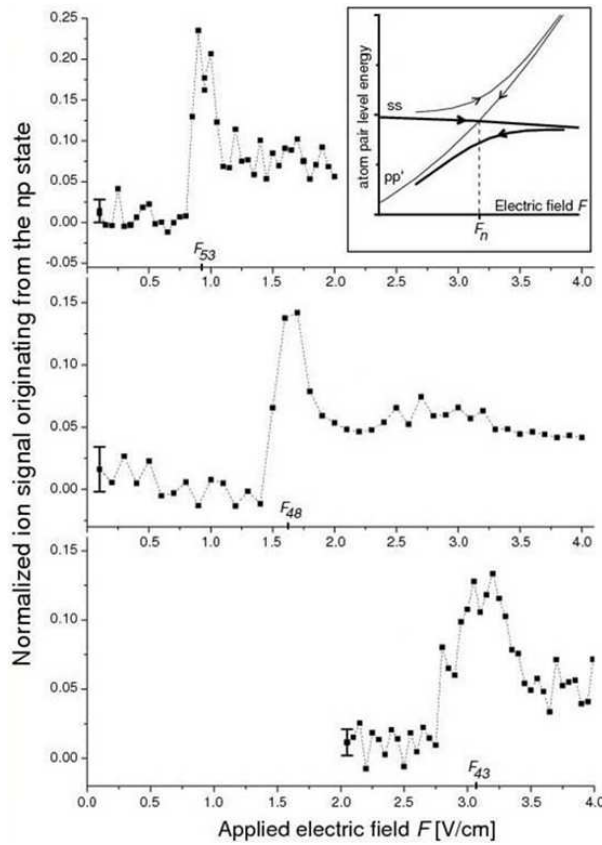


FIGURE 3.12 – Signal d’ions normalisé provenant de l’ionisation de l’état  $np$ , après excitation laser de l’état  $ns$ , en fonction de la valeur finale du pulse de champ électrique dépendant du temps pour : (a)  $n = 53$ , (b)  $n = 48$ , (c)  $n = 43$ . L’encadré en haut à droite représente le chemins suivis pour la production de l’état de paire  $np + (n - 1)p$ .

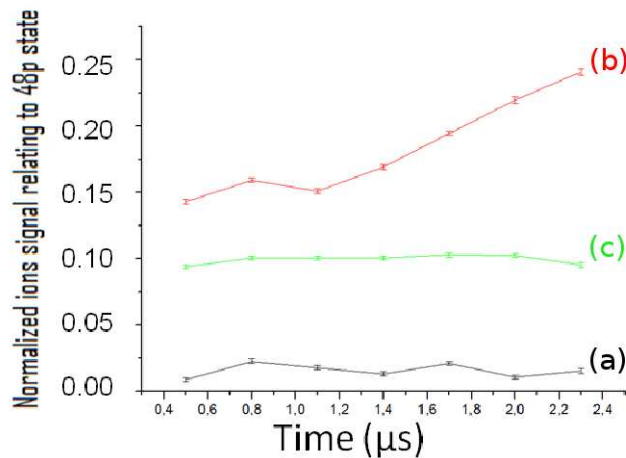


FIGURE 3.13 – Signal d’ions normalisé provenant de l’ionisation des atomes dans l’état  $np$  (pour  $n = 48$ ) en fonction du temps d’application du pulse  $t_p$  pour les trois cas observés : (a)  $F < F_r$ , (b)  $F = F_r$ , (c)  $F > F_r$ .



$48p$  varie linéairement avec le temps d'application du pulse, ce qui est attendu dans le cas de collisions résonnantes.

- si le champ électrique est supérieur à  $F_r$  (courbe verte : 2.3 V/cm), nous observons une production de signal constante avec le temps d'application du pulse.

Dans ce dernier cas, celui d'intérêt, nous pouvons conclure que la production d'atomes dans l'état  $48p$  n'est pas due à des collisions résonnantes mais uniquement au passage adiabatique à travers la résonance.

### 3.2.4.4 Dérivée du champ électrique

Reprenons les formules du modèle Landau-Zener 3.14 et 3.15. Nous avons vu que le taux de variation du champ électrique au champ de résonance est un paramètre important du modèle. Alors, nous faisons varier la constante de temps  $\tau$  du pulse de champ électrique qui est appliqué juste après l'excitation des atomes dans l'état de Rydberg  $48s$ . La valeur finale du pulse de champ est maintenue constante à 2.3 V/cm, c'est à dire 0.5 V/cm au dessus du champ de résonance. Les autres paramètres étant les mêmes que dans les expériences présentées précédemment. Il est aisé de vérifier que, pour une valeur finale de champ fixé et un champ de résonance fixé, la dérivée temporelle du pulse (exponentielle croissante) de champ électrique au champ de résonance est proportionnelle à  $\tau^{-1}$ .

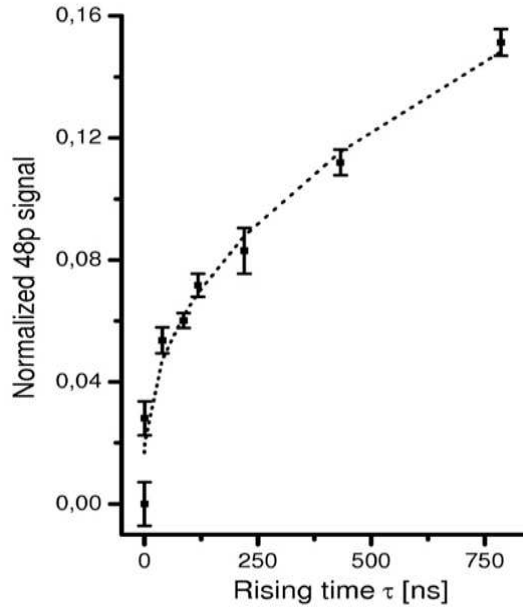


FIGURE 3.14 – Les points expérimentaux correspondent au signal d'ions normalisé provenant de l'ionisation des atomes dans l'état  $np$  en fonction de la constante de temps  $\tau$  du pulse de champ électrique. La courbe en pointillé représente l'ajustement en  $\tau^{1/2}$  des points expérimentaux.

Les résultats expérimentaux sont reportés sur la figure 3.14. Nous avons représenté le signal d'ions normalisé provenant de l'ionisation des atomes dans l'état  $48p$  en fonction de la constante de temps du pulse de champ électrique  $\tau$ . Sachant que le paramètre  $R_0$  varie en  $(\frac{dF}{dt})^{-\frac{1}{6}}$ ,  $R_0$  varie en  $\tau^{\frac{1}{6}}$ . De plus, la fraction d'atomes ayant un plus proche voisin à moins de  $R_0$  varie en  $R_0^3$ . La production d'atomes dans l'état  $48p$  dû à un passage adiabatique

varie alors en  $\tau^{\frac{1}{2}}$ . Cette loi est très bien reproduite expérimentalement, comme le montre l'ajustement des points expérimentaux par la méthode des moindres carrés, représenté en traits pointillés sur la figure 3.14. Suivant le modèle Landau-Zener, nous avons bien reproduit la dépendance de la probabilité de passage adiabatique à travers le croisement évité avec la dépendance en temps du champ électrique, soit avec la vitesse de passage à travers le croisement évité.

### 3.2.4.5 Expérience complémentaire

La génération du pulse Landau-Zener, décrite précédemment, est expérimentalement simple et pratique. Pour de faibles valeurs de tensions, et pour la gamme de variation temporelle utile, il est possible d'utiliser un générateur de fonction arbitraire (*Tektronix AFG3022*). La partie gauche de la figure 3.15 représente le type de pulse que nous générons. Nous pouvons contrôler  $\frac{dV}{dt}$  et le garder constant en faisant varier la tension maximum  $V_{\text{MAX}}$ . À droite de la figure 3.15, nous représentons la production d'atomes dans l'état  $48p$  en fonction du champ électrique ressenti par les atomes de Rydberg (donné par  $V_{\text{MAX}}$ ). Nous observons un seuil à partir du champ électrique de résonance  $F_r$ . Avec ce type de pulse, nous évitons d'observer un pic de résonance dû aux collisions résonantes qui ont lieu lorsque les atomes de Rydberg ressentent le champ électrique de résonance pendant un temps suffisamment long. De plus, nous assurons un unique passage adiabatique appliqué aux états de paire d'atomes.

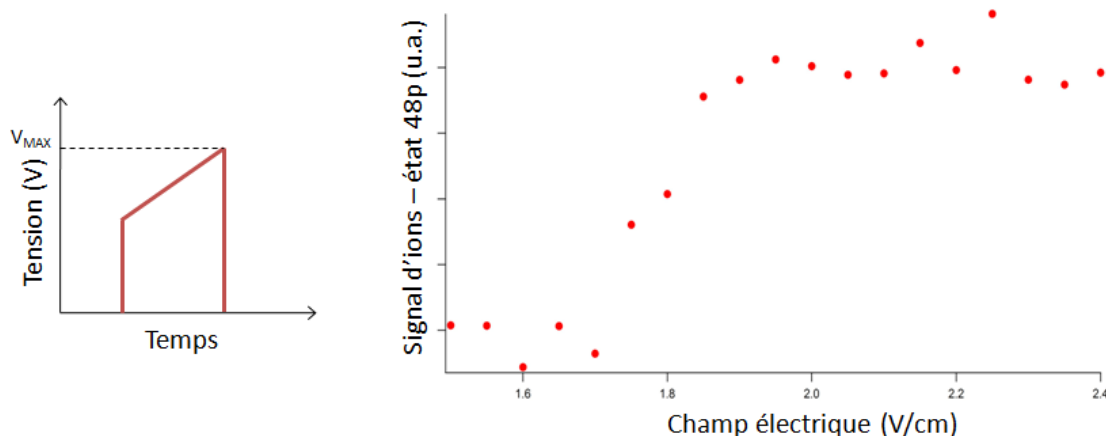


FIGURE 3.15 – À gauche : type de pulse de tension généré, permettant de réaliser un passage adiabatique à travers la résonance en champ électrique  $F_r$ . À droite : production d'atomes dans l'état  $48p$  en fonction du champ électrique.

## 3.2.5 Discussions

### 3.2.5.1 Sur le double passage

Lorsque le pulse de champ électrique permettant le passage adiabatique est généré par un TTL, il faut aussi prendre en compte la redescente en champ électrique nul. Le champ électrique croise donc deux fois le champ de résonance. Pour les expériences présentées précédemment, sauf pour 3.2.4.5, sachant que le temps d'application du pulse

est de l'ordre de la  $\mu\text{s}$ , et compte tenu de la température la plus chaude du jet, entre les 2 passages adiabatiques, deux atomes constituant une paire se seront déplacés de  $\approx 20 \mu\text{m}$ . Pour une paire d'atomes, si les atomes étaient trop loin l'un de l'autre au premier passage, la transition est diabatique, puis au second passage, ils se seront rapprochés et l'interaction est alors suffisamment importante afin qu'ils accomplissent un passage adiabatique. À l'inverse, si les atomes d'une paire étaient suffisamment proche l'un de l'autre pour pouvoir accomplir un passage adiabatique lors du premier passage, ils se seront éloignés suffisamment lors du second passage, et pour cette même paire, le second passage sera diabatique. Dans une bonne approximation, le signal de production d'atomes dans l'état  $np$  est quasiment doublé pour ce type de pulse de champ électrique. Cependant, les paires d'atomes possèdent une distribution vectorielle de vitesses relatives, il est alors possible que certaines d'entre elles accomplissent deux fois un passage adiabatique. Aux densités typiques du jet, une simulation Monte-Carlo permet de montrer que seulement 0.1% du nombre total de paires accompliront deux fois un passage adiabatique lors de la montée et de la redescende du champ électrique. Cette proportion est clairement hors de portée de notre détection.

### 3.2.5.2 Sur le taux de conversion par passage adiabatique

En reprenant les paramètres typiques des expériences précédentes pour  $n = 48$  et  $\tau = 200 \text{ ns}$ , la formule 3.15 donne  $R_0 \approx 5 \mu\text{m}$ . Alors, toutes les paires d'atomes dans l'état  $ns$  ayant une distance interatomique à moins de  $5\mu\text{m}$  accompliront un changement d'état interne :  $ns \rightarrow ns - 48p \rightarrow 47p$ . Pour les densités typiques du jet d'atomes de sodium, il est possible d'évaluer facilement (simulation par tirage aléatoire) que la fraction d'atomes de Rydberg ayant un plus proche voisin à moins de  $5 \mu\text{m}$  est de 5%. Sachant que l'on ne détecte qu'un état sur les deux produits, cela conduit donc à une production d'atomes dans l'état  $48p$  par passage adiabatique à travers le croisement évité de 2.5% de l'état initial  $48s$ . De plus, nous savons que dû au pulse de champ électrique généré, permettant le passage adiabatique, ce taux est doublé. Nous attendons donc une production de 5% pour cette expérience. Cette proportion est bien reproduite expérimentalement, voir figure 3.14. Pour  $n = 48$ , ce taux est de 5%. Pour  $n = 53$ , ce taux est de  $\approx 8\%$ , l'interaction dipôle-dipôle étant plus importante que pour  $n = 48$ , dans ce cas la distance interatomique de coupure,  $R_0$ , est plus grande, et, dans le nuage, plus de paires d'atomes pourront accomplir un passage adiabatique à travers le croisement évité.

### 3.2.5.3 Sur la structure fine des états $np$ et $(n - 1)p$

- Reprenons la formule 3.17 qui évalue le temps de transition lors d'un passage adiabatique à travers un croisement évité. Il vaut  $\tau_{LZ} = 5 \text{ ns}$ . Considérons le temps de montée le plus rapide utilisé dans les expériences, soit  $\tau = 220 \text{ ns}$ . Nous pouvons donc évaluer l'équivalent du temps de transition en champ électrique, on trouve  $\Delta F_{LZ} = 75 \text{ mV/cm}$ . Sachant que deux croisements évités adjacents sont séparés d'environ  $100 \text{ mV/cm}$ , on peut donc bien traiter indépendamment, avec un modèle Landau-Zener, les différents croisements évités de la structure fine des états  $47p$  et  $48p$ .
- De plus, pour  $n = 48$ , connaissant le temps de montée du pulse et les températures des atomes de Rydberg, entre deux croisements évités adjacents, les atomes d'une

paire se seront déplacés de 500 nm l'un de l'autre. Alors, dans une bonne approximation, seulement le premier croisement évité joue un rôle dans les observations effectuées. Rapellons que notre détection par champ électrique pulsé ne permet pas de discriminer les états de  $m_l$  différents pour un même  $l$ .

## Conclusions

Nous avons mis expérimentalement en évidence le passage adiabatique entre des états de paire d'atomes de Rydberg pour des atomes de Rydberg en interaction dipôle-dipôle dans un jet supersonique.

La technique d'ablation laser pour ensemercer les atomes de sodium dans le jet supersonique d'hélium, ne permet pas d'obtenir de haute densité. Cependant, il est possible de trouver un système où l'interaction dipôle-dipôle entre les états de Rydberg choisis n'est pas négligeable et peut être mesurée expérimentalement, ici au moyen de passage adiabatique entre des états de paires d'atomes de Rydberg en champ électrique dont la dégénérescence est levée par l'interaction dipôle-dipôle. Connaissant les densités typiques des atomes de Rydberg et les états électroniques choisis, nous assurons alors que la seule interaction prépondérante est une interaction à deux corps. Ceci est confirmé par l'accord entre les résultats expérimentaux et le modèle Landau-Zener qui exprime la probabilité de passage adiabatique en prenant en compte uniquement un couplage à deux corps. Il est, de plus, possible de trouver une gamme de variation temporelle du champ électrique pour le système choisi, afin d'utiliser le modèle analytique Landau-Zener pour exprimer la probabilité de passage adiabatique à travers le croisement évité. Il est aussi important de considérer les régimes de températures des atomes de Rydberg afin de s'assurer que durant le temps caractéristique d'un passage adiabatique, les atomes de Rydberg peuvent être considérés comme gelés, donc que les distances interatomiques entre les paires d'atomes de Rydberg sont quasi-constantes pendant ce temps de passage.

La fluctuation du signal atomique, inhérente au dispositif expérimental, nous a conduit à développer une séquence de détection permettant la détection sélective d'un des états finaux de la paire et de l'état initial de la transition. Cette fluctuation peut, au premier abord, être une difficulté expérimentale, mais combinée à la normalisation du signal, elle s'avère être très avantageuse, et permet d'effectuer des mesures à différentes densités sans avoir à ajuster le système expérimental. Nous verrons que les expériences présentées dans les chapitres suivants, chapitre 4 et chapitre 5, sont de très bons exemples d'analyse d'un signal expérimental fluctuant.

La formulation de la probabilité de passage adiabatique en fonction de la distance interatomique fait intervenir une distance interatomique de coupure, correspondant au paramètre  $R_0$  dans le modèle Landau-Zener développé ici. La distance interatomique de coupure dépend de la dérivée  $\frac{dF}{dt}$  du champ électrique au croisement des états de paire. La valeur de la variation avec le temps du champ électrique permet un contrôle expérimental de la distance interatomique (par valeur supérieure) des paires sélectionnées qui auront une probabilité de 1, dans une bonne approximation, d'effectuer un passage adiabatique lorsque le champ électrique est balayé à travers le croisement évité. Nous assurons que pour les valeurs de densités du gaz d'atomes de Rydberg, chaque atome n'a qu'un seul plus proche voisin aux distances interatomiques sondées. En mesurant l'efficacité de production d'un des états finaux de la transition, nous possédons donc un accès expérimental à la distribution de plus proche voisin du gaz d'atomes de Rydberg. Nous illustrerons ce principe, en pratique, par la mesure absolue de la densité du gaz d'atome de Rydberg dans le chapitre 4.

De plus, de part le processus commun utilisé pour la production de paires de deux atomes de Rydberg dans les états finaux de la transition, les atomes d'une telle paire doivent être intriqués. Le chapitre 5 est une proposition théorique pour démontrer l'intrication des deux atomes, dans le cadre de la production de paire d'atomes par transition Landau-Zener, basé sur la mesure du bruit de projection quantique lors d'un couplage avec un champ électrique micro-onde résonant.



# Chapitre 4

## Mesure absolue de la densité d'un gaz d'atomes de Rydberg via un processus non collisionnel à deux corps

### Introduction

Lorsque l'on considère des interactions à longue portée entre deux ou plusieurs particules dépendantes de leurs distances et/ou de leurs orientations, la connaissance précise de grandeurs macroscopiques comme la densité et la distribution spatiale du milieu est essentielle mais souffre de grandes incertitudes expérimentales. En physique des plasmas, la connaissance de l'évolution de la densité et de la fonction de distribution spatiale est une partie des outils qui permettent de décrire les caractéristiques du système, en particulier dans le cas de l'évolution en plasma froid d'un gaz froid et dense d'atome de Rydberg [Li et al., 2004, Morrison et al., 2008]. Plus généralement en physique atomique, la mesure directe de la distribution aux plus proches voisins dans un gaz froid et des corrélations spatiales entre les atomes est une donnée importante lors d'expériences sur les atomes de Rydberg en régime de blocage dipolaire, [Robicheaux and Hernández, 2005], dans le cas où les atomes dans l'état fondamental sont aléatoirement distribués dans le volume [Vogt et al., 2007, 2008], ou encore lorsque un ou deux atomes sont adressés uniquement [Urban et al., 2009, Gaëtan et al., 2009], ainsi que dans les expériences d'anti-blocage [Ates et al., 2007, Amthor et al., 2010], ou d'écho [Raitzsch et al., 2008, Cooper Younge and Raithel, 2009]. En effet, nous avons vu dans le chapitre 3 que le processus de transition Landau-Zener dans des paires d'atomes de Rydberg est un moyen de sonder directement l'environnement des atomes et permettrait ainsi de sélectionner les paires d'atomes de Rydberg en fonction de leurs distances interatomiques.

En physique instrumentale, la connaissance de la valeur précise de la densité combinée à la simulation du système de détection (optique ionique, calibration du détecteur) permet une détermination précise et absolue de l'efficacité de détection expérimentale. En effet, la détermination absolue de l'efficacité de détection d'un détecteur (les galettes micro-canaux ou les channeltrons sont couramment utilisés) pour des espèces neutres ou ioniques est un domaine actif de recherche. L'efficacité de détection absolue est définie comme :



$$\epsilon_{\text{abs}} = \frac{\text{nombre d'évènements enregistrés}}{\text{nombre d'évènements émis par la source}}$$

La mesure de l'efficacité absolue de détection est donc une tâche difficile, il est plus facile de déterminer l'efficacité de détection relative (ou intrinsèque) définie par :

$$\epsilon_{\text{rel}} = \frac{\text{nombre d'évènements enregistrés}}{\text{nombre d'évènements parvenant au détecteur}}$$

La caractérisation absolue d'un détecteur permet la détermination des sections efficaces absolues, ou encore des rapports de branchement. Les méthodes généralement utilisées sont basées sur la détection et la mesure de coïncidences entre fragments provenant d'évènements de photo-ionisation [Brehm et al., 1995, Oberheide et al., 1997], ou encore de processus de dissociation [Barat et al., 2000]. Ces mesures sont indispensables dans le but du développement de méthodes et de techniques permettant l'obtention de systèmes de détection fidèles pour des applications futures en information quantique ou en spectroscopie de précision [Henkel et al., 2010].

Les méthodes standard pour déterminer la densité d'un gaz atomique sont des méthodes indirectes, optiques et basés sur l'interaction entre une vapeur atomique et de la lumière résonante [Wu et al., 1986]. Cela détermine donc un nombre de particule basé sur une interaction à un corps. Les méthodes de fluorescence induite par laser sont couramment utilisées en physique des plasmas pour mesurer les densités atomiques dans l'état fondamental avec de très bonnes résolutions spatiales et temporelles [Niemi et al., Krychowiak et al., 2008]. Dans ce chapitre, nous proposons une méthode expérimentale originale permettant de déterminer précisément (à 3% près) la densité d'un gaz d'atomes de Rydberg indépendamment des conditions expérimentales (intensité du laser d'excitation, volume d'excitation, calibration du détecteur, efficacité de détection). La densité peut être directement déterminée en exploitant une interaction à deux corps. Les atomes étant considérés immobiles tout le temps où ils interagissent (justifié par le régime de température subkelvin du jet supersonique d'atomes de Rydberg, détaillé dans la partie 3.2.2.3), nous pouvons alors traiter classiquement les degrés de libertés externes des atomes, permettant de considérer seulement l'interaction dipôle-dipôle entre les atomes de Rydberg. Cette détermination directe est possible par le contrôle expérimental de l'efficacité des transitions adiabatiques entre états de paire d'atomes de Rydberg induites par l'interaction dipôle-dipôle. La méthode employée est la suivante : nous calculons l'efficacité du processus en caractérisant l'interaction entre les états électroniques impliqués. L'efficacité du processus dans un modèle d'interaction aux plus proches voisins dans un gaz homogène est dépendante de la densité atomique. En mesurant la quantité de signal d'états initiaux et d'états "produits" dans un large gamme de signal, nous accédons au coefficient de conversion entre une grandeur mesurable expérimentalement et la densité du gaz. Nous verrons qu'au delà de la détermination précise de la densité du gaz, le modèle nous permettrait d'avoir accès à la distribution de plus proches voisins du gaz d'atomes de Rydberg gelés à l'échelle de l'expérience. Cela paraît en fait compliqué à réaliser expérimentalement. La détermination de la densité n'est alors qu'une caractéristique de la distribution aux plus proches voisins.

Dans la première partie, nous caractériserons l'interaction dipôle-dipôle dans le cas de la transition  $ns\ ns - (n-1)p\ np$  à résonance de Förster. Nous caractériserons le modèle

de transition Landau-Zener en incluant la multiplicité des états électroniques de moment orbital  $l = 1$ . Dans une seconde partie, nous présenterons le modèle analytique utilisé, basé sur une interaction aux plus proches voisins entre atomes de Rydberg, ainsi que le lien vers les grandeurs expérimentales mesurables. Dans une troisième partie, nous présenterons les résultats expérimentaux et les résultats de l'ajustement du modèle aux données expérimentales. Nous analyserons la distribution statistique du signal nous permettant de complètement caractériser notre chaîne de détection, puis nous discuterons de la précision sur la détermination de la densité due au fait que nous étudions un échantillon fini d'atomes. Ensuite, nous comparerons notre détermination de la densité du gaz de Rydberg avec une détermination indirecte mais standard consistant à connaître le volume expérimental et le nombre d'atomes de Rydberg présents dans le volume expérimental. Enfin, nous discuterons la gamme de validité du modèle d'un gaz d'atomes en interaction à deux corps au travers les possibles erreurs systématiques et le rôle d'un troisième corps.

## 4.1 Probabilités Landau-Zener pour une paire d'atomes de Rydberg - traitement complet

### 4.1.1 Interaction dipôle-dipôle : cas de la transition $nsns-(n-1)pnp$

Le spin de l'électron de valence n'intervenant pas dans les processus physiques présentés ici, nous labéliserons les états considérés exprimés dans la base sphérique par les nombres quantiques  $n, l, m$ .

#### 4.1.1.1 Expression du couplage dipôle-dipôle en base sphérique

Le terme d'interaction dipôle-dipôle découle du développement multipolaire dans la base des harmoniques sphériques (introduit au chapitre 3 pour  $i = j = 1$ ), de l'interaction de Coulomb entre les charges de deux atomes (notés 1 et 2) et s'exprime simplement dans le référentiel mobile. L'opérateur de l'interaction dipôle-dipôle dans le développement multipolaire s'exprime par la composante 0 sur l'axe interatomique du produit tensoriel des deux vecteurs  $\vec{r}_1$  et  $\vec{r}_2$ , voir figure 4.1 :

$$H_{dd} = -\frac{\sqrt{6}}{R^3} \{ \vec{r}_1 \otimes \vec{r}_2 \}_{20, \text{mobile}} \quad (4.1)$$

Nous voulons exprimer le terme d'interaction dipôle-dipôle entre états de Rydberg soumis à un champ électrique, nous prenons l'axe du champ électrique comme axe de quantification,  $m$  est le nombre quantique magnétique, correspondant à la projection du moment cinétique sur l'axe du champ électrique. Dans ce référentiel, l'axe interatomique est défini par les angles des coordonnées sphériques :  $\vec{R}(\theta, \phi)$ .

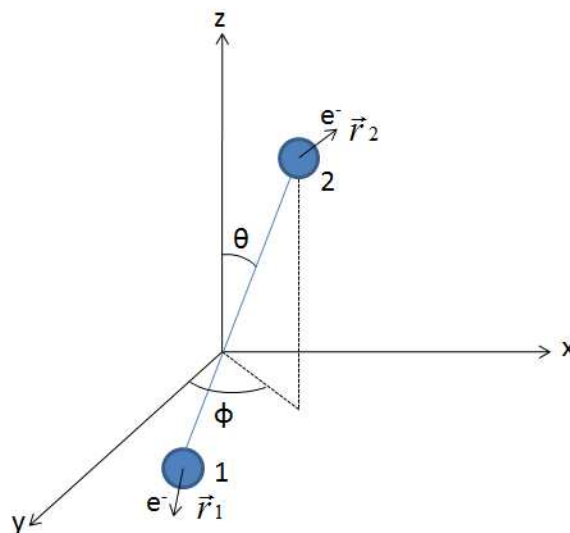


FIGURE 4.1 – Représentation des angles  $\theta$  et  $\phi$  des coordonnées sphériques de l'axe interatomique. Le champ électrique est orienté suivant l'axe (Oz).  $\vec{r}_1$  (resp.  $\vec{r}_2$ ) définit le vecteur décrivant la position de l'électron de valence dans l'atome 1 (resp. atome 2).

Après deux applications du théorème de Wigner-Eckart, nous obtenons l'expression suivante pour le calcul des éléments de matrice de couplage dipôle-dipôle entre les états

de la base sphérique dans le référentiel du laboratoire (les détails sur le développement multipolaire permettant d'exprimer les éléments de matrice sont donnés en annexe de ce manuscrit) :

$$\begin{aligned} \langle n_1 l_1 m_1, n_2 l_2 m_2 | H_{dd} | n_3 l_3 m_3, n_4 l_4 m_4 \rangle &= -\frac{\sqrt{6}}{R^3} \langle n_1 l_1 | \vec{\mu}_1 | n_3 l_3 \rangle \langle n_2 l_2 | \vec{\mu}_2 | n_4 l_4 \rangle \\ &\times \frac{1}{\sqrt{2l_3+1}} \frac{1}{\sqrt{2l_4+1}} \times \sum_{\alpha, \beta}^{0, \pm 1} C_{l_1 m_1 1 \alpha}^{l_3 m_3} C_{1, \alpha, 1, \beta}^{2, \alpha + \beta} C_{l_2 m_2 1, \beta}^{l_4 m_4} D_{\alpha + \beta, 0}^2(\phi, \theta, 0) \end{aligned}$$

L'élément  $\langle n'l' | \vec{\mu}_i | nl \rangle$  s'exprime directement en fonction de l'intégrale radiale par :

$$\langle n'l' | \vec{\mu}_i | nl \rangle = \sqrt{2l+1} C_{l_0 10}^{l' 0} \langle n'l' | er_i | nl \rangle \quad (4.2)$$

Le changement de repère entre l'axe interatomique et le référentiel du laboratoire défini par l'axe de champ électrique, fait apparaître la fonction  $D$  de Wigner (définie par les angles d'Euler) pour les angles des coordonnées sphérique  $\theta$  et  $\phi$ . Les éléments de  $H_{dd}$  en base sphérique contiennent un coefficient dépendant de  $\theta$ , ainsi qu'un terme de phase dépendant de  $\phi$  en fonction des nombres quantiques  $m$  des états considérés. Pour la transition  $ns0 + ns0 - np0 + (n-1)p0$ , on retrouve avec 4.2, la dépendance en  $\theta$  de l'interaction dipôle-dipôle classique :

$$\langle ns0, ns0 | H_{dd} | np0, (n-1)p0 \rangle = -\frac{1}{3} \frac{\mu_1 \mu_2 (1 - 3 \cos^2(\theta))}{R^3} \quad (4.3)$$

où les éléments de matrice réduits sont notés :  $\mu_1 = \langle ns | \mu | np \rangle$  pour l'atome 1 et  $\mu_2 = \langle ns | \mu | (n-1)p \rangle$  pour l'atome 2.

Enfin, nous utilisons les coefficients de transformations entre la base sphérique et la base parabolique (base Stark) pour exprimer le couplage dipôle-dipôle en champ électrique, ie dans la base parabolique [Gallagher, 1994] (équation 6.18).

#### 4.1.1.2 Rôle de la multiplicité des états de moment orbital $l = 1$

Considérons plus particulièrement la transition  $ns0, ns0 - (n-1)pm, npm'$ . La multiplicité des états finaux  $np$  fait apparaître quatre croisements évités. Nous devons considérer les états formant le sous-espace suivant :

$$\begin{aligned} \{ & |ns, 0 - ns, 0 \rangle, |np, 0 - (n-1)p, 0 \rangle, |np, 0 - (n-1)p, 1 \rangle, |np, 0 - (n-1)p, -1 \rangle, \\ & |np, 1 - (n-1)p, 0 \rangle, |np, -1 - (n-1)p, 0 \rangle, |np, 1 - (n-1)p, 1 \rangle, |np, -1 - (n-1)p, 1 \rangle, \\ & |np, 1 - (n-1)p, -1 \rangle, |np, -1 - (n-1)p, -1 \rangle, \\ & |(n-1)p, 0 - np, 0 \rangle, |(n-1)p, 0 - np, 1 \rangle, |(n-1)p, 0 - np, -1 \rangle, \\ & |(n-1)p, 1 - np, 0 \rangle, |(n-1)p, -1 - np, 0 \rangle, |(n-1)p, 1 - np, 1 \rangle, |(n-1)p, -1 - np, 1 \rangle, \\ & |(n-1)p, 1 - np, -1 \rangle, |(n-1)p, -1 - np, -1 \rangle \} \end{aligned}$$

Nous construisons alors les superpositions symétriques et antisymétriques par rapport à l'échange des deux atomes. Les superpositions antisymétriques étant non couplées, il reste neuf états symétriques couplés notés :

$$|m_p, m_{p'} \rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|np, m_p - (n-1)p, m_{p'} \rangle + |(n-1)p, m_{p'} - np, m_p \rangle) \quad (4.4)$$

Alors, nous considérons la base suivante :

$$\{|ns, 0 - ns, 0\rangle, |0, 0\rangle, |1, 0\rangle, |-1, 0\rangle, |0, 1\rangle, |0, -1\rangle, |1, 1\rangle, |-1, 1\rangle, |1, -1\rangle, |-1, -1\rangle\}$$

Les éléments de couplage dipôle-dipôle exprimé dans cette base  $10 \times 10$  sont hors-diagonaux. La matrice de couplage dans cette base s'écrit :

$$\frac{\mu_1 \mu_2}{R^3} \begin{pmatrix} 0 & -(-1 + 3 \cos^2(\theta))/3 & \cos(\theta) \sin(\theta) e^{i\phi} / \sqrt{2} & -\cos(\theta) \sin(\theta) e^{-i\phi} / \sqrt{2} & \cos(\theta) \sin(\theta) e^{i\phi} / \sqrt{2} & & & & & & \\ -(-1 + 3 \cos^2(\theta))/3 & 0 & 0 & 0 & 0 & & & & & & \\ \cos(\theta) \sin(\theta) e^{-i\phi} / \sqrt{2} & 0 & 0 & 0 & 0 & & & & & & \\ -\cos(\theta) \sin(\theta) e^{i\phi} / \sqrt{2} & 0 & 0 & 0 & 0 & & & & & & \\ \cos(\theta) \sin(\theta) e^{-i\phi} / \sqrt{2} & 0 & 0 & 0 & 0 & & & & & & \\ -\cos(\theta) \sin(\theta) e^{i\phi} / \sqrt{2} & 0 & 0 & 0 & 0 & & & & & & \\ -\sin^2(\theta) e^{-2i\phi} / 2 & 0 & 0 & 0 & 0 & & & & & & \\ -(-1 + 3 \cos^2(\theta))/6 & 0 & 0 & 0 & 0 & & & & & & \\ -(-1 + 3 \cos^2(\theta))/6 & 0 & 0 & 0 & 0 & & & & & & \\ -\sin^2(\theta) e^{2i\phi} / 2 & 0 & 0 & 0 & 0 & & & & & & \end{pmatrix} \dots \quad (4.5)$$

$$\begin{pmatrix} -\cos(\theta) \sin(\theta) e^{-i\phi} / \sqrt{2} & -\sin^2(\theta) e^{2i\phi} / 2 & -(-1 + 3 \cos^2(\theta))/6 & -(-1 + 3 \cos^2(\theta))/6 & -\sin^2(\theta) e^{-2i\phi} / 2 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

Il apparait alors neuf termes de couplage dépendant de  $\theta$ . Nous les notons  $f_i(\theta)$ , où l'indice  $i$  réfère aux différents croisements dans l'ordre des états (à partir de l'état  $|0, 0\rangle$ ) ayant servi à construire la matrice  $10 \times 10$ , voir la matrice 4.5. Nous les récapitulons dans le tableau 4.1.

TABLE 4.1 – Tableau récapitulatif des facteurs intervenant dans la matrice de couplage dipôle-dipôle 4.5.

$f_1(\theta)$	$[1/3 (1 - 3 \cos(\theta)^2)]^{\frac{1}{3}}$
$f_2(\theta)$	$[\cos(\theta) \sin(\theta) / \sqrt{2}]^{\frac{1}{3}}$
$f_3(\theta)$	$[-\cos(\theta) \sin(\theta) / \sqrt{2}]^{\frac{1}{3}}$
$f_4(\theta)$	$[\cos(\theta) \sin(\theta) / \sqrt{2}]^{\frac{1}{3}}$
$f_5(\theta)$	$[-\cos(\theta) \sin(\theta) / \sqrt{2}]^{\frac{1}{3}}$
$f_6(\theta)$	$[-1/2 \sin(\theta)^2]^{\frac{1}{3}}$
$f_7(\theta)$	$[1/6 (1 - 3 \cos(\theta)^2)]^{\frac{1}{3}}$
$f_8(\theta)$	$[1/6 (1 - 3 \cos(\theta)^2)]^{\frac{1}{3}}$
$f_9(\theta)$	$[-1/2 \sin(\theta)^2]^{\frac{1}{3}}$

Dans ce sous-espace, la diagonalisation de la matrice d'interaction  $H_{dd}$  donne les énergies propres et états propres du système en fonction du champ électrique. En fonction du champ électrique, l'interaction dipôle-dipôle induit quatre croisements évités dont les

couplages sont dépendants de  $\theta$ . La figure 4.2 représente la série de croisements évités pour la transition  $48s0 + 48s0 - 47pm + 48pm'$  pour  $\theta=0$ . Nous observons alors que dans cette base, il existe des états couplés et non couplés à l'état  $|ns, 0 - ns, 0\rangle$ .

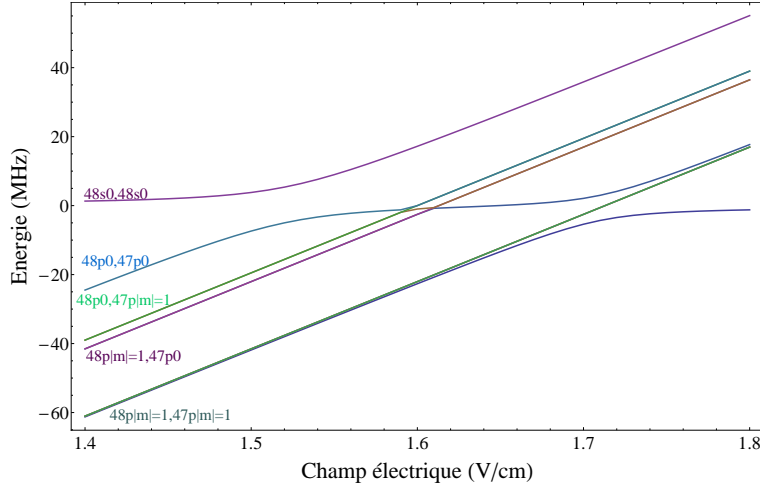


FIGURE 4.2 – Série des croisements évités dans la base formée par les états des multiplicités des états 47p, 48p :  $47pm, 48pm'$  pour  $\theta = 0$ .

Nous traitons les quatre résonances séparément afin de faire apparaître les superpositions d'états couplés et non couplés à l'état  $|ns, 0 - ns, 0\rangle$ .

- Au niveau du premier croisement, l'état est non dégénéré :  $|0, 0\rangle_1$ .
- Le deuxième croisement est dégénéré deux fois :  $|1, 0\rangle$  et  $|-1, 0\rangle$ .
  - la superposition  $|+\rangle_2 = \frac{1}{\sqrt{2}}(e^{i\phi} |1, 0\rangle + e^{-i\phi} |-1, 0\rangle)$  est non couplée avec  $|ns0, ns0\rangle$ .
  - la superposition  $|-\rangle_2 = \frac{1}{\sqrt{2}}(e^{i\phi} |1, 0\rangle - e^{-i\phi} |-1, 0\rangle)$  est couplée.
- Le troisième croisement est dégénéré deux fois :  $|0, 1\rangle$  et  $|0, -1\rangle$ 
  - la superposition  $|+\rangle_3 = \frac{1}{\sqrt{2}}(e^{i\phi} |0, 1\rangle + e^{-i\phi} |0, -1\rangle)$  est non couplée avec  $|ns0, ns0\rangle$ .
  - la superposition  $|-\rangle_3 = \frac{1}{\sqrt{2}}(e^{i\phi} |0, 1\rangle - e^{-i\phi} |0, -1\rangle)$  est couplée.
- Le quatrième croisement est dégénéré quatre fois :  $|1, 1\rangle, |-1, -1\rangle, |1, -1\rangle$  et  $|-1, 1\rangle$ 
  - la superposition

$$|-\rangle_4 = \frac{1}{\mathcal{A}} \left[ (-\sin^2(\theta)) \frac{1}{\sqrt{2}} (e^{2i\phi} |1, 1\rangle + e^{-2i\phi} |-1, -1\rangle) - \frac{-(-1 + 3\cos^2(\theta))}{3} \frac{1}{\sqrt{2}} (|1, -1\rangle + |-1, 1\rangle) \right]$$

est non couplée avec  $|ns0, ns0\rangle$ .

– la superposition

$$|+\rangle_4 = \frac{1}{\mathcal{A}} \left[ (-\sin^2(\theta)) \frac{1}{\sqrt{2}} \left( e^{2i\phi} |1, 1\rangle + e^{-2i\phi} |-1, -1\rangle \right) + \frac{-(-1 + 3\cos^2(\theta))}{3} \frac{1}{\sqrt{2}} (|1, -1\rangle + |-1, 1\rangle) \right]$$

est couplée.

avec  $\mathcal{A}$  le facteur de normalisation du vecteur d'état :

$$\mathcal{A}^2 = \frac{1}{9} |1 - 3\cos^2(\theta)|^2 + |\sin(\theta)|^4 \quad (4.6)$$

À partir des neuf superpositions symétriques, on peut former les quatre états couplés et quatre états noirs qui dépendent de l'angle  $\phi$ . Les éléments de couplage dépendent eux de  $\theta$ . Dans le sous espace :  $\{|ns0ns0\rangle, |00\rangle_1, |-\rangle_2, |-\rangle_3, |+\rangle_4\}$ , la matrice de couplage dipôle-dipôle s'écrit :

$$\frac{\sqrt{2}\mu_1\mu_2}{R^3} \begin{pmatrix} 0 & -(-1 + 3\cos^2(\theta))/3 & \cos(\theta)\sin(\theta) & \cos(\theta)\sin(\theta) & \left[ \frac{-(-1 + 3\cos^2(\theta))^2}{36} - \sin^4(\theta) \right] / (\sqrt{2}\mathcal{A}) \\ -(-1 + 3\cos^2(\theta))/3 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \cos(\theta)\sin(\theta) & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \cos(\theta)\sin(\theta) & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \left[ \frac{-(-1 + 3\cos^2(\theta))^2}{36} - \sin^4(\theta) \right] / (\sqrt{2}\mathcal{A}) & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

Dans ce sous-espace, nous faisons apparaître les états couplés. La diagonalisation de la matrice d'interaction  $H_{dd}$ , dans ce sous espace donne les énergies propres et états propres du système en fonction du champ électrique. La figure 4.3 représente la série de croisements évités pour la transition  $48s0 + 48s0 - 47pm + 48pm'$  pour  $\theta = \frac{\pi}{4}$ .

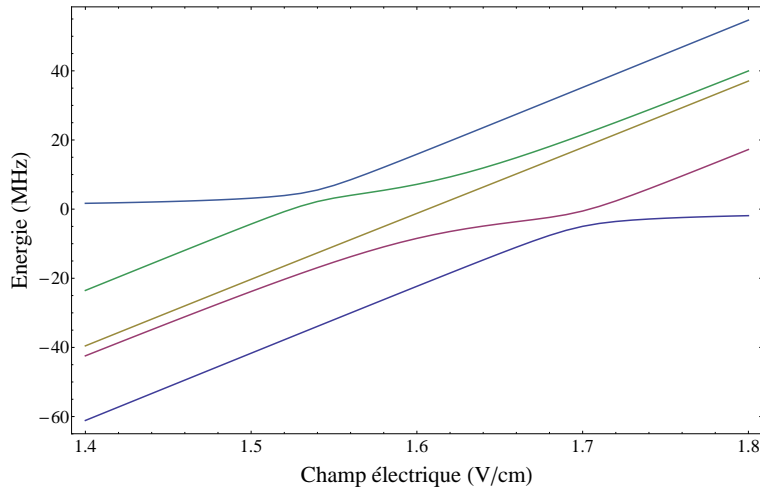


FIGURE 4.3 – Croisements évités dans la base des quatre états couplés pour  $\theta = \frac{\pi}{4}$ .

#### 4.1.2 Expression de la probabilité Landau-Zener

L'inclusion de la multiplicité des états  $np$  et  $(n-1)p$  fait apparaître quatre croisements évités. Nous avons vu que nous pouvons traiter chaque croisement évité séparément par un modèle de passage adiabatique. Expérimentalement, nous les croisons tous.

#### 4.1.2.1 Cas simple d'un croisement évité entre états de $m_l$ différents

Nous reformulons la probabilité de passage adiabatique pour un croisement évité mettant en jeu les états de la multiplicité des états  $np$  et  $(n-1)p$  :

$$P_{ad} = 1 - \exp\left(-\left(\frac{r}{r_0\left(\frac{dF}{dt}, \theta\right)}\right)^{-6}\right) \quad (4.7)$$

avec :

$$\begin{aligned} r_0\left(\frac{dF}{dt}, \theta\right) &= \left[ \frac{2\pi |\langle ns || \mu || np \rangle \langle ns || \mu || (n-1)p \rangle f(\theta)^3}{(4\pi\epsilon_0)^2 \hbar |\Delta\mu| \left|\frac{dF}{dt}\right|} \right]^{1/6} \\ &= r_0\left(\frac{dF}{dt}\right) f(\theta) \end{aligned}$$

Cette expression fait bien apparaître les éléments de matrice réduits  $\langle n'_1 l'_1 || \mu || n_1 l_1 \rangle$  pour l'atome 1,  $\langle n'_2 l'_2 || \mu || n_2 l_2 \rangle$  pour l'atome 2, et également le paramètre  $f(\theta)$  qui contient la dépendance en  $\theta$  considérant les nombres quantiques  $m$  des états de paires. Comme nous l'avons vu au chapitre 3, le paramètre  $r_0\left(\frac{dF}{dt}\right)$  du modèle de passage adiabatique développé est une distance interatomique de coupure. En incluant la multiplicité des états  $np$ , le paramètre  $r_0\left(\frac{dF}{dt}, \theta\right)$  possède donc une dépendance avec  $\theta$  au travers un facteur de forme  $f(\theta)$ . La distance interatomique de coupure est donc anisotrope, et définit lors d'une transition Landau-Zener, un volume sondé anisotrope dépendant des états de la multiplicité considérés.

Pour la transition  $ns0 + ns0 - (n-1)p0 + np0$  en reprenant la formule 4.3, le facteur de forme dans ce cas vaut :  $f(\theta) = ((-1 + 3\cos^2(\theta))/3)^{1/3}$ . La figure 4.4 représente, en fonction des coordonnées  $(r, \theta)$ , la probabilité de passage adiabatique donnée par la formule 4.7, pour  $\frac{dF}{dt} = 1.0 \text{ V.cm}^{-1}.\mu\text{s}^{-1}$ .

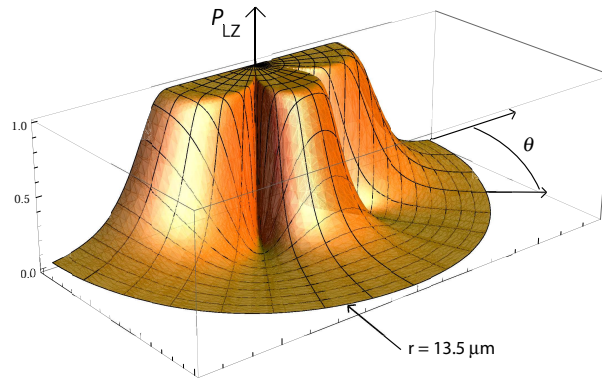


FIGURE 4.4 – Probabilité de passage adiabatique en fonction de  $(r, \theta)$  pour la transition  $48s0 + 48s0 - 48p0 + 47p0$  et pour  $\frac{dF}{dt} = 1.0 \text{ V.cm}^{-1}.\mu\text{s}^{-1}$ .

#### 4.1.2.2 Cas d'une série de croisements indépendants entre états de différents $m_l$

Les croisements évités d'une série étant supposés indépendants, nous sommes les probabilités conditionnelles de passage adiabatique associé à chaque croisement. Nous



notons  $P_{ad,i}$  la probabilité de passage adiabatique associé au croisement évité  $i$ , et  $\bar{P}_{ad,i}$  la probabilité de passage diabatique au travers le croisement évité  $i$ . Nous balayons le champ électrique au travers des quatre résonances et :

$$P_{ad,total} = P_{ad,1} + (\bar{P}_{ad,1} \times P_{ad,2}) + ((\bar{P}_{ad,1} \times \bar{P}_{ad,2}) \times P_{ad,3}) + ((\bar{P}_{ad,1} \times \bar{P}_{ad,2} \times \bar{P}_{ad,3}) \times P_{ad,4}) \quad (4.8)$$

Finalement, la probabilité de passage adiabatique au travers la série de croisements évités des états de la multiplicité,  $P_{ad,total}$ , s'écrit par la formule 4.7 avec le paramètre  $r_{0,total}(\frac{dF}{dt}, \theta)$  suivant :

$$r_{0,total}(\frac{dF}{dt}, \theta) = r_0(\frac{dF}{dt}) \left[ \sum_i f_i(\theta)^6 \right]^{\frac{1}{6}} \quad (4.9)$$

En terme de volume sondé, la puissance sixième des facteurs de forme de chaque croisement évité entre états de la multiplicité s'ajoutent, voir tableau 4.1. Pour une distance interatomique de coupure donnée, les volumes anisotropes s'ajoutent. La figure 4.5 représente les facteurs de formes  $f_i(\theta)^3$  des différents croisements évités en fonction des coordonnées polaires  $(r, \theta)$ .

Dans la vision où  $r_0(\frac{dF}{dt}, \theta)$  est une distance interatomique de coupure anisotrope contenant la somme des facteurs de formes  $f_i(\theta)$ , le volume sondé total lorsque la série de croisement évité est traversée, correspond à un volume sphérique. En effet, la somme de la formule 4.9 est constante et ne dépend plus de  $\theta$  lorsque toute la série de croisements évités est traversée, et :

$$\sum_{i=1}^9 f_i(\theta)^6 = \frac{2}{3} \quad (4.10)$$

Alors, lorsque toute la série de croisements est traversée, le volume total sondé sphérique correspond à  $\approx 93$  % du volume d'une sphère de rayon  $r_0(\frac{dF}{dt})$ .

## 4.2 Modèle d'un ensemble d'atomes en interaction dipôle-dipôle dans le cas d'une transition Landau-Zener

### 4.2.1 Modèle d'Erlang pour l'interaction à deux corps

La vision de deux atomes isolés en interaction est un cas idéal et peu réaliste dans notre expérience. Nous considérons donc un échantillon de  $N$  atomes dans l'espace, où  $N$  est très grand, typiquement quelques milliers d'atomes. Nous faisons l'hypothèse que les atomes ne peuvent interagir seulement par l'interaction dipôle-dipôle, ce qui est réaliste pour les atomes de Rydberg en phase gazeuse dans nos expériences. Il est donc licite de traiter le problème de manière probabiliste en utilisant la probabilité continue  $P_{LZ}$  (théorème Central Limite). Soit  $\vec{r}$  le vecteur des coordonnées sphériques dans l'espace à trois dimensions :  $\vec{r}(r, \theta, \phi)$  représentant le vecteur interatomique. Expérimentalement, nous mesurons l'efficacité du processus de passage adiabatique,  $P_{LZ}$ , moyennée sur tout l'échantillon, c'est à dire moyennée sur toutes les distances interatomiques de l'échantillon. Nous devons donc considérer la distribution des distances interatomiques du nuage

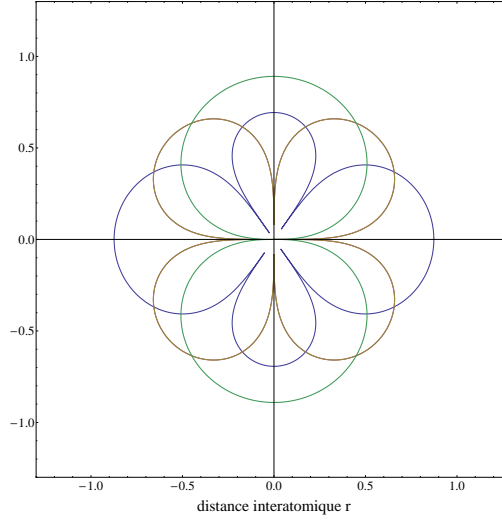


FIGURE 4.5 – Représentation dans le plan défini par  $\phi=0$ , de la dépendance avec l'angle  $\theta$  des facteurs de forme  $f_i(\theta)^3$ . En bleu, il s'agit de la dépendance en  $\frac{1+3\cos(\theta)}{3}$ , correspondant  $\Delta m_{paire} = 0$ ; en marron, la dépendance en  $\frac{\cos(\theta)\sin(\theta)}{\sqrt{2}}$  pour  $|\Delta m_{paire}| = 1$ ; en vert, la dépendance en  $\frac{\sin^2(\theta)}{2}$  pour  $|\Delta m_{paire}| = 2$ . Seule la dépendance en  $\theta$  est représentée, et correspond à un facteur multiplicatif près (contenant le paramètre  $r_0(\frac{dF}{dt})$ ), au volume sondé considérant les états de la multiplicité d'un croisement évité.

d'atomes.

Hertz, en 1909, fut le premier à considérer la distribution aux plus proches voisins dans le cas d'une distribution aléatoire de particules. Ce problème fut repris en 1943 par Chandrasekhar dans l'article [Chandrasekhar, 1943]. Dans le cas d'un milieu homogène (pour la distribution à un corps), on définit une distance interatomique 'moyenne'  $R_d$ , reliée à la densité  $\eta$  par :  $R_d = (\frac{4}{3}\pi\eta)^{-\frac{1}{3}}$ . Pour chaque atome, la densité de probabilité  $dP(r)$ , de trouver un plus proche voisin entre la distance  $r$  et  $r + dr$  autour de l'atome suit la distribution d'Erlang  $f_{Erlg}(r)$  :

$$dP(r) = 4\pi r^2 f_{Erlg}(r) dr = 4\pi r^2 \eta e^{-\frac{4}{3}\pi r^3 \eta} dr \quad (4.11)$$

Les distances interatomiques ont pour densité de probabilité  $f_{Erlg}(r)$ . Nous pouvons alors définir l'espérance de  $r$  (ou valeur moyenne de  $r$   $\langle r \rangle$ ), notée  $E(r)$  :

$$E(r) = \int_0^\infty r dP(r) \quad (4.12)$$

Pour  $\eta = 5 \times 10^7 \text{ cm}^{-3}$ , on trouve  $E(r) \approx 15 \text{ } \mu\text{m}$ .

### 4.2.2 Calcul analytique de l'efficacité du processus Landau-Zener

De la même manière que nous avons défini l'espérance de la distance interatomique 4.12, nous pouvons définir l'espérance de la probabilité Landau-Zener,  $P_{LZ}$ , moyennée sur toutes les distances interatomiques sous la forme :

$$E(P_{LZ})_{\frac{dF}{dt}, \eta} = \int_0^\infty \int_0^\pi \int_0^{2\pi} f_{Erlg}(r) P_{LZ}(\frac{dF}{dt}, r, \theta) r^2 \sin(\theta) dr d\theta d\phi \quad (4.13)$$

La dépendance du paramètre  $r_0$  du modèle avec l'angle des coordonnées sphériques  $\theta$  apparaît explicitement, car nous avons vu que l'interaction dipôle-dipôle est fortement anisotrope. Cette forme intégrale, peu pratique à évaluer, peut être exprimée sous forme analytique grâce à la fonction spéciale  $G$  de Meijer [Jeffrey and Zwillinger, 2000] résultant de l'intégration sur la variable  $r$ . Finalement, lorsque tous les croisements évités sont traversés, nous sommions les quatre probabilités de passage adiabatique correspondant aux quatre croisements évités lorsque que le champ électrique est balayé, et on a :

$$E(P_{LZ})_{\frac{dF}{dt}, \eta} = 1 - \frac{1}{2\sqrt{\pi}} \int_0^\pi \sin(\theta) d\theta G_{03}^{30} \left( \frac{1}{4} \left( a_\eta^{-3} r_0 \left( \frac{dF}{dt} \right)^3 \left[ \sum_i f_i(\theta)^6 \right]^{1/2} \right)^2 \Big|_{0 \frac{1}{2} 1}^- \right) \quad (4.14)$$

où  $a_\eta$  est le rayon de Wigner-Seitz définit par :  $\frac{4\pi}{3} a_\eta^3 = \eta^{-1}$ .

L'expression analytique 4.14 représente en fonction de la densité  $\eta$ , l'efficacité de production de paires d'atomes dans l'état  $(n-1)p + np$  à partir de paires d'atomes dans l'état  $ns + ns$  par le processus de passage adiabatique.

En faisant l'hypothèse que la réponse du système de détection (signal intégré en V.s) est linéaire avec le nombre d'atomes détectés pour un volume d'excitation constant, nous introduisons un facteur de conversion, noté  $g$ . Le facteur  $g$  relie alors le signal d'ions total intégré dans le temps  $S^T$  à la densité du gaz d'atomes de Rydberg  $\eta$  :  $\eta = gS^T$ . Pour la transition  $ns, ns \rightarrow (n-1)p, np$ , nous noterons l'espérance de la probabilité Landau-Zener, moyennée sur toutes les distances interatomique du gaz atomique, de la formule 4.14 par :  $\langle ns, ns \rightarrow (n-1)p, np \rangle_{\eta, \frac{dF}{dt}}$ .

Soit, en considérant un volume expérimental  $V$ , pour une densité d'atomes de Rydberg et pour une valeur de  $\frac{dF}{dt}$  fixées, l'espérance d'obtenir un nombre d'atomes  $N^{np}$  dans l'état  $np$  produit par transition Landau-Zener s'écrit :

$$N^{np}(\eta, \frac{dF}{dt}) = \frac{1}{2} \eta V \langle ns, ns \rightarrow (n-1)p, np \rangle_{\eta, \frac{dF}{dt}} \quad (4.15)$$

Le facteur  $\frac{1}{2}$  vient du fait que nous ne détectons qu'un atome de la paire, nous discriminons l'état  $np$  du reste et que le nombre d'atomes est conservé.

Nous devons alors détecter avec la même efficacité tous les atomes de Rydberg dans les états  $(n-1)p, np$  et  $ns$  mis en jeu, afin de pouvoir relier analytiquement le signal des ions provenant de l'ionisation des états  $np$  au signal d'ions total  $S^T$  provenant de l'ionisation des états  $(n-1)p, np$  et  $ns$ . Avec l'aide de l'équation 4.14 :

$$S^{np} = \frac{1}{2} S^T \langle ns, ns \rightarrow (n-1)p, np \rangle_{g, S^T, \frac{dF}{dt}} \quad (4.16)$$

Nous voyons donc que la relation 4.16 laisse comme seul paramètre libre, le facteur de conversion  $g$ .  $S^T$  est une variable inhérente à l'expérience et correspond à la production d'atomes de sodium dans l'état de Rydberg  $ns$ . Le paramètre  $\frac{dF}{dt}$  est accessible et contrôlable expérimentalement.

## 4.3 Expériences et Résultats du modèle ajusté

### 4.3.1 Mise en oeuvre expérimentale

#### 4.3.1.1 Détection

Nous avons vu dans la partie 4.2.2 que nous devons satisfaire à deux conditions expérimentales sur la détection afin de pouvoir appliquer le modèle présenté. D'une part, nous devons détecter avec la même efficacité les deux paquets d'ions provenant des états de Rydberg  $48p$ , et  $48s$ ,  $47p$ . D'autre part, nous avons supposé la réponse du détecteur linéaire avec le nombre d'atomes (soit avec la densité à volume constant).

Pour la détection des particules chargées tels que les ions de sodium, nous utilisons un assemblage de deux galettes de microcanaux (MCP) de marque *Hamamatsu* de modèle F1551-21S montées en chevron. Les galettes de microcanaux furent utilisées comme détecteur pour la première fois en 1979 par Wiza [Wiza, 1979]. Depuis, elles sont couramment utilisées en physique atomique et moléculaire pour la détection de différents types de particules (ions, neutres, photons, électrons) à condition que les particules possèdent suffisamment d'énergie pour éjecter un électron secondaire (de l'ordre de 100 eV pour des atomes neutres). Comme le montre la figure 4.6, une galette est une matrice de canaux élémentaires en structure de nid d'abeilles. Le diamètre d'un canal peut varier de 5 à typiquement 100  $\mu\text{m}$ . Chaque canal se comporte comme un amplificateur élémentaire. Lorsqu'une particule arrive dans un canal de la face d'entrée des MCP, elle engendre une gerbe d'électrons avec un gain de l'ordre de  $10^6$  à  $10^7$  électrons par particule. La surface interne d'un canal est constituée d'un matériau hautement résistif optimisé pour l'émission d'électrons secondaires. Une différence de potentiels appliquée aux bornes de la galette sert à accélérer le ou les premiers électrons arrachés dus à l'impact d'une particule dans un canal ainsi qu'à accélérer les électrons secondaires. Ce type de détecteur possède certains avantages comme un faible temps de réponse et une bonne résolution spatiale.

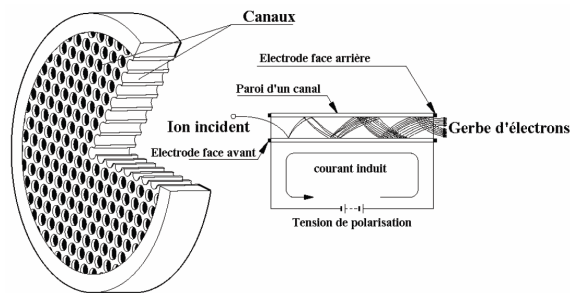


FIGURE 4.6 – À gauche, représentation en coupe d'une galette de micro-canaux. À droite, représentation d'un canal comme amplificateur élémentaire.

Cependant, à partir d'une certaine valeur de tension aux bornes des MCP, le gain diminue avec la tension. Ce phénomène est appelé effet de saturation. Deux processus sont à l'origine de l'effet de saturation. Lorsque l'avalanche électronique devient trop importante, la répulsion électronique s'oppose au champ électrique dans les MCP (saturation par charge d'espace). Le deuxième processus est la saturation par charge des parois. En effet, lorsqu'un courant a parcouru les MCP, les surfaces des canaux se trouvant près de

la cathode de sortie sont chargées positivement à cause du grand nombre d'électrons secondaires émis. Ce phénomène a pour effet, d'une part, de perturber l'intensité du champ électrique induisant une diminution du gain car les électrons sont freinés empêchant le processus d'émission d'électrons secondaires. D'autre part, le courant parcourant la surface des MCP (appelé *strip current*) défini par :  $I_S = V_{MCP}/R_{MCP}$ , vaut typiquement, pour notre type de MCP,  $10\mu A$ . Le *strip current* a pour effet de neutraliser les surfaces des canaux chargés. Dû aux faibles valeurs du *strip current*, ce processus demande du temps. Ce temps nécessaire est appelé temps mort.

Le temps mort pour un canal peut être estimé en modélisant simplement un canal par une capacité composée de deux plaques parallèles [Wiza, 1979], ce modèle donne un temps mort pour chaque canal de  $\approx 10$  ms. Or, une MCP possède  $\approx 10^6$  canaux plus ou moins indépendants les uns des autres, on peut alors définir un temps mort effectif pour l'ensemble des canaux de l'ordre de  $10^{-8}$  s. Ceci est valable à condition qu'un canal ne soit pas sollicité plus d'une fois toutes les environ 10 ms. Dans le cadre de nos expériences, nous simulons par un tirage aléatoire ( $10^6$  canaux et  $10^4$  particules par paquet) les deux paquets d'ions provenant de l'ionisation des états de Rydberg  $47p$  et  $48s, 48p$ . Nous trouvons que 0.2% des particules du deuxième paquet exciteront un canal précédemment excité par le premier paquet de particules.

Concernant l'effet de saturation des MCP, nous présentons sur la figure 4.7 une étude des niveaux des signaux mesurés en fonction de la tension appliquée aux bornes des MCP : les photo-ions, les ions provenant de l'ionisation de l'état  $48p$  et les ions provenant de l'ionisation des états  $48s$  et  $47p$  (dans l'ordre des temps d'arrivée sur le détecteur).

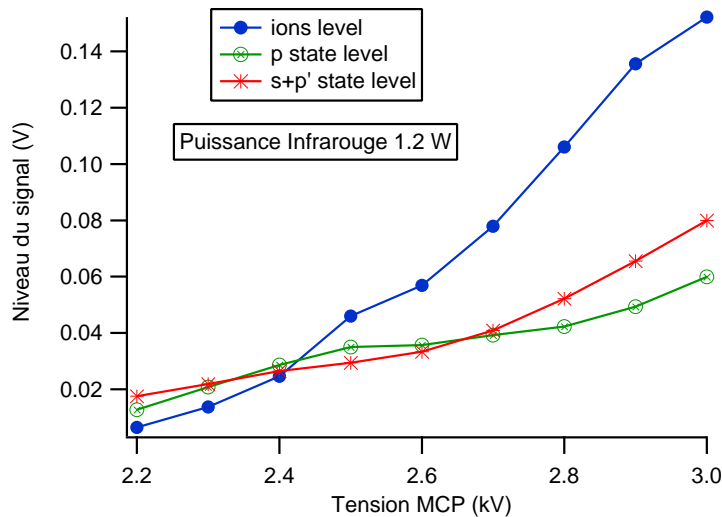


FIGURE 4.7 – Niveaux des signaux mesurés expérimentalement en fonction de la différence de tension appliquée aux bornes des MCP : les photo-ions, les ions provenant de l'ionisation de l'état  $48p$  et les ions provenant de l'ionisation des états  $48s$  et  $47p$ .

Nous choisissons d'utiliser les MCP à faible gain et d'appliquer une différence de tension de 2.3 kV aux bornes. D'une part, un faible gain réduit le temps mort d'un canal, cela assure la même efficacité de détection des deux paquets d'ions qui sont séparés d'environ  $1\mu s$  en temps de vol. D'autre part, autour d'une tension appliquée de 2.3 kV, la réponse du détecteur est linéaire, nous voulons éviter tout effet de saturation.

### 4.3.1.2 Nuages de points

Munis du système de détection présenté précédemment, nous enregistrons l'aire des signaux des ions provenant de l'ionisation des atomes dans l'état  $47p$  et ceux provenant de l'ionisation des atomes dans l'état  $48p$  et  $48s$ . La figure 4.8 représente les nuages de points obtenus lorsqu'on applique ou non le processus de formation des paires  $47p - 48p$  par passage adiabatique au travers la résonance à deux corps. Lorsqu'aucun champ électrique dépendant du temps n'est appliqué, on observe une production d'état  $48p$  linéaire avec le nombre total d'atomes de Rydberg. Une production linéaire est la signature d'un processus à un corps. Nous attribuons cette production à l'absorption du rayonnement du corps noir. Lorsque nous produisons des paires  $48p - 47p$  par processus Landau-Zener, le régime est différent. Les nuages de points de la production d'état  $48p$  en fonction du nombre total d'atomes de Rydberg corrigés de la production due au corps noir, sont non-linéaires. Nous les avons représenté sur la figure 4.9 pour deux vitesses de passage au travers la résonance.

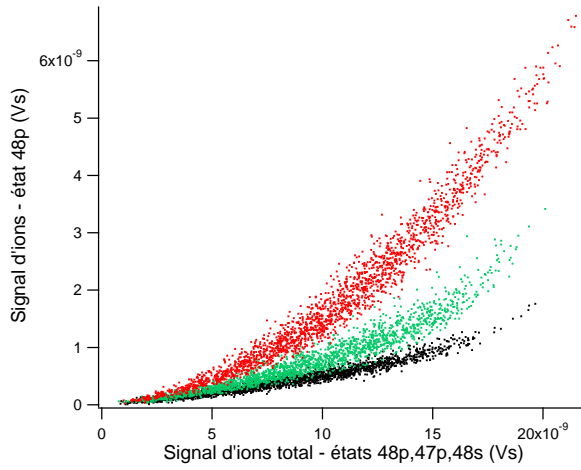


FIGURE 4.8 – Nuages de points expérimentaux (2000 points) observés expérimentalement dus à la dispersion de la quantité de signal d'atomes dans l'état  $48s$ . En noir, aucun champ électrique n'est appliqué. En rouge et en vert, on applique une rampe de champ électrique dépendant du temps :  $\frac{dF}{dt} = 2.0$  V/cm/ $\mu$ s en vert,  $\frac{dF}{dt} = 0.6$  V/cm/ $\mu$ s en rouge.

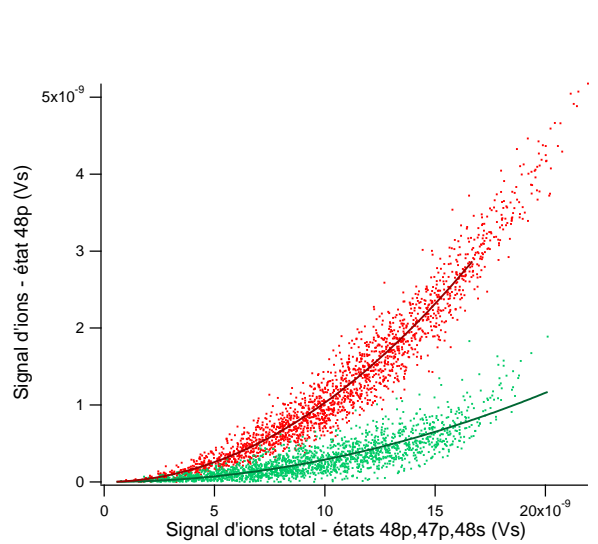


FIGURE 4.9 – Mêmes nuages de points expérimentaux observés corrigés de la production linéaire. On représente l'ajustement de ces points expérimentaux avec un unique paramètre quadratique.

### 4.3.2 Détermination du paramètre $g$ du modèle

Nous voulons reproduire expérimentalement le modèle présenté. Les deux paramètres du modèle sont : le signal total d'ions  $S^T$  provenant de l'ionisation des états  $48s$ ,  $48p$  et  $47p$ , ainsi que la variation temporelle du champ électrique  $\frac{dF}{dt}$  lors du passage adiabatique. La gamme de signal total accessible  $S^T$  est inhérente au dispositif expérimental, elle dépend de l'efficacité d'ensemencement des atomes de sodium par le processus d'ablation laser, ainsi que du bruit en fréquence du laser pulsé UV pour l'excitation des atomes de

sodium dans l'état 48s. La variation temporelle du champ électrique  $\frac{dF}{dt}$  à travers la résonance est contrôlée par un synthétiseur *Tektronix* AFG3022. La figure 4.10 représente plus de 75000 points expérimentaux au coup à coup (un point bleu représente une expérience). Les points expérimentaux correspondent donc au signal d'ions provenant de l'état 48p en fonction du signal total  $S^T$  et de la variation temporelle du champ électrique  $\frac{dF}{dt}$ . Pour chaque valeur de  $\frac{dF}{dt}$ , les nuages de points ont été corrigés de la production d'état 48p par absorption du rayonnement du corps noir.

Nous ajustons les points expérimentaux avec les équations 4.16 et 4.14. Il s'agit d'un ajustement à deux variables ( $S^T$  et  $\frac{dF}{dt}$ ) et un seul paramètre libre  $g$ . Un ajustement par la méthode des moindres carrés donne le meilleur ajustement pour  $g = 4.15 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}/\text{Vs}$  ainsi qu'une déviation standard de  $4 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}/\text{Vs}$ . Nous obtenons par cet ajustement la valeur du  $\chi^2$  réduit de  $0.023 \text{ (nVs)}^2$  correspondant à une estimation du bruit expérimental de  $0.15 \text{ nVs}$ , reproduisant bien la dispersion du signal de production d'état 48p,  $S^{48p}$ . La surface représentée sur la figure 4.10 correspond au modèle ajusté. Les données expérimentales reproduisent très correctement le modèle théorique dans toute la gamme de variation du champ électrique, en effet la déviation standard sur la détermination du paramètre  $g$  est très faible.

Ici, la précision relative sur la détermination du paramètre  $g$  est inférieure à  $\approx 0.1\%$ . Il s'agit de la barre d'erreur sur la détermination de  $g$  ou de la densité  $\eta$ . Cependant la barre d'erreur expérimentale sur la détermination de la densité est dominée par la fluctuation de la réponse du détecteur, soit la fluctuation de l'efficacité de détection ainsi que par le fait que nous étudions un échantillon fini d'atomes (typiquement 10 000 atomes), nous discuterons de la barre d'erreur dans les parties suivantes 4.3.3, 4.3.4.

### 4.3.3 Analyse fluctuation $g$

Le paramètre  $g$  déterminé précédemment représente la valeur moyenne du rapport  $\frac{\eta}{S^T}$ . Cependant, le paramètre  $g$  peut fluctuer à chaque coup d'expérience autour de la valeur moyenne déterminée due à la fluctuation de l'efficacité de détection au coup à coup. Dans cette partie, nous présentons une analyse de la dispersion du signal  $S^{48p}$  des points expérimentaux de la figure 4.10.

Rappelons que le signal total résulte de la somme de l'intégration de deux signaux mesurés  $S^{48p}$  et  $S^{48s+47p}$ , les deux signaux étant séparés d'environ  $1 \mu\text{s}$ . Les bruits de détection respectifs sont donc différents pour les deux signaux. Notons  $g_{48p}$  et  $g_{48s,47p}$  les facteurs de conversion entre respectivement les signaux mesurés et la densité, ces quantités étant reliées aux efficacités de détection coup à coup.  $g_{48p}$  et  $g_{48s,47p}$  sont donc des variables aléatoires indépendantes dont la racine carrée de la moyenne quadratique est notée, respectivement,  $\delta g_{48p}$  et  $\delta g_{48s,47p}$ . On a donc, par différentiation du signal  $S^{48p}$  comme une fonction des variables  $S^T$ ,  $g_{48p}$  et  $g_{47p,48s}$  :

$$dS^{48p} = \frac{\partial S^{48p}}{\partial g_{47p,48s}} dg_{47p,48s} + \frac{\partial S^{48p}}{\partial g_{48p}} dg_{48p} + \frac{\partial S^{48p}}{\partial S^T} dS^T \quad (4.17)$$

Sous les hypothèses suivantes :

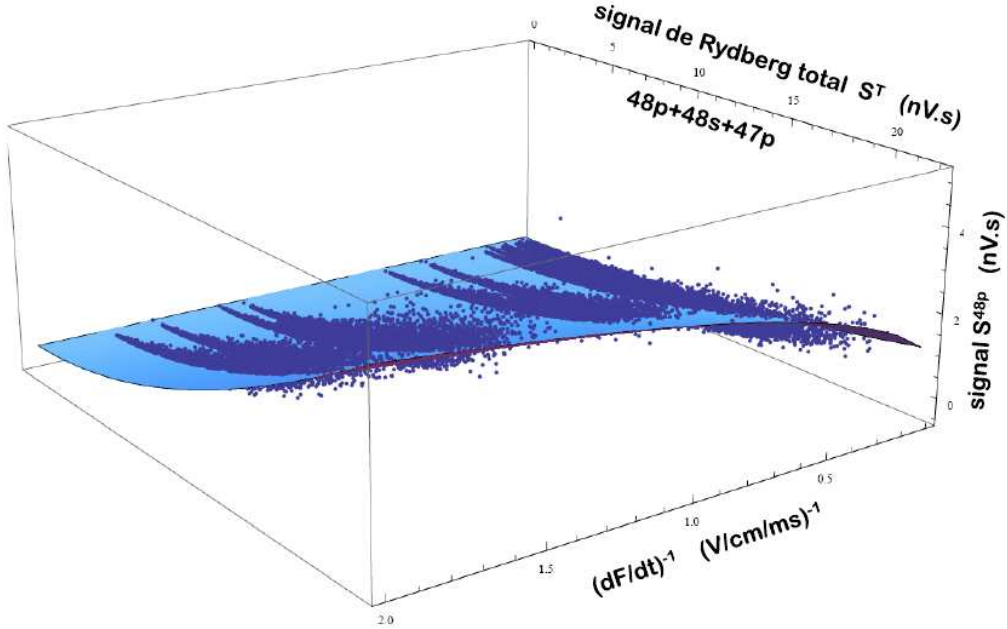


FIGURE 4.10 – Chaque point représente une expérience de production du signal d'état  $48p$ ,  $S^{48p}$ , en fonction du signal total d'ions intégré du gaz de Rydberg  $S^T$  et en fonction de l'inverse de la dérivée en temps du champ électrique appliqué,  $(\frac{dF}{dt})^{-1}$ . La surface représente le meilleur ajustement du modèle donné par l'équation 4.16

– les variables aléatoires  $g_{48p}$  et  $g_{48s,47p}$  sont indépendantes et suivent la loi :

$$\delta g_{48p} \propto \frac{1}{\sqrt{S^{48p}}} \quad (4.18)$$

$$\delta g_{48s,47p} \propto \frac{1}{\sqrt{S^{48s,47p}}} \quad (4.19)$$

– les variables aléatoires  $g_{48p}$  et  $g_{48s,47p}$  ont même valeur moyenne :  $\langle g_{48p} \rangle = \langle g_{48s,47p} \rangle$

Pour  $dS^T \rightarrow 0$ , on peut exprimer la variation  $dS^{48p}$  en fonction de  $\delta g_{48p}$ , ou  $\delta g_{47p,48s}$ , soit en posant :

$$S^{47p,48s} = S^T - S^{48p} \quad (4.20)$$

$$g_T \times S^T = g_{47p,48s} \times S^{47p,48s} + g_{48p} \times S^{48p} \quad (4.21)$$

Nous obtenons les relations suivantes :



$$\delta S^{48p} = \delta g_{48p} \left[ \left( \frac{\partial S^{48p}}{\partial g_{48p}} + \frac{S^{48p}}{S^T} \frac{\partial S^{48p}}{\partial g_T} \right)^2 + \frac{S^{48p}}{S^{47p,48s}} \left( \frac{S^{47p,48s}}{S^T} \frac{\partial S^{48p}}{\partial g_T} \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}} \quad (4.22)$$

$$\delta S^{48p} = \delta g_{47p,48s} \left[ \left( \frac{\partial S^{48p}}{\partial g_{48p}} + \frac{S^{48p}}{S^T} \frac{\partial S^{48p}}{\partial g_T} \right)^2 \left( \frac{S^{47p,48s}}{S^{48p}} \right) + \left( \frac{S^{47p,48s}}{S^{48p}} \frac{\partial S^{48p}}{\partial g_T} \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}} \quad (4.23)$$

Les équations 4.22 et 4.23 relient les fluctuations  $\delta g_{48p}$  et  $\delta g_{47p,48s}$  aux dérivées partielles du signal  $S^{48p}$  :  $\frac{\partial S^{48p}}{\partial g_{48p}}$ ,  $\frac{\partial S^{48p}}{\partial g_T}$ . Le modèle théorique présenté dans la partie 4.2 permet d'exprimer ces dérivées partielles à l'aide de l'équation exprimant l'espérance de la probabilité 4.14 en remplaçant  $\eta$  par  $g_T \times S^T$ . On peut alors écrire l'équation 4.16 en fonction de  $g_T$ ,  $g_{48p}$  et  $S^T$  sous la forme :

$$S^{48p} = \frac{1}{2} \frac{g_T}{g_{48p}} S^T \langle 48s48s \rightarrow 47p48p \rangle_{g, S^T, \frac{dF}{dt}} \quad (4.24)$$

Il reste alors deux inconnues dans les équations 4.22 et 4.23 :  $\delta S^{48p}$  et de  $S^{48p}$ . Une analyse des données expérimentales sur une tranche  $\delta S^{total} \rightarrow 0$  permet enfin d'exprimer les valeurs numériques de la moyenne du signal  $S^{48p}$  sur une tranche notée  $\langle S^{48p} \rangle_{tranche}$  et de la variance du signal expérimental  $\delta S^{48p}$ , comme représentée sur la figure 4.11.

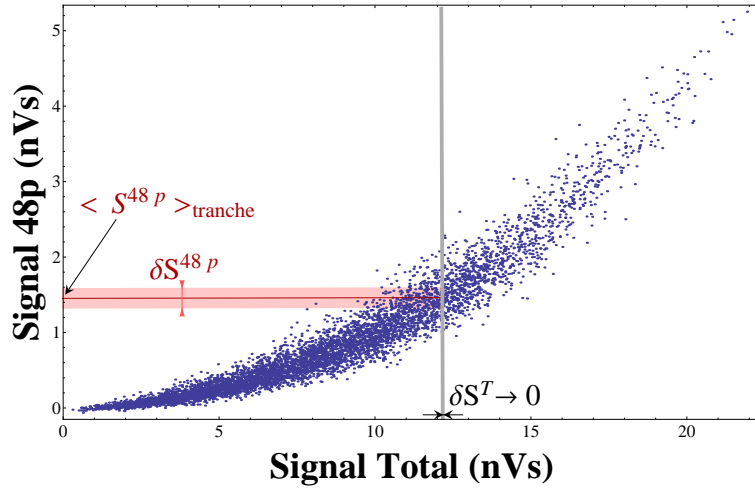


FIGURE 4.11 – Nuage de points expérimentaux typique de production de signal d'état 48p en fonction du signal total pour l'analyse de la moyenne et de la variance de  $S^{48p}$  pour  $\delta S^T \rightarrow 0$

Nous représentons sur la figure 4.12 les fluctuations relatives des facteurs  $g$  :  $\frac{\delta g_{48p}}{g_{48p}}$  en fonction de  $S^{48p}$  et  $\frac{\delta g_{47p,48s}}{g_{47p,48s}}$  en fonction de  $S^{47p,48s}$ . Nous reproduisons bien la loi en inverse de la racine carrée du signal et un ajustement en  $\frac{\alpha}{\sqrt{\text{Signal}}}$  permet de déterminer la valeur numérique pour  $\alpha$ . En prenant en compte les deux fluctuations d'efficacité de détection (à bas signal en fonction de  $S^{48p}$ , et à haut signal en fonction de  $S^{47p,48s}$ ), on trouve  $\alpha = 0.161 \text{ (Vs)}^{\frac{1}{2}}$ .

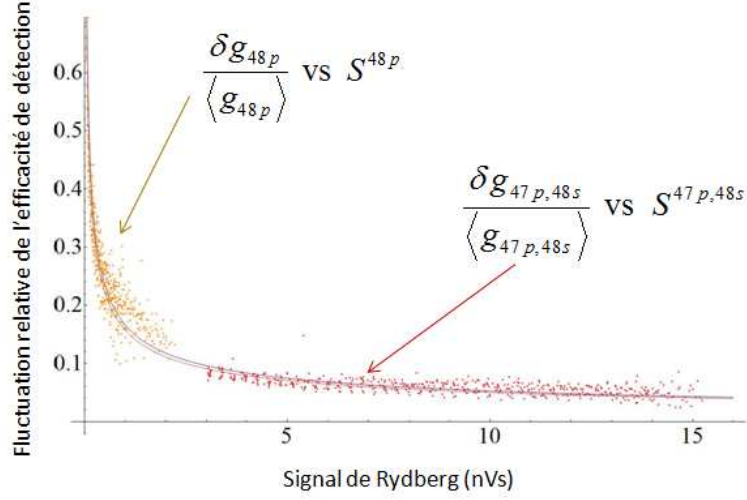


FIGURE 4.12 – Fluctuations relatives des facteurs  $g$  pour les deux gammes de signaux mesurés.

L'analyse de la fluctuation du signal d'un processus non linéaire a donc permis de complètement caractériser le détecteur. L'analyse de la fluctuation du signal permet de connaître le bruit relatif sur la détermination du facteur  $g$  dominé par le bruit de l'efficacité de détection en fonction de la gamme de signal mesuré. Pour les gammes de signaux utiles, le bruit au coup à coup du paramètre  $g$  (représentant le rapport moyen entre le signal mesuré et la densité du nuage d'atomes de Rydberg) est inférieur à 10%. Ce résultat numérique est une information quantitative sur la dispersion de la valeur de la densité déterminée dans une gamme de signal  $S^T$ .

#### 4.3.4 Précision sur la détermination de $g$

Nous avons présenté le modèle théorique en utilisant la probabilité continue  $P_{LZ}(\vec{r})$ , justifiée par le théorème Central Limite dans le cas où notre échantillon contient un très grand nombre d'atomes. Nous avons alors exprimé que la moyenne d'échantillon de la probabilité Landau-Zener tend vers son espérance (loi des grands nombres). Cependant, dans la vision où l'échantillon est fini et contient  $N$  atomes, il s'agit d'une approximation et le théorème Central Limite permet de connaître la précision de cette approximation.

Pour chaque paire d'atomes, une transition Landau-Zener est un processus à valeurs discrètes. Le signal atomique mesuré caractérisant l'état  $48p$ , provient de la somme des contributions de toutes les paires dont la distance interatomique est notée  $\vec{R}_i$  :

$$S^{48p} = \frac{1}{2} \frac{g_T}{g_{48p}} \left( \overline{P(\vec{R}_i)} \right) S^T \quad (4.25)$$

où  $\overline{P(\vec{R}_i)}$  est la moyenne empirique de l'échantillon :

$$\overline{P(\vec{R}_i)} = \frac{1}{N} \sum_i P(\vec{R}_i) \quad (4.26)$$

et  $P(\vec{R}_i)$  caractérise le processus à valeurs discrètes.

Pour  $\vec{R}_i = \vec{r}$ , la contribution d'une paire,  $P|\vec{R} = \vec{r}$ , vaut 0 avec la probabilité  $P_{LZ}(\vec{r})$  et la contribution d'une paire vaut 1 avec la probabilité  $1 - P_{LZ}(\vec{r})$ . Donc pour chaque paire d'atomes, l'espérance du processus de transfert (par transition Landau-Zener entre états de paires d'atomes couplés par l'interaction dipôle-dipôle) vaut :

$$E[P|\vec{R} = \vec{r}] = P_{LZ}(\vec{r}) \quad (4.27)$$

et la variance vaut :

$$\sigma^2[P|\vec{R} = \vec{r}] = P_{LZ}(\vec{r})(1 - P_{LZ}(\vec{r})) \quad (4.28)$$

Soit la variable centrée réduite :

$$Y_N = \frac{\sqrt{N}}{\sigma} \left[ P(\vec{R}_i) - E[P_{LZ}(\vec{r})] \right] \quad (4.29)$$

La loi de  $Y_N$  converge, pour  $N$  grand, vers la loi normale  $\mathcal{N}(0, 1)$  (loi des grands nombres). D'après le théorème Central Limite, alors la moyenne empirique  $P(\vec{R}_i)$  vaut (très probablement)  $E[P_{LZ}(\vec{r})]$  avec une précision donnée par :

$$\left[ P(\vec{R}_i) - E[P_{LZ}(\vec{r})] \right] \in \left[ -\frac{3\sigma[P|\vec{R} = \vec{r}]}{\sqrt{N}}, +\frac{3\sigma[P|\vec{R} = \vec{r}]}{\sqrt{N}} \right] \quad (4.30)$$

Donc, d'après la formule 4.28, nous pouvons connaître la borne supérieure de la variance du processus à valeurs discrètes :  $\sigma^2[P|\vec{R} = \vec{r}] \leq 0.25$ .

Typiquement pour  $N = 10^4$ , nous trouvons alors une précision sur la détermination du paramètre  $g$  ( $= \langle \frac{\eta}{S\tau} \rangle$ ) meilleure que 3%.

## 4.4 Discussions

### 4.4.1 Autre méthode de détermination de la densité d'un gaz d'atomes de Rydberg

Les méthodes conventionnelles optiques permettent de déterminer le nombre d'atomes en présence dans le gaz,  $N_f$ . Si la distribution des atomes est homogène dans le volume  $V$  occupé par le gaz, on définit la densité du gaz  $n_f$ , comme le rapport de ces deux quantités. Précisons que la détermination du nombre d'atomes en présence est basée sur des processus à un corps interagissant avec de la lumière. Le nombre d'atomes peut être déterminé par fluorescence induite par laser pour des atomes dans l'état fondamental ou dans des états de longue durée de vie tant que l'on peut détecter efficacement les photons de fluorescence induite. Par cette méthode, nous voulons connaître la densité d'atomes de Rydberg résultant d'une excitation laser résonante à deux photons à partir de l'état fondamental. Nous présenterons alors un modèle d'équations de taux régissant les populations des trois niveaux mis en jeu lors de l'excitation laser. Ce modèle permet alors de connaître la fraction d'atomes de Rydberg dans l'état 48s partant d'atomes dans l'état fondamental :  $N_{48s} = \alpha N_f$ .

#### 4.4.1.1 Détermination standard de la densité d'un gaz d'atomes dans l'état fondamental par fluorescence induite par laser

Le nombre d'atomes de sodium dans l'état fondamental  $N_f$  est déterminé expérimentalement par la fluorescence induite par laser  $\zeta$  (donnée en W=J/s) pour la transition  $3^2S_{1/2} - 3^2P_{3/2}$  à  $\lambda \approx 589$  nm.

$$N_f = \frac{\zeta}{\eta_c h \nu \Gamma} \quad (4.31)$$

où  $\eta_c$  est l'efficacité de collection des photons,  $h\nu = 3.37 \times 10^{-19}$  J est l'énergie d'un photon à  $\lambda = 589$  nm et  $\Gamma = 60 \pm 0.6$  MHz est la largeur inhomogène due à la température du gaz pour les atomes de sodium dans l'état  $3P_{3/2}$ .

Évaluons l'efficacité de collection  $\eta_c$  qui dépend du dispositif expérimental. Il est constitué de deux lentilles de même focale  $f = 50$  mm. Les atomes de sodium se trouvent aux alentours du point focal de la première lentille. La première lentille collimate les photons de fluorescence. Le faisceau collimaté traverse ensuite un hublot de diamètre  $D = 45$  mm. Enfin les photons sont focalisés par la deuxième lentille vers une photodiode à l'extérieur de l'enceinte. De plus, l'ajout d'un miroir sphérique du côté opposé à la lentille permet de 'presque' doubler l'efficacité de collection. On estime alors à 30% l'incertitude sur l'efficacité de collection du système présenté.  $\eta_c$  s'écrit :

$$\eta_c = \frac{D^2}{8f^2} = 0.10 \pm 0.03 \quad (4.32)$$

Connaissant le taux de conversion de la puissance lumineuse en courant électrique spécifique à la photodiode (*Thorlabs - DET100/A*) à la longueur d'onde  $\lambda = 589$  nm ( $0.25$  A.W<sup>-1</sup>), on mesure un maximum de fluorescence d'atomes de sodium dans l'état fondamental de  $\zeta = 60$   $\mu$ W. On trouve alors :  $N_f = 3.0 \pm 0.9 \times 10^7$  atomes pour un volume d'excitation estimé à  $0.050 \pm 0.015$  cm<sup>3</sup>. La densité d'atomes de sodium dans l'état fondamental est estimé à :  $n_f = 5.9 \pm 3.5 \times 10^8$  cm<sup>-3</sup>.

#### 4.4.1.2 Détermination de la fraction d'atomes excités dans un état de Rydberg par une excitation laser résonante à deux photons

La fraction d'atomes de sodium excités dans un état de Rydberg est déterminée par la solution stationnaire des équations de taux décrivant notre excitation laser à deux photons. On considère un système fermé à trois niveaux comme représenté sur la figure 4.13 : le premier niveau (1) est l'état fondamental du sodium  $3S_{1/2}$ . Le niveau relais (2) est l'état excité  $4P_{3/2}$ . L'état final (3) est l'état de Rydberg  $48s$ . Soit les coefficients d'Einstein  $A_{ij}$  pour l'émission spontanée,  $B_{ij}$  pour l'absorption et l'émission induite. On note  $W_{ij}$  les taux d'absorption et d'émission induite.

Soit une transition dipolaire électrique de fréquence  $\nu_{ij}$  et de moment dipolaire de transition  $\mu_{ij}$ . Le coefficient d'Einstein pour l'émission spontanée  $A_{ij}$  est relié au moment dipolaire de transition par la relation [Hilborn, 1982] :

$$A_{ij} = \frac{2(2\pi)^3 \nu_{ij}^3 \mu_{ij}^2}{3\epsilon_0 h c^3} \quad (4.33)$$

Les coefficients d'Einstein  $A_{ij}$  et  $B_{ij}$  sont reliés par la relation [Hilborn, 1982] :

$$A_{ij} = \frac{8\pi h\nu_{ij}^3}{c^3} B_{ij} \quad (4.34)$$

Les coefficients d'absorption et d'émission induite  $B$  sont définis comme les coefficients de proportionnalité entre les taux d'absorption et d'émission induite et la densité d'énergie par unité de fréquence,  $u(\nu)$  (en  $\text{J}\cdot\text{Hz}^{-1}\cdot\text{m}^{-3}$ ) pour une radiation dipolaire électrique de fréquence  $\nu$ .

Dans le cas général d'une radiation non monochromatique de densité spectrale d'énergie  $u(\nu)$ , la densité d'énergie dans l'intervalle spectral  $[\nu, \nu + d\nu]$  est  $u(\nu)d\nu$ . On a donc :  $\int_0^{+\infty} u(\nu)d\nu = \frac{1}{2}\epsilon_0 E^2$  comme étant la densité d'énergie par unité de volume. Pour une onde progressive (par exemple un faisceau laser), on a :  $\int_0^{+\infty} u(\nu)d\nu = \frac{I}{c}$  où  $I$  est l'intensité de l'onde progressive. Les taux d'absorption et d'émission induite s'écrivent dans le cas général :

$$W_{ij} = B_{ij} \int_0^{+\infty} u(\nu)g(\nu - \nu_{ij})d\nu \quad (4.35)$$

où  $g(\nu - \nu_{ij})$  est la forme de raie atomique normalisée (intrinsèque ou due à un élargissement inhomogène) afin de prendre en compte la réponse atomique. Ainsi  $\int_0^{+\infty} g(\nu)d\nu = 1$ . Il est possible de distinguer alors deux cas :

- Dans le cas d'une onde quasi-monochromatique de fréquence  $\nu_l$  dont la largeur spectrale est beaucoup plus petite que la largeur de raie atomique, on pose :  $u(\nu) = \delta_{\nu\nu_l} \frac{I}{c}$ , et les taux d'absorption et d'émission induite s'écrivent alors :

$$W_{ij} = B_{ij} \frac{I}{c} g(\nu_L - \nu_{ij}) \quad (4.36)$$

- Dans le cas où au contraire l'onde n'est plus quasi-monochromatique, de largeur spectrale beaucoup plus grande que la largeur de raie atomique, on pose :  $g(\nu - \nu_{ij}) = \delta_{\nu\nu_{ij}}$ , et les taux d'absorption et d'émission induite s'écrivent alors :

$$W_{ij} = B_{ij} u(\nu_{ij}) \quad (4.37)$$

**Excitation pulsée 3S-4P** Munis des fonctions d'onde des états liés labélisés  $|3S\rangle$ ,  $|4P\rangle$  du sodium, nous calculons le moment dipolaire de transition, soit l'intégrale radiale :  $\langle 3S | er | 4P \rangle$ . Ainsi, nous avons accès au taux d'émission spontanée :  $A_{21} = 3.67 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ , ainsi qu'au coefficient d'Einstein  $B_{12} = B_{21} = 7.94 \times 10^{18} \text{ m}^3 \cdot \text{J}^{-1} \cdot \text{Hz}$ . Cette transition, à  $\lambda_{12} = 330.3 \text{ nm}$ , est réalisée par un laser pulsé. La largeur spectrale du laser UV ( $\approx 40 \text{ GHz}$ ), de profil  $L(\nu)$  normalisé, est beaucoup plus grande que le profil Doppler transverse des atomes de sodium dans l'état  $3S_{1/2}$  ( $\approx 60 \text{ MHz}$ ). Connaissant la puissance instantanée du laser :  $P_{\text{inst}} = 1.5 \times 10^4 \text{ W}$ , pour un volume d'excitation cylindrique de surface  $S$  (de rayon  $r=1 \text{ mm}$ ), on en déduit la densité d'énergie dans ce volume par unité de fréquence :  $u_{\text{uv}}(\nu) = \frac{P_{\text{inst}}}{Sc} L(\nu)$ . Les taux d'émission et d'absorption induite s'écrivent dans notre cas, équation 4.37 :  $W_{12} = W_{21} = B_{12} \frac{P_{\text{inst}}}{Sc} L(\nu_{12})$ , et valent :  $W_{12} = W_{21} = 1.261 \times 10^9 \text{ s}^{-1}$ .

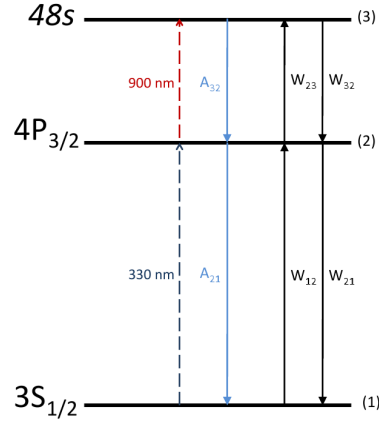


FIGURE 4.13 – Schéma du système à trois niveaux décrivant l’excitation laser à deux photons vers un état de Rydberg à partir du niveau fondamental du sodium. Les populations atomiques sont décrites par les équations de taux.

**Excitation continue 4P-48s** Pour le moment dipolaire de transition  $\langle 4P | er | 48s \rangle$ , nous extrapolons les taux d’émission spontanée  $A_{4p-n_s}$ , calculés dans la littérature [Lindgard and Nielsen, June 1977] de  $n = 8$  à  $12$ , suivant la loi  $(n - \delta_s)^{-3}$ , où  $\delta_s$  est le défaut quantique des états de Rydberg de moment orbital  $l = 0$ , pour le sodium  $\delta_s = 1.35$ . On trouve pour  $n = 48$  :  $A_{32} = 1.42 \times 10^3 \text{ s}^{-1}$ , et  $B_{23} = B_{32} = 6.42 \times 10^{16} \text{ m}^3 \cdot \text{J}^{-1} \cdot \text{Hz}$ . De plus, le laser continu à  $\lambda_{23} = 899.4 \text{ nm}$  de puissance  $P_{\text{IR}} = 1.5 \text{ W}$ , est très fin spectralement par rapport au profil Doppler transverse des atomes de sodium dans l’état  $4P$ , noté  $g(\nu)$  (le laser UV n’opérant aucune sélection en vitesse transverse des atomes dans l’état fondamental). Les taux d’absorption et d’émission induite s’écrivent alors, équation 4.36 :  $W_{23} = W_{32} = B_{23} \frac{I_{\text{IR}}}{c} g(\nu_{23})$ , où  $I_{\text{IR}} = \frac{P_{\text{IR}}}{S}$  avec  $S$  la surface du volume d’excitation cylindrique. On trouve :  $W_{23} = W_{32} = 1.01 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ .

#### 4.4.1.3 Conclusion

Les solutions des populations atomiques sont représentées sur la figure 4.14. Nous avons pris en compte la dépendance en temps de l’excitation laser car les atomes ne croisent qu’un temps fini les deux faisceaux contrapropageants. Cette dépendance en temps est représentée schématiquement sur la figure 4.15. La solution stationnaire donne une fraction d’atomes dans l’état  $48s$  :  $N_{48s} = 0.075 \pm 0.01 \times N_f$ . L’incertitude sur la fraction finale représente une incertitude de 10% sur le rayon du volume d’excitation cylindrique. Par cette méthode, nous estimons la densité d’atomes dans l’état  $48s$  de :  $n_{48s} = 4.4 \pm 2.4 \times 10^7 \text{ cm}^{-3}$ . Cette mesure indirecte de la densité du gaz d’atomes de Rydberg conforte la méthode présentée dans ce chapitre basée sur l’interaction à deux corps. Le résultat numérique que nous déduisons (étant aussi plus précis) est contenu dans la barre d’erreur de la détermination de la densité par la méthode standard.

#### 4.4.2 Erreurs systématiques

Une mesure expérimentale est soumise à plusieurs sources d’erreurs. Parmi ces sources d’erreurs, on trouve les incertitudes aléatoires expérimentales inhérentes aux appareils

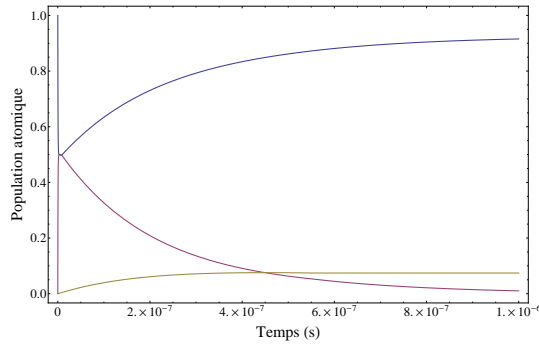


FIGURE 4.14 – Solutions dépendantes du temps des équations de taux régissant les populations atomiques du niveau  $3S_{1/2}$  (niveau fondamental du sodium) en bleu, du niveau  $4P_{3/2}$  en rose, et de l'état de Rydberg  $48s$  en vert.

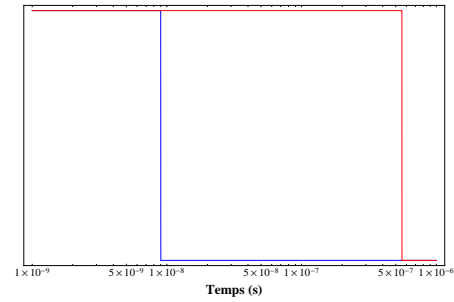


FIGURE 4.15 – Dépendance en temps de l'excitation laser dans le référentiel des atomes. En bleu, le pulse d'excitation du laser UV dure 9 ns. En rouge, la durée d'excitation du laser continu IR est donnée par le temps de vol des atomes dans le faisceau.

de mesure. L'étude des incertitudes expérimentales a été présentée dans la partie 4.3.3. Une autre classe d'erreurs moins évidente à mettre en évidence, pour laquelle en général une étude statistique est inutile, contient les erreurs systématiques. Ces erreurs peuvent être estimées par une analyse des conditions expérimentales et des techniques employées. Dans le cadre de notre expérience, nous soulevons deux sources d'erreurs systématiques possibles. Premièrement, le phénomène mis en évidence provient d'une interaction à deux corps (l'interaction dipôle-dipôle), la probabilité de passage adiabatique moyennée sur tout le volume d'atome de Rydberg est dépendante de la densité à travers la distribution des distances au premier plus proche voisin. Dans le modèle théorique présenté dans la partie 4.2.2, nous avons considéré une densité homogène sur tout le volume, ce qui n'est en réalité pas le cas. Dans le cas d'une distribution non homogène en densité, le facteur  $g$  du modèle déterminé par les données expérimentales, relie le signal mesuré  $S^T$  et la densité moyenne de la distribution  $\langle \eta \rangle = gS^T$ . Nous traiterons alors l'ajustement des données expérimentales en prenant en compte une distribution en densité dans le volume d'excitation. La deuxième source d'erreur systématique soulevée dans cette partie concerne la mesure des signaux. Les signaux du détecteur correspondant à la production d'état  $48p$  et  $47p$ ,  $48s$ , sont intégrés séparément dans le temps. Nous allons alors prendre en compte un petit recouvrement en temps des deux signaux dans le modèle pour ajuster les données expérimentales, c'est-à-dire si une partie d'un signal a été intégrée par erreur dans l'autre.

#### 4.4.2.1 Distribution spatiale de la densité

En supposant que les atomes de sodium dans l'état fondamental sont répartis de façon homogène dans le pulse de gaz, la densité d'atomes de Rydberg, elle, n'est pas homogène sur tout le volume d'excitation laser du au profil d'intensité transverse des lasers (en particulier du laser IR). Afin d'assurer la meilleure homogénéité spatiale possible, d'une part, les puissances laser utilisées sont suffisantes pour saturer les deux transitions atomiques, ce qui réduit la dépendance spatiale de la densité sur le volume d'excitation. D'autre part, deux iris intersectent à angle droit les deux faisceaux lasers afin de ne conserver que la

partie centrale transverse intense des faisceaux (qui ne sont pas focalisés). De plus, le jet atomique de sodium dans l'état fondamental traverse les plaques du dispositif expérimental au travers un trou de 1.5 mm de diamètre, de sorte à ne sélectionner que la partie la plus intense du jet supersonique.

Si la densité n'est pas homogène sur tout le volume d'excitation, nous considérons alors un volume local  $d\tau$ . Localement, le nombre d'atomes dans l'état  $48p$  produits par le processus de passage adiabatique s'écrit :

$$dN^{48p} = \frac{1}{2} \eta_{\text{local}} d\tau \langle 48s48s \rightarrow 47p48p \rangle_{\eta_{\text{local}}, \frac{dF}{dt}} \quad (4.38)$$

Nous noterons dans la suite, pour plus de clarté dans les expressions :

$$\langle 48s48s \rightarrow 47p48p \rangle_{\eta_{\text{local}}, \frac{dF}{dt}} = \mathcal{F}(\eta)$$

Sur tout le volume d'excitation, le nombre total d'atomes produits dans l'état  $48p$  s'écrit :

$$N^{48p} = \int_V dN^{48p} = \frac{V}{2} \langle \eta \mathcal{F}(\eta) \rangle \quad (4.39)$$

Le nombre total d'atomes de Rydberg dans les états  $48p$ ,  $47p$  et  $48s$  s'écrit :

$$N^T = \int_V \eta_{\text{local}} d\tau = \langle \eta \rangle V \quad (4.40)$$

On suppose raisonnablement que les deux signaux  $S^{48p}$  et  $S^T$  sont proportionnels aux nombres d'atomes, respectivement  $N^{48p}$  et  $N^T$ , avec le même facteur de proportionnalité, alors :

$$S^{48p} = \frac{S^T}{2} \frac{\langle \eta \mathcal{F}(\eta) \rangle}{\langle \eta \rangle} \quad (4.41)$$

Par un développement de Taylor au second ordre de la fonction  $\eta \mathcal{F}(\eta)$ , on montre que :

$$S^{48p} = \frac{S^T}{2} \left[ \mathcal{F}(\langle \eta \rangle) + \frac{1}{2} \Delta \eta^2 \left( \left. \frac{d^2 \mathcal{F}(\eta)}{d\eta^2} \right|_{\langle \eta \rangle} + \frac{2}{\langle \eta \rangle} \left. \frac{d\mathcal{F}(\eta)}{d\eta} \right|_{\langle \eta \rangle} \right) \right] \quad (4.42)$$

où  $\Delta \eta$  est le moment d'ordre 2 de la distribution de la densité. L'expression 4.42 constitue la nouvelle fonction afin d'ajuster les données expérimentales. Il s'agit alors d'un ajustement à deux paramètres  $(g, \Delta \eta)$ .  $g$  étant toujours le facteur de conversion entre le signal mesuré  $S^T$  et la densité moyenne de la distribution :  $\langle \eta \rangle = g S^T$ . Dans ce cas, un ajustement par la méthode des moindres carrés donne le meilleur ajustement pour les paramètres :  $(g = 4.16 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}/V, \Delta \eta = 3.9 \times 10^{-4} \text{ cm}^{-3})$ . La déviation standard sur le paramètre  $g$  de  $7.5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}/V$ . En revanche, le paramètre  $\Delta \eta$  est très mal déterminé par l'ajustement, la déviation standard vaut  $470 \text{ cm}^{-3}$ . Nous pouvons donc en conclure que les données expérimentales ne sont pas sensibles à une distribution non homogène de la densité et que l'ajout d'un paramètre tel que le deuxième moment de la distribution de la densité n'est pas pertinent pour l'exactitude de nos données expérimentales. La détermination de la densité  $\eta$  au travers le paramètre  $g$  est donc sans biais par rapport à une distribution non homogène de la densité sur tout le volume d'atomes de Rydberg.



#### 4.4.2.2 Séparation des signaux $S^{48p}$ et $S^{47p,48s}$

Une séparation parfaite des deux signaux d'ions provenant des états  $48p$  et  $47p, 48s$  est nécessaire. En effet, une erreur dans l'intégration du signal pour la mesure entraînerait une sous ou sur-évaluation d'un signal par rapport à l'autre, induisant une erreur systématique sur la détermination de la densité du gaz au travers le paramètre  $g$  du modèle. Comme nous l'avons présenté au chapitre 3 dans la partie 3.2.3.4, notre séquence de détection, par champ électrique pulsé, permet de complètement séparer en temps d'arrivée, au niveau du détecteur, les deux paquets d'ions provenant des états  $48p$  et  $47p, 48s$ . Les deux signaux sont alors séparés de plus d'une microseconde. Nous assurons alors que aucune portion d'un signal n'est malencontreusement intégré avec l'autre signal. Nous le vérifions expérimentalement en produisant directement des états  $48p$  en champ électrique.

Si par hypothèse nous faisons une erreur  $\epsilon$  sur l'intégration du signal, c'est à dire qu'une partie du signal est intégré dans la mauvaise boîte (nous prenons le même pourcentage d'erreur associé aux deux signaux), le problème se trouve simplifié par les deux points suivants :

- Le modèle relie le signal de production d'état  $48p$ ,  $S^{48p}$ , en fonction du signal total. Le signal total n'étant pas soumis à cette erreur systématique, cette erreur d'intégration du signal n'est donc présente que pour la valeur du signal de production d'état  $48p$ , on note  $S^{48p*}$  le signal de  $48p$  mesuré contenant l'erreur d'intégration :

$$S^{48p*} = (1 - \epsilon)S^{48p} + \epsilon S^{47p+48s} \quad (4.43)$$

- La production linéaire par absorption du rayonnement du corps noir par les atomes dans l'état  $48s$ ,  $S^{48p}$ , est soumise à la même erreur systématique. La correction des données expérimentales par cette production corrige une partie de l'erreur systématique : intégration d'un pourcentage du signal  $S^{47p+48s}$  dans le signal  $S^{48p*}$ . En effet, le signal de production d'état  $48p$  du au processus de transition Landau-Zener  $S_{LZ}^{48p}$ , ainsi qu'au processus d'absorption du rayonnement du corps noir  $S_{BBR}^{48p}$ , contenant l'erreur d'intégration s'écrit :

$$S_{LZ+BBR}^{48p*} = (1 - \epsilon) (S_{LZ}^{48p} + S_{BBR}^{48p}) + \epsilon S^{47p,48s} \quad (4.44)$$

Le signal de production d'état  $48p$  du au seul processus d'absorption du rayonnement du corps noir  $S_{BBR}^{48p}$ , contenant l'erreur d'intégration s'écrit :

$$S_{BBR}^{48p*} = (1 - \epsilon)S_{BBR}^{48p} + \epsilon S^{47p,48s} \quad (4.45)$$

La correction de  $S_{LZ+BBR}^{48p*}$  par  $S_{BBR}^{48p*}$  corrige du terme systématique  $\epsilon S^{47p,48s}$ .

Il reste au final :  $S^{48p*} = (1 - \epsilon)S^{48p}$ . Cette légère perte du signal d'état  $48p$  a donc pour effet de sous-évaluer la production d'état  $48p$ . La sous-évaluation du signal est légère car elle n'affecte que le signal  $S^{48p}$ , ce signal étant environ un ordre de grandeur plus petit que  $S^{47p+48s}$ . Si le signal n'était pas corrigé de la production due à l'absorption du rayonnement du corp noir, alors une légère erreur d'intégration du signal aurait de plus lourdes conséquences sur l'analyse des données expérimentales.

Afin de quantifier, d'après les données expérimentales, si ces dernières sont soumises à une erreur systématique d'intégration du signal mesuré, nous ajustons les données expérimentales avec un modèle tenant compte de l'erreur :

$$S^{48p} = (1 - \epsilon) \frac{1}{2} S^T \langle 48s48s \rightarrow 47p48p \rangle_{g, S^T, \frac{dF}{dt}} \quad (4.46)$$

Il s'agit d'un ajustement à deux paramètres  $(g, \epsilon)$ . Dans ce cas, un ajustement par la méthode des moindres carrés donne le meilleur ajustement pour les paramètres : ( $g = 4.15 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}/\text{V}$ ,  $\epsilon = 5.9 \times 10^{-13}$ ). La déviation standard sur le paramètre  $g$  de  $7.4 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}/\text{V}$ . La déviation standard sur le paramètre  $\epsilon$  vaut 0.015. Nous trouvons donc une valeur compatible avec zéro pour l'erreur d'intégration du signal. Nous pouvons en conclure que les données expérimentales ne sont pas soumises à l'erreur systématique d'intégration du signal pour la mesure. Le modèle présenté dans la partie 4.2.2 reste donc un bon modèle pour interpréter les données expérimentales.

### 4.4.3 Rôle d'un troisième corps

Le modèle présenté dans ce chapitre repose sur l'hypothèse d'une interaction à deux corps dans un modèle au plus proche voisin. Afin de vérifier la validité de cette hypothèse outre par l'ajustement du modèle théorique des données expérimentales, nous voulons estimer la proportion d'atomes de Rydberg dont la distance avec le deuxième plus proche voisin serait comparable à la longueur de l'interaction. D'une manière générale, pour un atome, la distribution d'Erlang  $f(r, k)$  représente la densité de probabilité de présence,  $4\pi r^2 f(r, k)$ , d'un  $k$ -ième plus proche voisin à une distance  $r$ , et s'écrit :

$$f(r, k) = \frac{3}{4\pi k!} \frac{(r^3)^{k-1}}{(a_\eta^3)^k} e^{-(\frac{r}{a_\eta})^3} \quad (4.47)$$

Soit pour la densité maximale accessible dans notre expérience  $\eta_{max} = 8 \times 10^7 \text{ cm}^{-3}$ , et en utilisant la distance interatomique de coupure notée  $r_0$  dans le modèle, la plus grande accessible expérimentalement,  $r_{0,max} = 8 \mu\text{m}$ , on trouve que 1.3% des atomes ont un second plus proche voisin à moins de  $r_{0,max}$ . Seulement pour cette fraction d'atomes, un modèle d'interaction à deux corps n'est plus suffisant et l'efficacité de transition dans le modèle Landau-Zener sera affecté par les interactions à trois corps. Pour une densité typique dans notre expérience  $\eta = 5 \times 10^7 \text{ cm}^{-3}$ , cette fraction d'atome chute en dessous de 0.5%. Les phénomènes à trois corps influencent la détermination de la densité par la méthode présentée dans ce chapitre, cependant, la détection de la proportion d'atomes concernée est inaccessible due aux incertitudes expérimentales représentant la barre d'erreur sur la détermination expérimentale de la densité.

## Conclusions

La méthode présentée dans ce chapitre a pour but la mesure précise de la densité d'un gaz d'atomes de Rydberg basée sur le passage adiabatique au travers un croisement évité dont les états de paire sont couplés par l'interaction dipôle-dipôle. Nos données expérimentales reproduisent très bien le modèle d'interaction à deux corps présenté dans toute la gamme des distances interatomiques sondées. La mesure d'une production non linéaire d'atomes dans l'état final d'une transition, en fonction du signal total d'atomes de Rydberg est un moyen simple et pratique pour estimer ou mesurer précisément la densité du gaz d'atomes de Rydberg. Dans ce modèle, seulement la connaissance de l'interaction dipôle-dipôle entre ces états, soit des moments dipolaires de transitions des états de Rydberg mis en jeu, ainsi que le contrôle expérimental de la variation du champ électrique sont nécessaires pour estimer ou mesurer précisément la densité du gaz d'atomes de Rydberg.

Étant donné la complexité des états électroniques des atomes et des molécules dans des états de Rydberg, ces systèmes présentent de nombreux croisements évités en champ électrique pour autant que les interactions à longues distances soient significatives. La méthode présentée dans ce chapitre est donc applicable à de nombreux systèmes. Cette méthode est applicable à des gaz de Rydberg de plus basse densité dans le but de sonder des distances inter-atomiques plus grandes. Ceci peut être mis en oeuvre en excitant des états de Rydberg de plus grand  $n$  ou alors en appliquant une variation de champ électrique plus lente, tant que les atomes d'une paire peuvent être considérés comme gelés durant le temps de transition adiabatique. Cette méthode peut permettre également de sonder des distances interatomiques plus petites que nous l'avons fait, dans des gaz de Rydberg de plus haute densité tant que le modèle d'interaction à deux corps reste valable. Il s'agit par exemple, d'un outil de diagnostic pratique pour mesurer précisément la densité dans le cas de l'évolution d'un gaz d'atomes ou de molécules de Rydberg froid vers un plasmas [Morrison et al., 2008]. De plus, la déviation par rapport au modèle à deux corps peut être une signature de phénomènes à trois corps.

De plus, cette méthode donne un accès expérimental à la distribution aux plus proches voisins du gaz de Rydberg. Dans le cas d'atomes de Rydberg en régime de blocage dipolaire, cette méthode est une preuve directe de l'isolation d'un atome dans sa sphère de blocage [Gaëtan et al., 2009, Urban et al., 2009]. Notre modèle tient compte d'une éventuelle distribution au plus proche voisin anisotropique, ce qui est le cas lorsque l'on isole un croisement évité dont la probabilité de transition est anisotropique. Dans le cas d'atomes de Rydberg en régime de blocage dipolaire induit par une interaction dipôle-dipôle anisotropique, la direction du champ électrique induisant le passage adiabatique à travers le croisement évité permet alors de sonder la distribution au plus proche voisin en fonction de son orientation.

# Chapitre 5

## Mesure du bruit de projection quantique

### Introduction

Les développements des techniques de piégeages d'ions (les pièges de Penning et de Paul) combinés aux techniques de refroidissement (par collision avec un gaz tampon et refroidissement Doppler ou par bandes latérales) ont permis d'atteindre des températures de l'ordre du mK et des confinements de 1 à environ un million d'ions sur de très grandes durées (supérieures à une seconde). Ces systèmes d'ion unique sont des systèmes idéaux en physique atomique et quantique. Les méthodes d'amplificateur quantique (ou *electronshelving*) et de 'saut quantique' ont permis par exemple des mesures de transitions très fines ou encore du moment du quadrupôle électrique d'un ion unique, revues en détails dans l'article [Wineland et al., 1995]. De nos jours, ces mesures peuvent atteindre un niveau de précision meilleur que  $10^{-14}$ .

En particulier, les premières mesures de bruit de projection quantique (ou fluctuation quantique) ont été réalisées sur un système d'ion unique  $^{199}\text{Hg}^+$  et d'un groupe d'ions  $^9\text{Be}^+$  [Itano et al., 1993]. Dans ces systèmes, il n'y a pas de fluctuation du nombre d'ions et en utilisant la méthode d'amplificateur quantique, il est possible de rendre négligeable la fluctuation statistique du système de détection, rendant le bruit de projection quantique accessible. Pour des ensembles d'ions ou d'atomes non corrélés, il s'agit d'un bruit fondamental limitant les mesures de spectroscopie.

Les systèmes d'ions et d'atomes préparés dans des états collectifs [Turchette et al., 1998] (dénommés 'squeezed spin states') offrent de nombreuses applications d'intérêt dans les domaines de l'information quantique [Shor, 1997, Braunstein and van Loock, 2005], de la cryptographie [Bennett and Brassard, 1984] et des références de temps, permettant des mesures spectroscopiques en dessous de la limite quantique standard [Wineland et al., 1994, Blatt and Wineland, 2008, Appel et al., 2009]. Depuis la discussion sur la non localité de la mécanique quantique dans l'article historique d'Einstein de Podolsky et de Rosen [Einstein et al., 1935], la première démonstration expérimentale sur des états de polarisation de paire de photons intriqués a eu lieu au début des années 1980 [Aspect et al., 1982]. Dans le cas d'atomes de Rydberg, la démonstration expérimentale de l'intrication de deux atomes de  $^{87}\text{Rb}$ , lors de l'excitation dans un état de Rydberg à partir de l'état fondamental, a été réalisée en 2009 à l'aide du blocage dipolaire [Gaëtan et al.,

2009, Wilk et al., 2010].

Ce chapitre est consacré à la mesure expérimentale du bruit de projection quantique pour des superpositions cohérentes entre les états de Rydberg (du sodium)  $47p_{3/2}$  et  $48p_{3/2}$  préparées à l'aide d'une transition à deux photons dans le domaine des fréquences micro-ondes. Dans une première partie, nous expliciterons le bruit de projection quantique pour un ensemble d'atomes non corrélés, pour un cas pur et dans le cas d'un mélange statistique, en introduisant le formalisme de la matrice densité. Pour un processus d'oscillations de Rabi lors d'une transition à deux photons, nous simulerons le bruit de projection quantique par le processus de mesure. Dans une seconde partie, nous modéliserons l'expérience afin de prendre en compte la fluctuation du signal de notre dispositif expérimental, le jet supersonique. Nous verrons que le bruit de projection quantique expérimental peut être extrait par une analyse en fonction du signal, du nombre d'atomes. Les résultats expérimentaux sont en accord avec le modèle proposé. La dernière partie de ce chapitre est consacrée à la démonstration théorique de l'application de la mesure du bruit de projection quantique lors d'une transition à deux photons entre les états de paire d'atomes de Rydberg, comme preuve de l'intrication des atomes d'une paire lors d'un processus de passage adiabatique autour d'une résonance de Förster (transition Landau-Zener).

## 5.1 Processus de mesure en mécanique quantique

### 5.1.1 Généralités

L'interprétation des théories de la mécanique quantique par l'expérience repose sur la mesure des systèmes quantiques. La relation entre la mesure expérimentale et la théorie quantique a toujours souffert de problèmes d'interprétation depuis son développement au début du 20<sup>ème</sup> siècle jusqu'à nos jours, illustrée par l'expérience de pensée du chat de Schrödinger. La mécanique quantique décrit les systèmes physiques isolés par un vecteur d'état dont l'évolution est régie par l'équation de Schrödinger, cette évolution unitaire et réversible, est complètement déterministe. Cependant, la mécanique quantique ne prédit pas le résultat d'une expérience mais la probabilité d'observer un résultat, soit la probabilité de mesurer un évènement. Une des difficultés majeures de la théorie quantique est de décrire la dynamique du système 'système quantique - appareil de mesure'. Ce problème a été explicité pour la première fois par [von Neumann, 1955], il décrit les appareils de mesure comme étant des systèmes quantiques dont les états sont corrélés aux états propres de l'observable mesurée lors des processus d'interaction entre le système étudié et l'appareil de mesure. Cette description ne décrit pas le comportement classique des appareils de mesure et souffre d'ambiguïté. L'interprétation rendant compte de nombreux résultats expérimentaux est l'interprétation de Copenhague, communément admise. Dans cette approche, les appareils de mesure sont des systèmes classiques, et après une mesure, le système se retrouve dans l'état correspondant à la valeur propre de l'observable mesurée (comme le montre entre autres l'expérience historique de Stern et Gerlach [Gerlach and Stern, 1922]). Dans cette interprétation, le vecteur d'état correspond à une description complète du système et la mesure perturbe le système quantique qui subit une soudaine modification, incontrôlable, dont le résultat ne peut pas être prédit, dénommée dans la littérature *réduction du paquet d'onde*. Il s'agit alors d'une projection sur l'état correspondant à la valeur mesurée, cette projection est non unitaire et irréversible.

Dans la théorie de la mécanique quantique, cela se traduit en terme de moyenne quantique qui est une moyenne d'ensemble. Si l'on prépare un système quantique dans un état  $|\psi\rangle$ , que l'on mesure une observable  $A$  et que l'on répète un nombre infini de fois cette mesure avec le système quantique toujours préparé dans le même état, alors la moyenne de ces mesures s'écrit :

$$\langle A \rangle = \frac{\langle \psi | A | \psi \rangle}{\langle \psi | \psi \rangle} \quad (5.1)$$

Nous obtenons la même moyenne quantique si l'on prépare un nombre infini de systèmes quantiques identiques dans le même état  $|\psi\rangle$  (sans corrélations entre eux). Le résultat de la mesure de l'observable  $A$  sur chaque élément de cet ensemble est une moyenne d'ensemble donné par 5.1. Alors, la moyenne d'ensemble correspond à la probabilité  $\mathcal{P}_a$  d'obtenir le résultat  $a$  correspondant à une valeur propre de l'observable  $A$  lorsque l'on mesure l'ensemble des systèmes tous préparés dans l'état  $|\psi\rangle$ . Pour un état  $|\psi\rangle$  normalisé (ie  $\langle \psi | \psi \rangle = 1$ ), la probabilité  $\mathcal{P}_a$  s'écrit :

$$\mathcal{P}_a = \langle \psi | A | \psi \rangle = |\langle a | \psi \rangle|^2 \quad (5.2)$$

La théorie de la mesure a été traitée en détail dans les ouvrages de références de von

Neumann [von Neumann, 1955] et Bohm [Bohm, 1951] et a été revue par exemple dans les articles [Balian, 1989] et [Peres, 1986].

### 5.1.2 Bruit de projection quantique

L'exemple le plus basique est la mesure de population des états d'un système à deux niveaux  $\{|g\rangle, |e\rangle\}$ , le système étant préparé dans une superposition cohérente  $|\psi\rangle = c_g |g\rangle + c_e |e\rangle$ . Si un des deux coefficients  $c_g$  ou  $c_e$  est nul, le résultat d'une mesure sur l'état du système est connu avec certitude. Dans le cas contraire, le résultat de la mesure n'est connu que de manière probabiliste, c'est à dire que  $|c_g|^2 \equiv p_g$  et  $|c_e|^2 \equiv p_e$  représentent respectivement les probabilités de trouver le système dans l'état  $|g\rangle$  ou  $|e\rangle$  (pour un vecteur d'état normalisé). L'indétermination sur la mesure est une caractéristique profonde de la mécanique quantique (reliée au principe d'incertitude d'Heisenberg). La projection du vecteur d'état lors d'une mesure est donc aléatoire et est une source de fluctuations nommé bruit de projection quantique.

Pour un atome à deux niveaux, on peut facilement exprimer la variance de l'observable  $P_e \equiv |e\rangle\langle e|$  (défini comme un projecteur vérifiant  $P_e^2 = P_e$ ) correspondant à la mesure de trouver l'atome dans l'état  $|e\rangle$  :

$$\begin{aligned} (\Delta P_e)^2 &= \langle (P_e - \langle P_e \rangle)^2 \rangle & (5.3) \\ &= \langle P_e^2 \rangle - \langle P_e \rangle^2 \\ &= \langle P_e \rangle (1 - \langle P_e \rangle) \\ &= p_e (1 - p_e) \end{aligned} \tag{5.4}$$

Dans le cas d'une assemblée de  $N$  atomes (non corrélés entre eux), les probabilités de mesurer les populations dans l'état  $|g\rangle$  noté  $N_g$  et dans l'état  $|e\rangle$  noté  $N_e$  (avec donc  $N_g + N_e = N$ ) s'écrivent mathématiquement par la distribution binomiale. En effet, pour chaque atome formant l'ensemble des  $N$  atomes tous préparés dans le même état quantique, la mesure de la probabilité  $p_e$  de mesurer l'état  $|e\rangle$  correspond à une épreuve de Bernoulli. La somme de variables aléatoires, dite de Bernoulli, est régie par la loi binomiale et la probabilité de mesurer  $N_e$  atomes dans l'état  $|e\rangle$  s'écrit [Taupin, 1988] :

$$P(N_e, N, p_e) = \frac{N!}{N_e! (N - N_e)!} (p_e)^{N_e} (1 - p_e)^{N - N_e} \tag{5.5}$$

Dans le cas de la mesure sur une assemblée de  $N$  atomes non corrélés entre eux, la variance de la distribution binomiale s'écrit [Taupin, 1988] :

$$\sigma_{\text{QPN}}^2 = N p_e (1 - p_e) \tag{5.6}$$

La variance de la distribution binomiale correspond au bruit de projection quantique, elle vaut 0 pour  $p_e = 0$  ou  $p_e = 1$  c'est à dire lorsque le résultat de la mesure est connu avec certitude et est maximale pour  $p_e = 0.5$ , elle vaut dans ce cas  $\frac{N}{4}$ . Dans ce cas simple, la valeur de la fluctuation quantique se déduit directement de la probabilité  $p_e$ . La fluctuation quantique est un bruit fondamental sur les mesures de populations atomiques.

## 5.2 Oscillations de Rabi à deux photons entre deux états de Rydberg

Afin de préparer les atomes dans une superposition cohérente du type  $|\psi\rangle = c_g |g\rangle + c_e |e\rangle$ , un moyen simple et bien connu est le couplage dipolaire électrique entre les états  $|g\rangle$  et  $|e\rangle$  par un champ électromagnétique. Dans les expériences présentées dans ce chapitre, nous utiliserons un couplage à deux photons dans la gamme des fréquences micro-onde entre les états de Rydberg du sodium  $47p_{3/2}$  et  $48p_{3/2}$ . Dans cette partie, nous introduirons les résultats théoriques pour le traitement d'un système à trois niveaux couplés par deux photons. Nous introduirons le formalisme de la matrice densité afin d'exprimer la variance de la mesure d'une population dans le cas d'un mélange statistique ou simplement d'un cas pur. Nous utiliserons également le formalisme de la matrice densité pour résoudre numériquement l'évolution au cours du temps des populations du système à trois niveaux. Nous simulerons le bruit de projection quantique pour ce processus d'oscillation de Rabi à deux photons.

### 5.2.1 Interaction atome à deux niveaux - champ classique

Le traitement d'un système à deux niveaux soumis à une interaction a déjà été traité dans la section 3.1.1 du chapitre 3. Nous le redéveloppons ici en traitant l'interaction avec un champ électrique classique oscillant. La théorie semi-classique traite donc de l'interaction d'un atome à deux niveaux avec un champ oscillant classique, les deux systèmes étant couplés par l'interaction dipolaire électrique. Ce problème basique est traité dans les ouvrages de référence de mécanique quantique. Nous aborderons dans cette partie les résultats théoriques principaux, notamment sur la dynamique et l'évolution du système à deux niveaux couplés à un champ électrique oscillant (traité en 1937 par Rabi [Rabi, 1937]).

#### 5.2.1.1 Hamiltonien semi-classique dans l'approximation de l'onde tournante

Soit un atome constituant un système à deux niveaux défini par la base  $\{|e\rangle, |g\rangle\}$  dont la fréquence de transition est notée  $w_0$ . L'atome interagit par couplage dipolaire électrique avec un champ classique noté :  $\mathbf{E}(t) = \mathbf{E}_0 \cos(\omega t + \phi)$  réel<sup>1</sup>.

Le hamiltonien de l'atome isolé s'écrit :

$$H_0 = \frac{\hbar w_0}{2} (|e\rangle \langle e| - |g\rangle \langle g|) \quad (5.7)$$

Dans la base  $\{|e\rangle, |g\rangle\}$ , le hamiltonien de l'atome isolé s'écrit :

$$H_0 = \frac{\hbar w_0}{2} \sigma_z \quad (5.8)$$

en ayant utilisé les matrices de Pauli dont les expressions sont données par :

$$\sigma_x = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \sigma_y = \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix}, \sigma_z = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}$$

---

1. Nous ne tenons pas compte de la dépendance avec les coordonnées spatiales car nous ne traitons pas les degrés de liberté externes de l'atome considéré comme fixe.



Le hamiltonien de couplage dipolaire électrique entre l'atome et le champ électrique classique s'écrit :

$$\hat{V} = -\hat{\mathbf{d}} \cdot \mathbf{E}(t) \quad (5.9)$$

où  $\hat{\mathbf{d}}$  est l'opérateur dipôle électrique :  $\hat{\mathbf{d}} = e\hat{\mathbf{r}}$ . On note l'élément de matrice  $\langle e | \hat{\mathbf{d}} | g \rangle = \mathbf{d}_{eg}$ . Avec  $\mathbf{d}_{eg}$  réel, en posant  $\mathbf{d}_{eg} \mathbf{E}_0 = -\hbar\Omega$  (où  $\Omega$  est la fréquence de Rabi classique) et en introduisant les opérateurs  $\sigma_- = |g\rangle \langle e|$  et  $\sigma_+ = |e\rangle \langle g|$ , l'expression 5.9 s'écrit :

$$\hat{V} = \hbar\Omega \cos(\omega t + \phi) [\sigma_+ + \sigma_-] \quad (5.10)$$

Finalement, le hamiltonien décrivant l'atome et son interaction avec le champ électrique classique s'écrit :

$$H = H_0 + V = \frac{\hbar\omega_0}{2}\sigma_z + \hbar\Omega \cos(\omega t + \phi) [\sigma_+ + \sigma_-] \quad (5.11)$$

En se plaçant dans le référentiel tournant à la fréquence du champ électrique  $\omega$  c'est à dire en appliquant une rotation décrite par l'opérateur  $\mathcal{R}(t) = e^{\frac{i\omega t}{2}\sigma_z}$  et en appliquant l'approximation de l'onde tournante consistant à ne garder que les termes constants, l'évolution de  $\psi' = \mathcal{R}(t)\psi$  est donnée par le hamiltonien :

$$H' = \frac{\hbar\delta}{2}\sigma_z + \frac{\hbar\Omega}{2} (e^{-i\phi}\sigma_+ + e^{i\phi}\sigma_-) \quad (5.12)$$

où  $\delta = \omega - \omega_0$  est le désaccord. En posant :  $\Omega' = \sqrt{\Omega^2 + \delta^2}$  et

$$\vec{u} = \begin{pmatrix} \cos(\theta) \cos(\phi) \\ \sin(\theta) \sin(\phi) \\ \sin(\theta) \end{pmatrix} \quad (5.13)$$

avec  $\tan(\theta) = \frac{\Omega}{\delta}$ , le hamiltonien 5.12 peut se mettre sous la forme :

$$H' = \frac{\hbar\Omega'}{2} \vec{u} \cdot \vec{\sigma} \quad (5.14)$$

### 5.2.1.2 Solutions stationnaires

Les vecteurs propres de l'opérateur  $\vec{u} \cdot \vec{\sigma}$  contenu dans le hamiltonien 5.14 s'écrivent :

$$|+\rangle_u = \cos(\theta/2) e^{-i\frac{\phi}{2}} |e\rangle + \sin(\theta/2) e^{i\frac{\phi}{2}} |g\rangle \quad (5.15)$$

$$|-\rangle_u = -\sin(\theta/2) e^{-i\frac{\phi}{2}} |e\rangle + \cos(\theta/2) e^{i\frac{\phi}{2}} |g\rangle \quad (5.16)$$

Les valeurs propres associées sont :

$$E_+ = \frac{\hbar\Omega'}{2} \quad (5.17)$$

$$E_- = -\frac{\hbar\Omega'}{2} \quad (5.18)$$

### 5.2.1.3 Oscillations de Rabi

Prenons, pour simplifier les notations, la phase du champ électrique classique nulle :  $\phi = 0$ . Dans ce cas, si l'état initial est l'état  $|g\rangle$ , alors :

$$|\psi(t=0)\rangle = -\sin(\theta/2)|+\rangle_u + \cos(\theta/2)|-\rangle_u \quad (5.19)$$

Alors, à un instant  $t$ , on a :

$$|\psi(t)\rangle = \sin(\theta/2)e^{-i\frac{\Omega't}{2}}|+\rangle + \cos(\theta/2)e^{i\frac{\Omega't}{2}}|-\rangle \quad (5.20)$$

Cette expression permet de calculer la probabilité de trouver à l'instant  $t$  le système dans l'état  $|e\rangle$  :

$$P_e(t) = |\langle e|\psi(t)\rangle|^2 \quad (5.21)$$

Soit :

$$P_e(t) = \sin^2(\theta) \sin^2\left(\frac{\Omega't}{2}\right) = \frac{\Omega'^2}{\Omega^2} \sin^2\left(\frac{\Omega't}{2}\right) \quad (5.22)$$

L'expression 5.22, parfois appelée formule de Rabi décrit le phénomène des oscillations de Rabi et montre que  $P_e(t)$  oscille dans le temps à la pulsation  $\Omega'$ . La fréquence des oscillations augmente donc avec le couplage et avec le désaccord. La valeur maximale de  $P_e(t)$  vaut  $\sin^2(\theta)$  qui vaut 1 lorsque  $\delta = 0$ , et  $\Omega' = \Omega$ .

À résonance, pour  $\delta = 0$  :

- si  $\Omega t = 2\pi$ , l'état atomique est revenu dans son état initial.  $P_e(\frac{2\pi}{\Omega}) = 0$  et la fluctuation quantique est minimale.
- si  $\Omega t = \pi$ , l'atome a absorbé un photon (ou quanta d'énergie) et la population atomique est passé dans l'état excité  $|e\rangle$ .  $P_e(\frac{\pi}{\Omega}) = 1$  et la fluctuation quantique est maximale.
- si  $\Omega t = \frac{\pi}{2}$ , l'état de l'atome est une superposition cohérente de  $|e\rangle$  et  $|g\rangle$  avec les mêmes coefficients :

$$|\psi(\Omega t = \pi/2)\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|g\rangle - i|e\rangle) \quad (5.23)$$

$P_e(\frac{\pi}{2\Omega}) = 0.5$ , la fluctuation quantique est maximale.

## 5.2.2 Interaction atome à 3 niveaux - deux photons

Pour traiter et simuler l'évolution dans le temps des populations d'un système à trois niveaux, nous écrivons le hamiltonien du système dans le cas d'un atome à trois niveaux dont la transition entre l'état initial et l'état final est quasi-résonante avec l'énergie de deux photons. Nous traiterons le hamiltonien du système dans le cas d'un cas pur, puis nous introduirons le formalisme de la matrice densité permettant de traiter un mélange statistique. Nous exprimerons, en ces termes, la variance d'une mesure de population sur le système à trois niveaux. Les états de l'atome à trois niveaux sont notés  $\{|i\rangle, |a\rangle, |f\rangle\}$ . La fréquence du champ électrique est proche des résonances de transitions pour  $|i\rangle \rightarrow |a\rangle$  et  $|a\rangle \rightarrow |f\rangle$ .

### 5.2.2.1 Hamiltonien semi-classique dans l'approximation de l'onde tournante

Pour l'atome à trois niveaux en présence du champ électrique classique, le hamiltonien s'écrit :

$$H = H_0 + V \quad (5.24)$$

Les interactions entre les états de l'atome et le champ électrique sont données par :

$$V = V_{ia} + V_{af} = -\hat{\mathbf{d}} \cdot \mathbf{E}(t) \quad (5.25)$$

En utilisant les notations et le raisonnement employés dans la partie 5.2.1.1, les interactions entre les états atomiques et le champ électrique peuvent être réécrites en utilisant les opérateurs :  $|i\rangle\langle a|$ ,  $|a\rangle\langle i|$  et  $|a\rangle\langle f|$ ,  $|f\rangle\langle a|$  :

$$V_{ia} = \frac{\hbar\Omega_{ia}}{2} (|i\rangle\langle a| e^{-i\omega t} + |i\rangle\langle a| e^{i\omega t} + |a\rangle\langle i| e^{-i\omega t} + |a\rangle\langle i| e^{i\omega t}) \quad (5.26)$$

$$V_{af} = \frac{\hbar\Omega_{af}}{2} (|a\rangle\langle f| e^{-i\omega t} + |a\rangle\langle f| e^{i\omega t} + |f\rangle\langle a| e^{-i\omega t} + |f\rangle\langle a| e^{i\omega t}) \quad (5.27)$$

avec, en ayant choisi  $\mathbf{d}_{ia}$  et  $\mathbf{d}_{af}$  réels :

$$\hbar\Omega_{ia} = -\mathbf{d}_{ia} \cdot E_0 \quad (5.28)$$

$$\hbar\Omega_{af} = -\mathbf{d}_{af} \cdot E_0 \quad (5.29)$$

En effectuant l'approximation de l'onde tournante, nous conservons seulement les termes résonants des expressions 5.26 et 5.27 :

$$V_{ia} = \frac{\hbar\Omega_{ia}}{2} (|i\rangle\langle a| e^{i\omega t} + |a\rangle\langle i| e^{-i\omega t}) \quad (5.30)$$

$$V_{af} = \frac{\hbar\Omega_{af}}{2} (|a\rangle\langle f| e^{i\omega t} + |f\rangle\langle a| e^{-i\omega t}) \quad (5.31)$$

Alors, dans la base  $\{|i\rangle, |a\rangle, |f\rangle\}$ , le hamiltonien s'écrit :

$$H = \begin{pmatrix} \hbar\omega_i & (\hbar\Omega_{ia}/2)e^{i\omega t} & 0 \\ (\hbar\Omega_{ia}/2)e^{-i\omega t} & \hbar\omega_a & (\hbar\Omega_{af}/2)e^{i\omega t} \\ 0 & (\hbar\Omega_{af}/2)e^{-i\omega t} & \hbar\omega_f \end{pmatrix} \quad (5.32)$$

### 5.2.2.2 Étude d'un cas pur

Dans cette partie, nous nous appuyerons sur les résultats théoriques de l'article de D. Kleppner [Gentile et al., 1989], présentant les résultats expérimentaux du processus d'oscillation de Rabi à deux photons dans la gamme des fréquences micro-ondes, entre les états de Rydberg de l'atome de calcium.

À partir de la figure 5.1, nous définissons les pulsations :  $\omega_{if} = \omega_i - \omega_f$ ,  $\omega_{af} = \omega_a - \omega_f$  et  $\omega_{ia} = \omega_i - \omega_a$ . Le désaccord par rapport à l'état relais  $|a\rangle$  est défini par :  $\Delta = \omega - \omega_{ia}$ . Le désaccord par rapport à la résonance à deux photons :  $\delta = 2\omega - \omega_{if} = \Delta + (\omega - \omega_{af})$ .

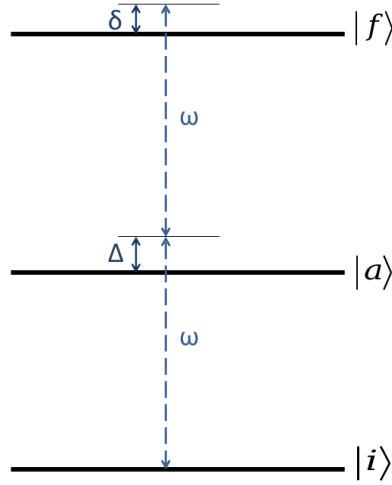


FIGURE 5.1 – Représentation des niveaux d'énergie pour une transition à deux photons de fréquence  $w$ .  $\Delta$  est le désaccord pour la résonance à un photon.  $\delta$  est le désaccord pour la résonance à deux photons.

L'état du système est décrit par le vecteur d'état :

$$|\psi(t)\rangle = b_i(t)e^{-i\omega_i t} |i\rangle + b_a(t)e^{-i\omega_a t} |a\rangle + b_f(t)e^{-i\omega_f t} |f\rangle \quad (5.33)$$

L'équation de Schrödinger dépendante du temps pour le hamiltonien 5.32, dans l'approximation de l'onde tournante, permet d'écrire les équations différentielles couplées pour les coefficients  $b_i$ ,  $b_f$  et  $b_a$ .

Pour le cas général ( $\delta \neq 0$ ), sous les approximations suivantes :  $\delta \ll \Delta$  et  $\Omega_{ia}^2, \Omega_{af}^2$ , qui expriment que la probabilité de transition à un photon entre l'état initial et l'état relais doit être négligeable, une formule analytique est obtenue par élimination adiabatique de l'état relais. Si l'état initial du système est  $|i\rangle$ , alors la probabilité de trouver l'atome dans l'état final  $|f\rangle$  à un instant  $t$  est donnée par :

$$|b_f(t)|^2 \approx \frac{\Omega_{R2}^2}{\Omega_2^2} \sin^2 \left( \frac{1}{2} \Omega_2 t \right) \quad (5.34)$$

avec :

$$\begin{aligned} \Omega_{R2} &= \frac{\Omega_{ia}\Omega_{af}}{2\Delta} \\ \Omega_2^2 &= \Omega_{R2}^2 + (\delta - \delta'_{if})^2 \\ \delta'_{if} &= \frac{\Omega_{af}^2 - \Omega_{ia}^2}{4\Delta} \end{aligned} \quad (5.35)$$

### 5.2.2.3 Mélange statistique de cas purs : formalisme de la matrice densité

La description des états par l'opérateur densité est un outil permettant de décrire de nombreuses situations rencontrées en physique lorsqu'un système n'est pas isolé de

son environnement. Notamment lorsque le système étudié est une partie d'un plus grand ensemble (isolé) : élément d'un ensemble statistique. Si l'évolution du système est gouverné par un hamiltonien  $H$ , l'évolution temporelle de la matrice densité est régie par l'équation de Schrödinger<sup>2</sup> :

$$i\hbar\dot{\rho} = [H, \rho] \quad (5.36)$$

- Pour un cas pur,  $|\psi_k(t)\rangle = b_1(t)|i\rangle + b_2(t)|a\rangle + b_3(t)|f\rangle$ , la matrice densité pour le système à trois niveaux est définie par  $\rho_k(t) = |\psi_k(t)\rangle\langle\psi_k(t)|$ .

La moyenne d'un opérateur (ou d'une observable)  $A$  pour un cas pur s'écrit :

$$\langle A \rangle_k(t) \equiv \text{Tr}(\rho_k(t)A) \quad (5.37)$$

- Dans le cas d'un mélange statistique, la matrice densité s'écrit :  $\rho(t) = \sum_k p_k \rho_k(t)$ ,  $p_k$  étant le poids statistique de la matrice densité  $\rho_k(t)$  pour le cas pur  $k$ . Par le formalisme de la matrice densité, la variance d'une mesure d'une observable  $A$  d'un mélange statistique, s'écrit :

$$\Delta A(t)^2 = \left( \sum_k p_k \langle A^2 \rangle_k(t) \right) - \left( \sum_k p_k \langle A \rangle_k(t) \right)^2 \quad (5.38)$$

Sous cette forme, la variance d'une observable tient compte de la dispersion 'classique' liée à la préparation de l'ensemble (dispersion des valeurs moyennes de l'observable pour les différentes composantes du mélange) ainsi que de l'incertitude fondamentale liée à la mesure quantique (bruit de projection quantique).

#### 5.2.2.4 Simulation de la variance

Cette partie est redondante avec la partie théorique développée en 5.1.2, en effet, la connaissance de la probabilité de transfert permet de déduire directement par la théorie la valeur de la variance. Nous justifions une simulation numérique de la probabilité de transfert ainsi que de la variance par les points suivants. Nous voulons vérifier d'une part, les gammes de paramètres de désaccord par rapport à l'état relais  $\Delta$  et de couplage  $\Omega$  pour lesquels l'état relais est très peu peuplé. Ceci permet d'atteindre une probabilité de transfert vers l'état final d'environ 1, permettant d'observer aussi une oscillation d'amplitude maximale de la variance en fonction du temps d'application du couplage  $\Omega$ . D'autre part, nous voulons vérifier que l'oscillation de la variance en fonction du temps d'application du couplage est toujours significative lorsque nous tenons compte d'un bruit statistique de détection. Enfin, la maîtrise de ces simulations dans le cas simple d'une transition à deux photons appliquée à un atome sera utile dans le cas des transitions à deux photons appliqués aux systèmes plus compliqués de paire d'atomes (partie 5.6) pour lesquels la fluctuation quantique théorique n'est pas donnée.

---

2. Les expressions 5.32 et 5.36 sont le point de départ pour dériver les équations de Bloch-optique pour un système à trois niveaux en échelle.

Nous résolvons donc numériquement l'équation de Schrödinger dépendant du temps, équation 5.36, en considérant le hamiltonien 5.32, pour les populations de chacun des trois niveaux (c'est à dire les éléments diagonaux de la matrice densité) pour un processus d'absorption résonnant à deux photons ( $\delta = 0$ ). La figure 5.2 représente l'évolution des populations des trois états atomiques pour ce processus à résonance où, à  $t = 0$  tous les atomes sont dans l'état initial. Nous observons bien un transfert quasiment complet entre l'état initial et l'état final, l'état intermédiaire étant faiblement peuplé. La fréquence de Rabi est en accord avec la fréquence de Rabi obtenue à partir des formules analytiques 5.34 et 5.35.

Afin de mettre en évidence le bruit de projection quantique pour une transition à deux photons par l'intermédiaire d'un état relais, nous choisissons de simuler le processus de mesure, permettant aussi de prendre en compte un bruit statistique de détection représenté par une loi normale centrée en 0 et d'écart type  $\sigma_{\mathcal{N}}$ . La mesure consiste à mesurer l'état final représentée par l'observable :

$$O_1 = |f\rangle\langle f|$$

Dans la base  $\{|i\rangle, |a\rangle, |f\rangle\}$ , l'observable mesurée est représentée par la matrice :

$$O_1 = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (5.39)$$

Partant d'un cas pur où les atomes sont préparés dans l'état initial, nous connaissons la probabilité de mesurer un atome dans l'état final,  $p_f(t)$  à chaque temps, figure 5.2. Pour simuler la mesure de l'observable  $O_1$  d'une assemblée de  $N$  atomes, nous réalisons  $N$  tirages aléatoires d'une épreuve de Bernoulli de probabilité  $p_f(t)$ , puis nous sommes ces  $N$  réalisations (représentant le signal atomique). Nous effectuons cette opération  $N_{stat}$  fois à chaque pas de temps afin d'accumuler de la statistique. Alors, pour chaque pas de temps, soit pour chaque valeur de probabilité de mesurer un atome dans l'état final  $p_f(t)$ , les  $N_{stat}$  variances simulées correspondent à  $N_{stat}$  expériences de mesure sur une assemblée de  $N$  atomes, donnée par 5.6. La variance du signal est représentée sur la figure 5.3, ici dans le cas de l'évolution de l'état initial en fonction du temps pour  $\sigma_{\mathcal{N}}=0.01$  (en bleu), 0.05 (en violet), 0.1 (en vert).

Nous observons bien une variance plus grande autour de la valeur moyenne de la probabilité, lorsque la probabilité vaut 0.5, et une variance plus petite lorsque la probabilité vaut 0 et 1, comme attendue par la formule 5.6. Nous pouvons conclure qu'un bruit statistique de détection ajoute un terme constant à la variance du signal de mesure de l'état final, mais l'oscillation de la variance en fonction du temps reste significative<sup>3</sup>.

### 5.2.3 Première mesure de la variance

Les détails expérimentaux de la génération et de l'application du champ micro-onde dans la zone d'interaction avec les atomes de Rydberg seront donnés dans la partie 5.4.

---

3. Nous observons que la variance simulée n'atteint pas  $\approx 0$  (dans le cas où  $\sigma_{\mathcal{N}}=0.01$ ) lorsque la probabilité de transfert pour l'état final atteint 1, cela est du à la faible population de l'état relais. Les oscillations rapides, dues à la population de l'état relais, sont plus prononcées lorsque la probabilité de transfert vers l'état final tend vers 1, que lorsqu'elle tend vers 0.

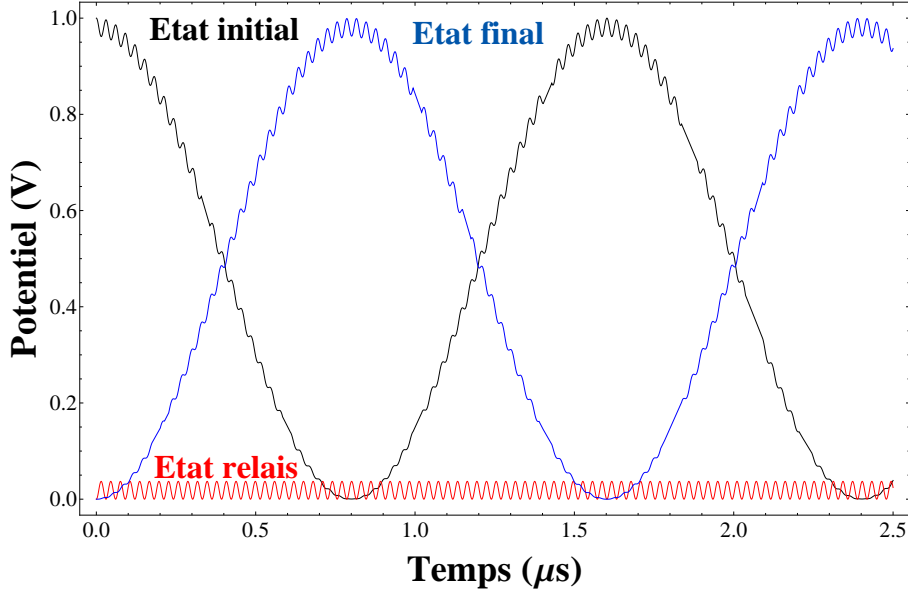


FIGURE 5.2 – Évolution des populations de l'état initial  $|i\rangle$ , de l'état intermédiaire  $|a\rangle$  et de l'état final  $|f\rangle$  en fonction du temps dans le cas d'une interaction à deux photons résonnante pour :  $\Omega_{ia} = \Omega_{af} = 20 \mu s^{-1}$ ,  $\Delta = 200 \mu s^{-1}$  et  $\delta = 0 \mu s^{-1}$ .

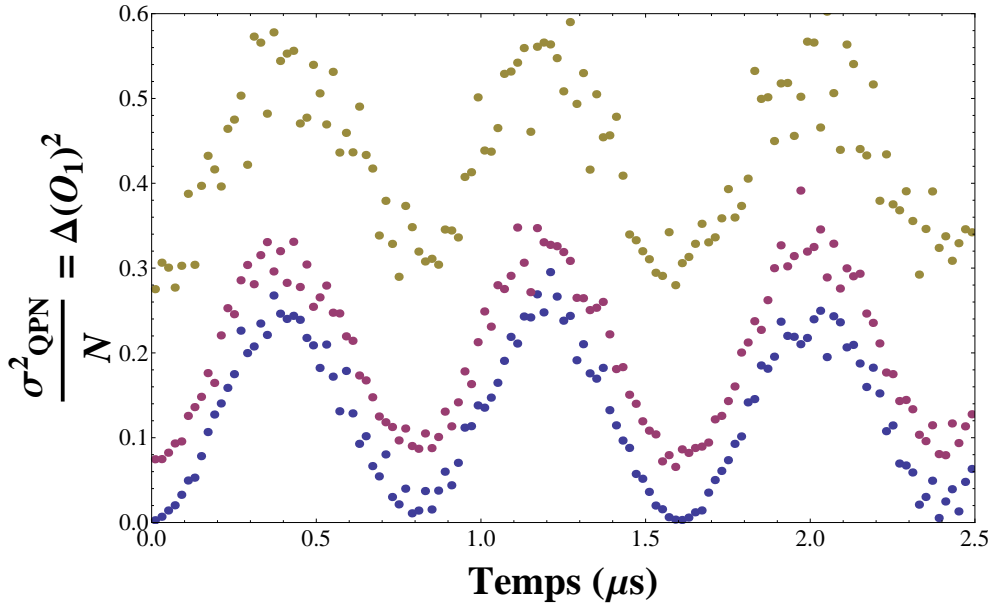


FIGURE 5.3 – Variance simulée d'une mesure de population dans l'état final en fonction du temps, pour un nombre d'atomes  $N = 30$ , reproduit  $N_{stat} = 300$  fois avec un bruit statistique de détection d'écart-type  $\sigma_N = 0.01$  (en bleu),  $0.05$  (en violet),  $0.1$  (en vert).

Nous utilisons une transition à deux photons  $47p_{3/2} \rightarrow 48p_{3/2}$  pour un jeu de paramètres correctement choisi (désaccord par rapport à la résonance et puissance dans la zone d'interaction avec les atomes de Rydberg) afin de réduire la période des oscillations de Rabi. Nous excitons les atomes dans l'état  $47p_0$  en champ électrique comme décrit dans la partie 5.4, puis nous appliquons le pulse de champ micro-onde et nous faisons varier la durée

d'application du pulse. Nous obtenons alors les oscillations de Rabi représentées en bleu sur la figure 5.4.

De même, nous excitons les atomes dans l'état  $48p_0$  en champ électrique, puis nous appliquons le pulse de champ micro-onde, dont nous faisons varier le temps d'application. Le résultat des oscillations de Rabi en émission stimulée est représenté en rose sur la figure 5.4.

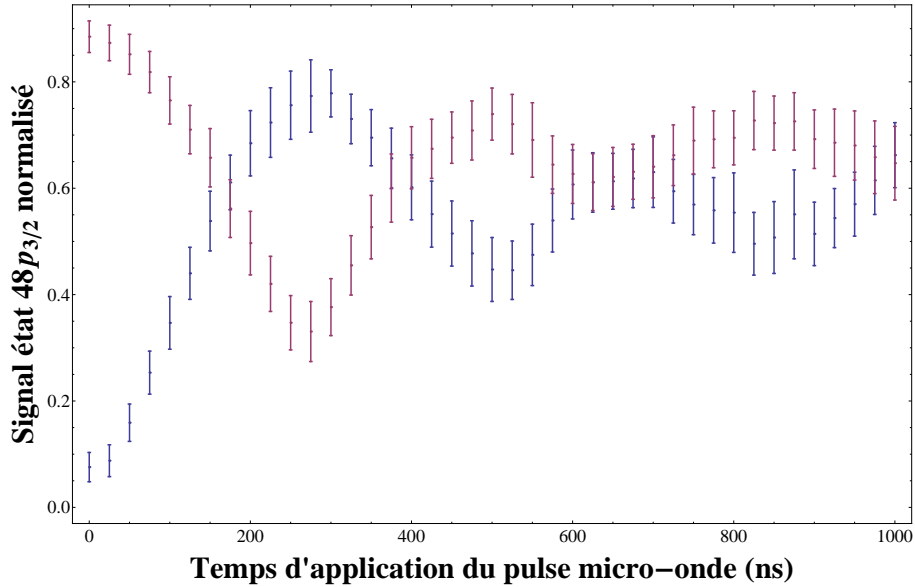


FIGURE 5.4 – Oscillation de Rabi pour un processus d'absorption à deux photons en bleu ( $47p_{3/2} \rightarrow 48p_{3/2}$ ) et pour un processus d'émission stimulée à deux photons en rose ( $48p_{3/2} \rightarrow 47p_{3/2}$ ). Nous représentons le signal d'ions provenant de l'ionisation de l'état  $48p_{3/2}$  normalisé en fonction du temps d'application du champ micro-onde. Les barres d'erreur des points représentent les écarts-types des mesures du signal de transfert (sur 500 points) pour toute la dispersion de production du signal total.

À chaque pas de temps, nous effectuons 500 réalisations d'une expérience. Pour une expérience, représentant une mesure sur un ensemble de  $N$  atomes, nous enregistrons le rapport du signal de production d'état  $48p_{3/2}$  sur le signal total correspondant aux états  $47p_{3/2}$  et  $48p_{3/2}$ . Pour chaque pas de temps, la probabilité de transfert représentée correspond à la moyenne sur 500 réalisations du signal d'état  $47p_{3/2}$  normalisé. Les barres d'erreur expérimentales des points représentées sur la figure 5.4 correspondent aux écarts types de la statistique de mesure sur les 500 réalisations à chaque pas de temps. Nous ne distinguons pas de tendance de la variation de l'écart-type en fonction de la probabilité de transfert. Nous pouvons donc conclure que sur ces 500 réalisations, le nombre d'atomes, soit le signal total fluctue trop et l'écart-type de la statistique de mesure est dominé par la fluctuation du nombre d'atomes. La fluctuation quantique est donc 'noyée' dans la fluctuation de la production des atomes du dispositif expérimental.

Il est donc nécessaire de développer un modèle correspondant à la mesure du signal de l'état final tenant compte de la fluctuation du nombre d'atomes dans la statistique de mesure ainsi que des bruits statistiques du système de détection. Ce modèle est développé



dans la partie suivante (5.3).

### 5.3 Modélisation de l'expérience pour l'analyse

Afin d'exploiter les résultats expérimentaux, nous devons tenir compte des bruits statistiques de détection afin de pouvoir différencier, dans l'analyse des signaux, les différentes natures de bruits et ainsi extraire le bruit correspondant au bruit de projection quantique. Dans cette partie, nous ne donnerons pas les détails de calcul, simplement la démarche suivie ainsi que les résultats analytiques finaux permettant de simuler les résultats expérimentaux.

Dans une expérience, nous considérons  $N$  atomes. Le nombre d'atomes transférés par le processus d'oscillation de Rabi à deux photons noté  $N_f$ , est une variable aléatoire qui suit donc une loi binomiale de paramètres  $N$  et  $p$  où  $p$  est la probabilité pour un atome (élément de l'ensemble) d'être transféré dans l'état final. Nous introduisons 3 paramètres expérimentaux :

- le paramètre  $\beta$  étant le facteur entre le nombre d'atomes et le signal mesuré, il est relié directement au facteur  $g$ , pour un volume donné, que nous avons mesuré expérimentalement dans l'analyse du processus de transition Landau-Zener, voir le chapitre 4.
- les variables aléatoires  $B1$  et  $B2$  représentent le bruit statistique de détection pour les deux boîtes d'intégration du signal. Ces deux variables aléatoires suivent une loi normale centrée en 0 et d'écart type noté respectivement,  $\sigma_1$  et  $\sigma_2$ . Nous rappelons que notre séquence d'ionisation par champ électrique pulsé permet de distinguer en temps d'arrivée les signaux provenant de l'ionisation des atomes dans les états  $47p$  et  $48p$ . Chaque signal est ainsi intégré séparément dans le temps dans ce que nous appelons 'boîte d'intégration'.

Dans le cas d'une assemblée de  $N$  atomes, le bruit de projection quantique est proportionnel à  $N = \beta \times S^{tot}$ . Nous allons donc analyser les données expérimentales par tranches de signal total. Nous devons alors calculer la moyenne  $\langle S^f = y | S^{tot} = x \rangle$  et la variance du signal  $\Delta^2 (S^f = y | S^{tot} = x)$  donnée par la densité de probabilité conditionnelle  $\mathcal{P}(S^f = y | S^{tot} = x)$  de mesurer la valeur  $y$  pour le signal de transfert sachant que le signal total a pour valeur  $x$ . Nous devons donc calculer le premier moment et le deuxième moment de la distribution ayant pour densité de probabilité  $\mathcal{P}(S^f = y | S^{tot} = x)$  :

$$\int y \mathcal{P}(S^f = y | S^{tot} = x) dy \quad (5.40)$$

$$\int y^2 \mathcal{P}(S^f = y | S^{tot} = x) dy \quad (5.41)$$

En tenant compte des bruits de détection, le signal total (somme des deux boîtes d'intégration) et le signal correspondant au transfert de la population atomique par le processus d'oscillation de Rabi à deux photons, sachant que l'ensemble contient  $N$  atomes, s'écrivent :

$$S^{tot} = \beta^{-1}N + B1 + B2 \quad (5.42)$$

$$S^f = \beta^{-1}N_f + B1 \quad (5.43)$$

Nous exprimons les densités de probabilités des lois de probabilité associées au signal total  $S^{tot}$  et au signal transféré par le processus d'oscillation de Rabi à deux photons  $S^f$  :

$$\begin{aligned} \mathcal{P}(S^{tot} = x | N \cap B1 = b1) &= \text{PDF} [\mathcal{N}((\beta^{-1}N + b1), \sigma_2), x] \\ &= \frac{1}{\sigma_2 \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(x - \beta^{-1}N - b1)^2}{2\sigma_2^2}} \end{aligned} \quad (5.44)$$

$$\begin{aligned} \mathcal{P}(S^f = y | N \cap B1 = b1) &= \text{PDF} [\mathcal{B}(N, p), E(\beta(y - b1))] \\ &= (1 - p)^{N - E(\beta(y - b1))} p^{E(\beta(y - b1))} \binom{N}{E(\beta(y - b1))} \end{aligned} \quad (5.45)$$

où  $E(X)$  désigne la partie entière de la variable  $X$  et  $\binom{N}{p}$  est le nombre de combinaisons de  $p$  éléments d'un ensemble de  $N$  éléments.

Alors, la densité de probabilité d'obtenir dans l'expérience les signaux  $S^f$  et  $S^{tot}$  s'écrit à partir des densités de probabilités 5.44 et 5.45 comme :

$$\mathcal{P}(S^{tot} = x \cap S^f = y) = \int \mathcal{P}(N) dN \int \mathcal{P}_{B1}(b1) db1 \mathcal{P}(S^{tot} = x | N \cap B1 = b1) \mathcal{P}(S^f = y | N \cap B1 = b1) \quad (5.46)$$

où  $\mathcal{P}_{B1}$  représente la densité de probabilité de la loi de probabilité pour la variable aléatoire  $b1$ , soit :

$$\mathcal{P}_{B1} = \text{PDF} [\mathcal{N}(0, \sigma_1), b1] \quad (5.47)$$

et  $\mathcal{P}(N)$  représente la densité de probabilité associée à la loi de probabilité décrivant la production du nombre d'atome dans une expérience. Il s'agit d'un paramètre expérimental dont la loi de probabilité est difficilement accessible. Pour obtenir les expressions du premier moment et du deuxième moment, nous considérerons que la distribution  $\mathcal{P}(N)$  est continue et uniforme, alors :

$$\mathcal{P}(N) \equiv \begin{cases} 1 & \text{si } N > 0 \\ 0 & \text{si } N < 0 \end{cases} \quad (5.48)$$

La distribution uniforme, utilisée pour modéliser la distribution du nombre d'atomes  $N$  dans une expérience, n'est bien sûr pas réaliste. Le nombre d'atomes produit par expérience atteint une valeur maximale.

Après intégration sur la variable aléatoire  $b1$ , nous trouvons pour l'expression de  $\mathcal{P}(S^{tot} = x \cap S^f = y)$  (formule 5.46) l'expression suivante :

$$\mathcal{P}(S^{tot} = x \cap S^f = y) = \int dNP(N) \frac{e^{-\frac{(x-N/\beta)^2}{2(\sigma_1^2 + \sigma_2^2)}}}{2\sqrt{2\pi}\sqrt{\sigma_1^2 + \sigma_2^2}} \quad (5.49)$$

$$\sum_{k=0}^N (1-p)^{N-k} p^k \binom{N}{k} [f(x, N, y, k+1) - f(x, N, y, k)] \quad (5.51)$$

$$\text{avec : } f(x, N, y, k) = \text{Erf} \left[ \frac{(x-N/\beta)\sigma_1^2 - (y-k/\beta)(\sigma_1^2 + \sigma_2^2)}{\sigma_1\sigma_2\sqrt{2}\sqrt{\sigma_1^2 + \sigma_2^2}} \right]$$

Enfin, pour exprimer  $\mathcal{P}(S^f = y | S^{tot} = x)$  nous utilisons l'expression de la probabilité conditionnelle :

$$\mathcal{P}(S^f = y | S^{tot} = x) = \frac{\mathcal{P}(S^f = y \cap S^{tot} = x)}{P_{S^{tot}}(x)} \quad (5.52)$$

où  $P_{S^{tot}}(x)$  est la probabilité que la variable  $S^{tot}$  prenne la valeur  $x$ . Elle peut s'exprimer par :

$$P_{S^{tot}}(x) = \int dy \mathcal{P}(S^f = y \cap S^{tot} = x) \quad (5.53)$$

En utilisant l'hypothèse d'une distribution continue et uniforme du signal, à partir de 5.48, on trouve :

$$P_{S^{tot}}(x) = \frac{1}{2} \left[ 1 + \text{Erf} \left( \frac{x}{\sqrt{2}\sqrt{\sigma_1^2 + \sigma_2^2}} \right) \right] \quad (5.54)$$

### 5.3.1 Moyenne du signal

#### 5.3.1.1 Expression générale

La moyenne du signal de transfert par le processus d'oscillation de Rabi pour une valeur donnée de  $S^{tot}$ , c'est-à-dire, la valeur moyenne du signal  $S^f$  sachant que  $S^{tot} = x$  s'écrit par définition :

$$\langle S^f = y | S^{tot} = x \rangle = \frac{\int y \mathcal{P}(S^f = y | S^{tot} = x) dy}{\int \mathcal{P}(S^f = y | S^{tot} = x) dy} \quad (5.55)$$

Le premier moment s'exprime à partir des formules 5.49 et 5.53, en prenant une distribution continue et uniforme pour  $S^{tot}$  (formule 5.54), nous trouvons :

$$\int y \mathcal{P}(S^f = y | S^{tot} = x) dy = \frac{1/(2\beta) + px}{2} \left[ 1 + \text{Erf} \left( \frac{x}{\sqrt{2}\sqrt{\sigma_1^2 + \sigma_2^2}} \right) \right] + (p(\sigma_1^2 + \sigma_2^2) - \sigma_1^2) \frac{e^{-\frac{x^2}{2(\sigma_1^2 + \sigma_2^2)}}}{\sqrt{2\pi}\sqrt{\sigma_1^2 + \sigma_2^2}} \quad (5.56)$$

Alors, la moyenne s'exprime à partir de 5.54 et 5.56 :

$$\langle S^f = y | S^{tot} = x \rangle = \frac{\beta^{-1}}{2} + px + (p(\sigma_1^2 + \sigma_2^2) - \sigma_1^2) \frac{\frac{e^{-\frac{x^2}{2(\sigma_1^2 + \sigma_2^2)}}}{\sqrt{2\pi}\sqrt{\sigma_1^2 + \sigma_2^2}}}{\frac{1}{2} \left[ 1 + \text{Erf} \left( \frac{x}{\sqrt{2}\sqrt{\sigma_1^2 + \sigma_2^2}} \right) \right]} \quad (5.57)$$

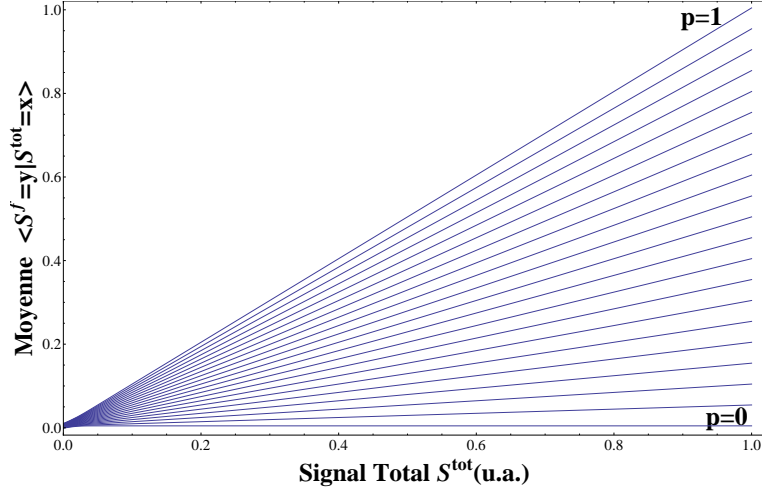


FIGURE 5.5 – Valeur moyenne du signal de transfert  $S^f$  en fonction du signal total  $S^{tot}$  pour différentes probabilités de transfert  $p = 0 \dots 1$  (pas de 0.05). Les paramètres utilisés sont les suivants :  $\beta = 110$  et  $\sigma_1 = \sigma_2 = 0.1$ .

La figure 5.5 représente la moyenne du signal de transfert par le processus d'oscillation de Rabi à deux photons  $\langle S^f = y | S^{tot} = x \rangle$ , donné par la formule 5.57, en fonction du signal total  $S^{tot} = x$ , pour les différentes probabilités de transfert :  $p = 0 \dots 1$  (tous les 0.05). Nous distinguons deux comportements :

- à haut signal, la variation est affine en fonction du signal total, de pente  $p$  et les droites possèdent une ordonnée à l'origine.
- à bas signal, comme représentée sur la figure 5.6, la variation n'est plus linéaire. Les différentes courbes correspondantes à différents  $p$  ne convergent pas vers 0. La valeur en  $S^{tot} = 0$  dépend de  $p$ ,  $\sigma_1$ ,  $\sigma_2$  et  $\beta$ .

### 5.3.1.2 Expression de la partie affine

Pour l'ajustement des données expérimentales, nous nous intéresserons à la partie affine de la moyenne du signal de transfert dont la pente donne la valeur de la probabilité de transfert pour le processus d'oscillation de Rabi à deux photons. En effet à haut signal, avec :

$$\frac{\frac{e^{-\frac{x^2}{2(\sigma_1^2 + \sigma_2^2)}}}{\sqrt{2\pi}\sqrt{\sigma_1^2 + \sigma_2^2}}}{\frac{1}{2} \left( 1 + \text{Erf} \left( \frac{x}{\sqrt{2}\sqrt{\sigma_1^2 + \sigma_2^2}} \right) \right)} \ll 1 \quad (5.58)$$

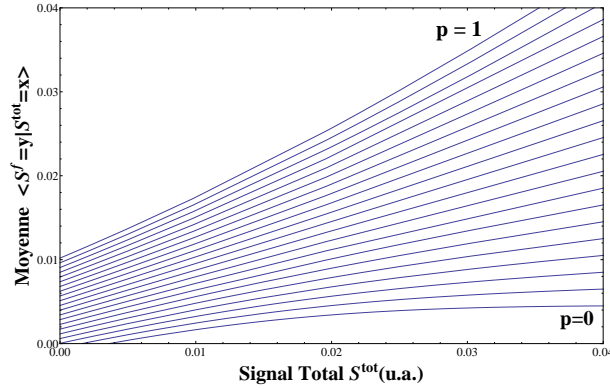


FIGURE 5.6 – Valeur moyenne du signal de transfert  $S^f$  en fonction du signal total  $S^{tot}$ , à bas signal total, pour les mêmes conditions que pour la figure 5.5.

Alors, l'expression 5.57 se réduit à :

$$\langle S^f = y | S^{tot} = x \rangle \xrightarrow{x \rightarrow \infty} \frac{1}{2\beta} + px \quad (5.59)$$

Dans la partie linéaire de la valeur moyenne du signal de transfert (à haut signal total), la variation est affine avec le signal total de pente  $p$ , et l'ordonnée à l'origine ne dépend que du paramètre  $\beta$ .

## 5.3.2 Variance du signal

### 5.3.2.1 Expression générale

La variance du signal de transfert par le processus d'oscillation de Rabi,  $\Delta^2 (S^f = y | S^{tot} = x)$ , pour une valeur donnée de  $S^{tot}$ , c'est-à-dire, la variance du signal  $S^f$  sachant que  $S^{tot} = x$  s'écrit par définition :

$$\Delta^2 (S^f = y | S^{tot} = x) = \langle (S^f = y | S^{tot} = x)^2 \rangle - (\langle S^f = y | S^{tot} = x \rangle)^2 \quad (5.60)$$

avec :

$$\langle (S^f = y | S^{tot} = x)^2 \rangle = \frac{\int y^2 \mathcal{P}(S^{tot} = x | S^f = y) dy}{\int \mathcal{P}(S^{tot} = x | S^f = y) dy} \quad (5.61)$$

Le deuxième moment s'exprime à partir des formules 5.49 et 5.53 en prenant une distribution continue et uniforme pour  $S^{tot}$  (formule 5.54), nous trouvons :

$$\begin{aligned}
 \int y^2 \mathcal{P}(S^f = y | S^{tot} = x) dy &= \frac{1 + \operatorname{Erf}\left(\frac{x}{\sqrt{\sigma_1^2 + \sigma_2^2}}\right)}{2} \left[ \frac{\sigma_1^2 \sigma_2^2}{\sigma_1^2 + \sigma_2^2} + \frac{1}{3\beta} + \frac{1}{\beta} (p(1-p) + p)x + p^2 x^2 \right] \\
 &- (\sigma_1^2 + \sigma_2^2) \frac{e^{-\frac{x^2}{2(\sigma_1^2 + \sigma_2^2)}}}{\sqrt{2\pi\sqrt{\sigma_1^2 + \sigma_2^2}}} \left[ \frac{\sigma_1^2 (1/\beta + px)}{\sigma_1^2 + \sigma_2^2} - \frac{1}{\beta} (p(1-p) + p) - 2p^2 x \right] \\
 &+ (\sigma_1^2 + \sigma_2^2) \left( \frac{1 + \operatorname{Erf}\left(\frac{x}{\sqrt{\sigma_1^2 + \sigma_2^2}}\right)}{2} - x \frac{e^{-\frac{x^2}{2(\sigma_1^2 + \sigma_2^2)}}}{\sqrt{2\pi\sqrt{\sigma_1^2 + \sigma_2^2}}} \right) \\
 &\quad \left[ \frac{2\sigma_1^2 p}{\sigma_1^2 + \sigma_2^2} + \left( \frac{\sigma_1^2}{\sigma_1^2 + \sigma_2^2} \right)^2 + p^2 \right] \tag{5.62}
 \end{aligned}$$

Alors le deuxième moment normalisé, expression 5.61, s'exprime à partir des formules 5.54 et 5.62, nous trouvons :

$$\begin{aligned}
 \left\langle (S^f = y | S^{tot} = x)^2 \right\rangle &= \left[ \frac{\sigma_1^2 \sigma_2^2}{\sigma_1^2 + \sigma_2^2} + \frac{1}{3\beta} + \frac{1}{\beta} (p(1-p) + p)x + p^2 x^2 + (\sigma_1^2 + \sigma_2^2) \left( p - \frac{\sigma_1^2}{\sigma_1^2 + \sigma_2^2} \right) \right] \\
 &+ \left[ \frac{\sigma_1^2 (1/\beta + px)}{\sigma_1^2 + \sigma_2^2} - \frac{1}{\beta} (p(1-p) + p) - 2p^2 x \right] \\
 &\times (\sigma_1^2 + \sigma_2^2) \frac{e^{-\frac{x^2}{2(\sigma_1^2 + \sigma_2^2)}}}{\sqrt{2\pi\sqrt{\sigma_1^2 + \sigma_2^2}}} \frac{2}{\left( 1 + \operatorname{Erf}\left(\frac{x}{\sqrt{\sigma_1^2 + \sigma_2^2}}\right) \right)} \\
 &- (\sigma_1^2 + \sigma_2^2) \left( p - \frac{\sigma_1^2}{\sigma_1^2 + \sigma_2^2} \right)^2 x \frac{e^{-\frac{x^2}{2(\sigma_1^2 + \sigma_2^2)}}}{\sqrt{2\pi\sqrt{\sigma_1^2 + \sigma_2^2}}} \\
 &\quad \frac{1}{2} \left( 1 + \operatorname{Erf}\left(\frac{x}{\sqrt{\sigma_1^2 + \sigma_2^2}}\right) \right) \tag{5.63}
 \end{aligned}$$

La figure 5.7 représente la variance du signal de transfert par le processus d'oscillation de Rabi à deux photons en fonction du signal total  $S^{tot} = x$ , pour les différentes probabilités de transfert :  $p = 0 \dots 1$  (tous les 0.05). La variance  $\Delta^2(S^f = y | S^{tot} = x)$  est donnée par la définition 5.60, et par les expressions 5.63 et 5.57. Comme pour la moyenne du signal, nous distinguons deux comportements :

- à haut signal, la variation est linéaire en fonction du signal total et les droites possèdent un offset.
- à bas signal, la variation n'est plus linéaire. Les différentes courbes ont un comportement qui dépend de  $\sigma_1$ ,  $\sigma_2$ ,  $p$  et  $\beta$ .

### 5.3.2.2 Expression de la partie linéaire

Pour l'ajustement des données expérimentales, nous nous intéresserons à la partie linéaire de la variance du signal de transfert. En effet, à haut signal, avec  $\frac{\sigma_1}{x}, \frac{\sigma_2}{x} \ll 1$  :

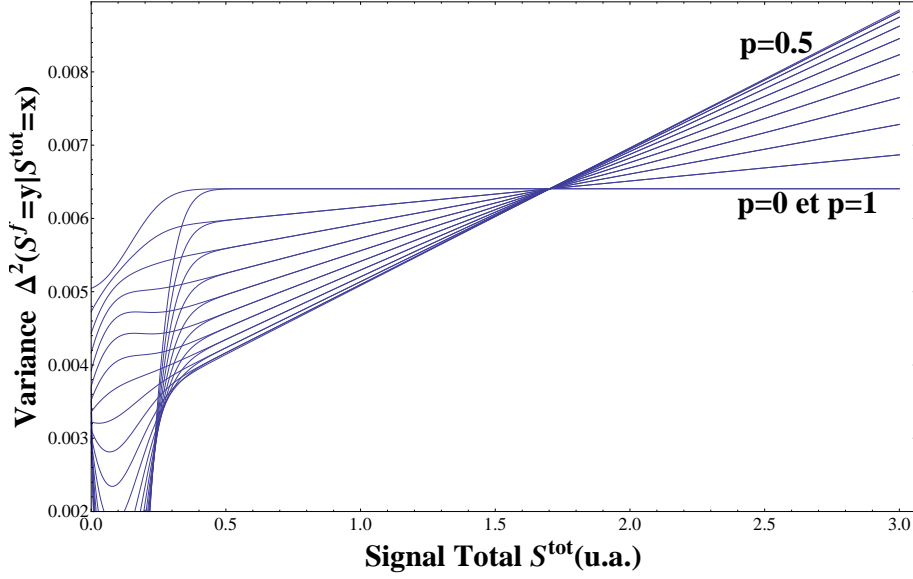


FIGURE 5.7 – Valeur de la variance du signal de transfert  $S^f$  en fonction du signal total  $S^{tot}$  pour différentes probabilités de transfert  $p = 0 \dots 1$  (pas de 0.05). Les paramètres utilisés sont les suivants :  $\beta = 133$  et  $\sigma_1 = \sigma_2 = 0.08$ .

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\frac{-\frac{x^2}{(\sigma_1^2 + \sigma_2^2)}}{e}}{\sqrt{2}\sqrt{\sigma_1^2 + \sigma_2^2}} \\ \frac{1}{2} \left( 1 + \text{Erf} \left( \frac{x}{\sqrt{2}\sqrt{\sigma_1^2 + \sigma_2^2}} \right) \right) \end{array} \right\} \ll 1$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\frac{-\frac{x^2}{(\sigma_1^2 + \sigma_2^2)}}{x e}}{\sqrt{2}\sqrt{\sigma_1^2 + \sigma_2^2}} \\ \frac{1}{2} \left( 1 + \text{Erf} \left( \frac{x}{\sqrt{2}\sqrt{\sigma_1^2 + \sigma_2^2}} \right) \right) \end{array} \right\} \ll 1$$

l'expression 5.60 se réduit à :

$$\Delta^2 (S^f = y | S^{tot} = x) = \frac{\sigma_1^2 \sigma_2^2 + (p\sigma_2^2 - (1-p)\sigma_1^2)^2}{\sigma_1^2 + \sigma_2^2} + \frac{\beta^{-2}}{12} + \beta^{-1} p(1-p)x \quad (5.64)$$

Nous pouvons conclure que, à haut signal, la variance du signal est linéaire en fonction de  $S^{tot}$  et possède une ordonnée à l'origine dépendante de  $\sigma_1^2$ ,  $\sigma_2^2$  et  $\beta$ . Soit, la variation de la dispersion des points en fonction du signal total est affine, la pente vaut :

$$a = \frac{p(1-p)}{\beta} \quad (5.65)$$

et possède une ordonnée à l'origine qui vaut :

$$b = \frac{\sigma_1^2 \sigma_2^2 + (p\sigma_2^2 - (1-p)\sigma_1^2)^2}{\sigma_1^2 + \sigma_2^2} + \frac{\beta^{-2}}{12} \quad (5.66)$$

Nous représentons sur la figure 5.8, le coefficient  $a$  en fonction de la probabilité  $p$ , il s'agit d'une parabole inversée dont le maximum est atteint pour  $p = 0.5$ .

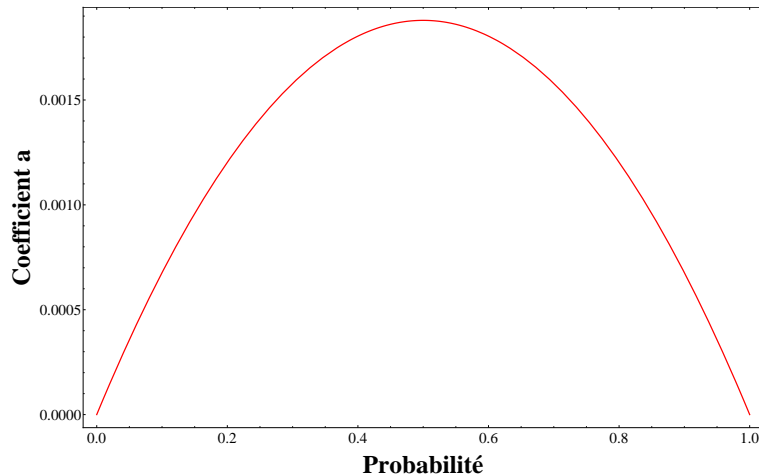


FIGURE 5.8 – Représentation du coefficient  $a$  en fonction de la probabilité de transfert pour les paramètres suivants :  $\beta = 133$  et  $\sigma_1 = \sigma_2 = 0.08$ .

Nous représentons sur la figure 5.9, le coefficient  $b$  en fonction de la probabilité  $p$ , il s'agit d'une parabole dont le minimum est atteint pour  $p = 0.5$  dont la valeur dépend de  $\sigma_1$ ,  $\sigma_2$  et  $\beta$ .

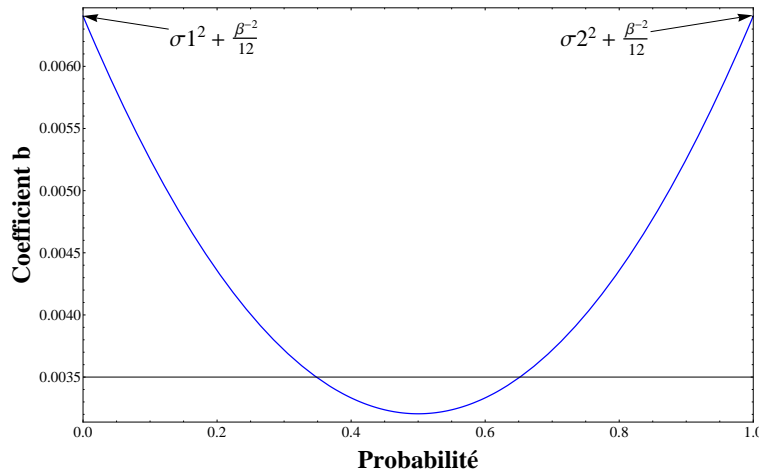


FIGURE 5.9 – Représentation du coefficient  $b$  en fonction de la probabilité de transfert pour les paramètres suivants :  $\beta = 133$  et  $\sigma_1 = \sigma_2 = 0.08$ .

### 5.3.3 Procédure pour l'analyse des données expérimentales

Nous simulons le signal de production d'un état final dont la probabilité de mesurer l'atome dans l'état final vaut  $p = 0.7$ . Nous tenons compte des bruits statistiques des boîtes d'intégration du signal. Nous obtenons bien une production linéaire d'état final en fonction du signal total, voir la figure 5.10. Nous suivons alors la procédure suivante :

- Un ajustement du signal de production en fonction du signal total par une droite affine (voir formule 5.59) permet d'extraire la valeur moyenne de la probabilité  $p$ .



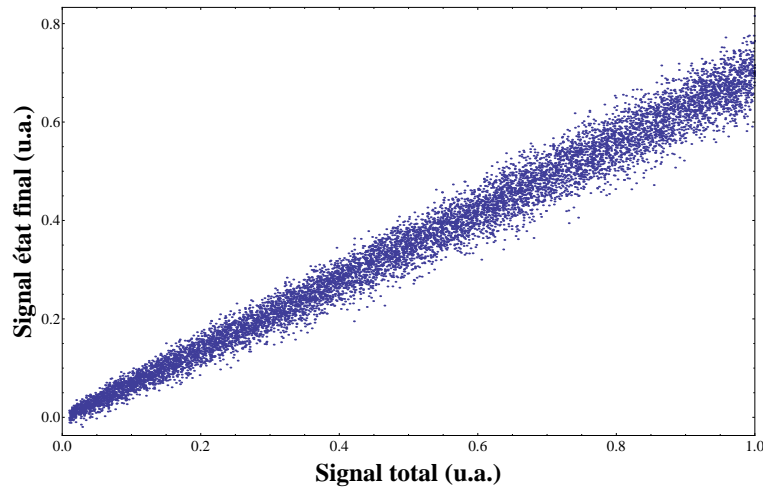


FIGURE 5.10 – Simulation du signal de transfert  $S^f$  en fonction du signal total  $S^{tot}$  pour un processus binomial de probabilité  $p = 0.7$ .

- Puis, afin d’analyser la dispersion du signal, nous utilisons les résidus de ce premier ajustement. Nous représentons sur la figure 5.11 les résidus pour l’ajustement du signal de la figure 5.10.

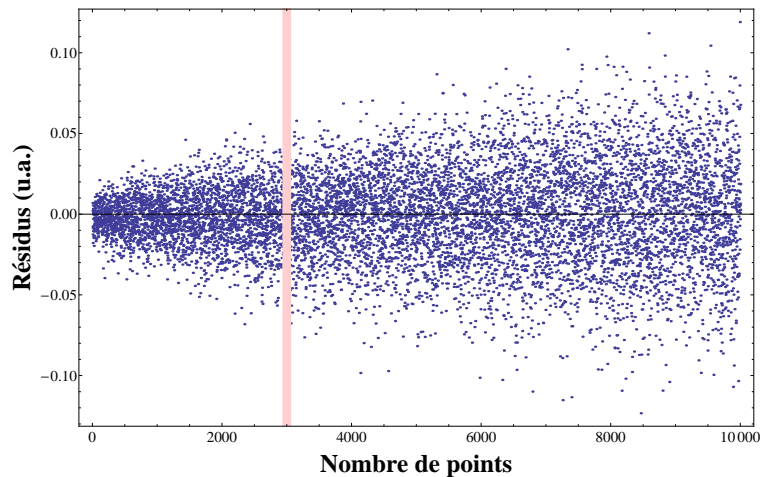


FIGURE 5.11 – Résidus de l’ajustement du signal de transfert (figure 5.10) par la fonction  $S^f = p \times S^{tot}$ .

Nous observons bien une variation en fonction du signal total. Nous relevons alors la valeur de la variance des résidus par tranche de signal total (une tranche est représentée, par exemple, en rouge en transparence sur la figure 5.10).

- Enfin, nous ajustons la variance des résidus en fonction du signal total par une droite affine :  $a \times S^{tot} + b$  où  $a$  et  $b$  sont les coefficients définis dans la partie 5.3.2.2.

## 5.4 Réalisation expérimentale

Afin de tester notre procédure de modélisation du bruit de projection quantique, nous utilisons un processus d'oscillation de Rabi à deux photons micro-onde entre les états de Rydberg  $47p_{3/2}$  et  $48p_{3/2}$  en champ électrique nul. Nous représentons sur la figure 5.12 les états  $47p$ ,  $48p$ ,  $48s$  ainsi que les états des multiplicités  $n = 46$  et  $n = 47$  en fonction du champ électrique. Les flèches représentent l'absorption de deux photons micro-onde pour la transition  $47p \rightarrow 48p$ .

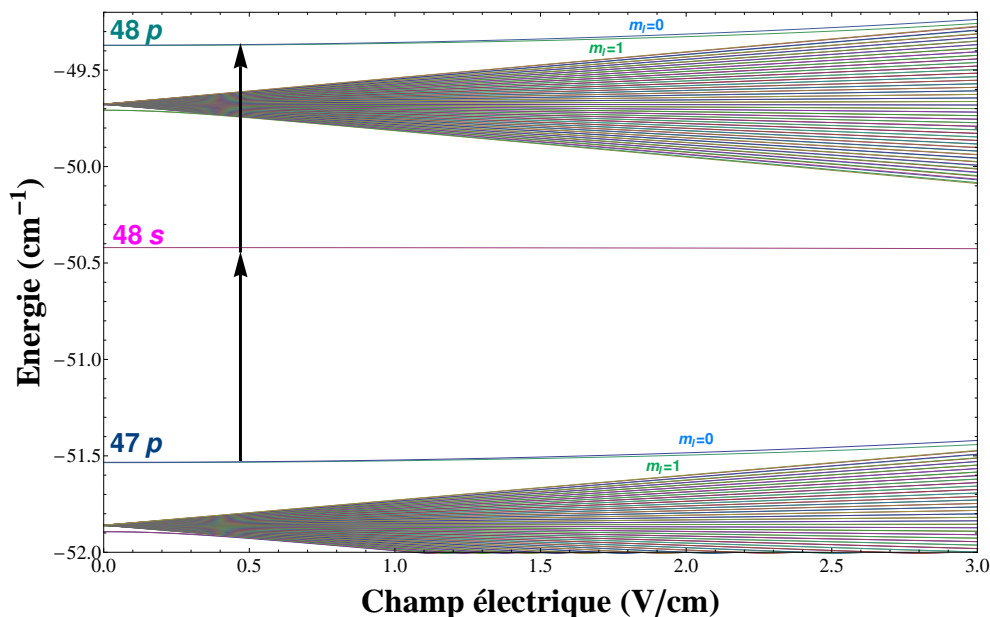


FIGURE 5.12 – Niveaux d'énergie des états  $47p$ ,  $48p$ ,  $48s$ , ainsi que des états des multiplicités  $n = 46$  et  $n = 47$  en fonction du champ électrique. Les flèches représentent l'absorption de deux photons micro-onde pour la transition  $47p \rightarrow 48p$ .

Le temps d'application d'un pulse de champ micro-onde permet de créer la superposition cohérente de choix entre les états (à un atome)  $48p_{3/2}$  et  $47p_{3/2}$ , par exemple pour une transition par absorption de deux photons micro-onde  $47p_{3/2} \rightarrow 48p_{3/2}$  :

$$|\psi\rangle = \sqrt{1-p} |47p_{3/2}\rangle + e^{i\phi} \sqrt{p} |48p_{3/2}\rangle$$

Nous pouvons donc faire varier la probabilité  $p$  de détecter un atome dans l'état final (ici  $48p_{3/2}$ ).

### 5.4.1 Dispositif expérimental

Nous utilisons le même dispositif expérimental lors des autres expériences présentées dans ce manuscrit, il s'agit donc du dispositif constitué de quatre plaques possédant un trou en leur centre, situées sur le trajet du jet supersonique d'atomes de Rydberg (partie 2.2.5.3 du chapitre 2). L'espace entre les plaques P1 et P2 est dédié à l'excitation laser dans un état de Rydberg, ici  $48p_0$  ou  $47p_0$  en champ électrique. L'espace entre les plaques P2 et P3 est dédié à l'interaction des atomes de Rydberg avec le champ micro-onde. L'espace entre les plaques P3 et P4 est dédié à l'ionisation par champ électrique pulsé

des atomes dans les états de Rydberg  $48p$  et  $47p$ . Nous utilisons la même séquence de ionisation par champ électrique pulsé mise en oeuvre pour les expériences présentées dans les chapitres 3 et 4, permettant de pouvoir distinguer par leurs temps d'arrivée les ions provenant de l'ionisation des atomes dans les états  $48p$  ou  $47p$ .

### 5.4.2 Génération du pulse de champ micro-onde

Nous générons un pulse de champ micro-onde à l'aide d'un générateur *Synthesized Signal Generator* de marque *Hewlett Packard*, de modèle 83731B 1-20 GHz. Il permet un contrôle fin et une haute stabilité de la fréquence micro-onde émise (résolution de 1kHz, taux de dérive de  $10^{-8}$  par jour.), de la puissance émise (résolution de 0.01 dB, précision de  $\pm 1.0$  dB) et du temps d'application du pulse (résolution inférieure à 25 ns) ainsi que de son délai (résolution inférieure à 100 ns). Le générateur est suivi d'un doubleur, d'un atténuateur, puis d'un cornet émettant le champ micro-onde. Le cornet se trouve à l'extérieur de l'enceinte et irradie toute la zone des quatre plaques à travers un hublot. La figure 5.13 représente schématiquement le dispositif de génération du pulse de champ micro-onde.

Nous n'utilisons pas de guide d'onde sur le trajet des atomes, ce qui signifie que la zone de champ micro-onde dans le dispositif expérimental n'est pas bien définie. Nous devons alors vérifier à l'aide du signal de transfert que la puissance micro-onde est homogène sur toute la zone d'interaction lors du vol des atomes de Rydberg du jet supersonique. Il est possible de trouver une telle zone en ajustant la position du cornet micro-onde.

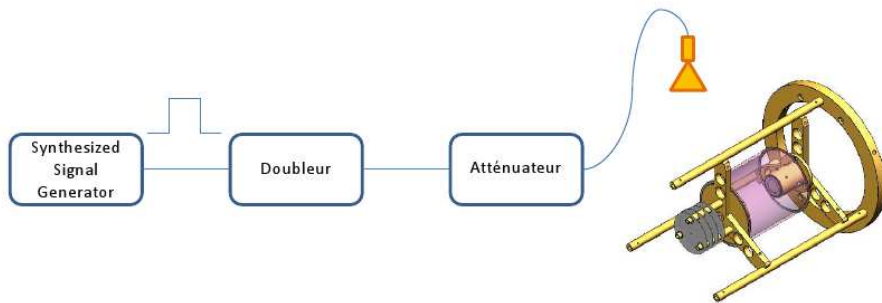


FIGURE 5.13 – Schéma représentant la génération du champ micro-onde et le cornet permettant d'irradier la zone d'interaction avec les atomes de Rydberg du jet supersonique.

### 5.4.3 Raies de transitions à deux photons micro-onde

Afin d'identifier les différentes raies de transitions à deux photons et d'estimer la puissance nécessaire, nous relevons les spectres des raies de transitions à deux photons pour trois puissances du champ micro-onde différentes.

Nous excitons les atomes dans l'état  $47p_0$  en champ électrique, à 4.16 V/cm ( $V_0 = 4.16$  V sur la plaque P1 avec un potentiel nul sur la plaque P2), puis nous les ramenons en champ électrique nul suffisamment lentement en temps, pour assurer un suivi adiabatique de l'état. L'état, en champ électrique nul, est donc l'état  $47p_{3/2}$ . Nous représentons sur la figure 5.14 l'allure du potentiel appliqué sur la plaque P2. Puis, en champ électrique

nul (entre P2 et P3), nous appliquons un pulse de champ micro-onde suffisamment long pour obtenir environ 50% de transfert vers les états  $48p_{1/2}$  ou  $48p_{3/2}$ , et nous faisons varier la fréquence du champ micro-onde. Les différents spectres correspondants aux trois puissances différentes sont représentés sur la figure 5.15

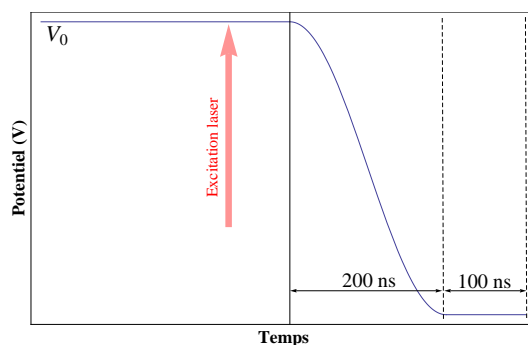


FIGURE 5.14 – Allure du potentiel appliqué sur la plaque P1 permettant d’exciter les atomes dans l’état  $np_j$  en champ électrique.

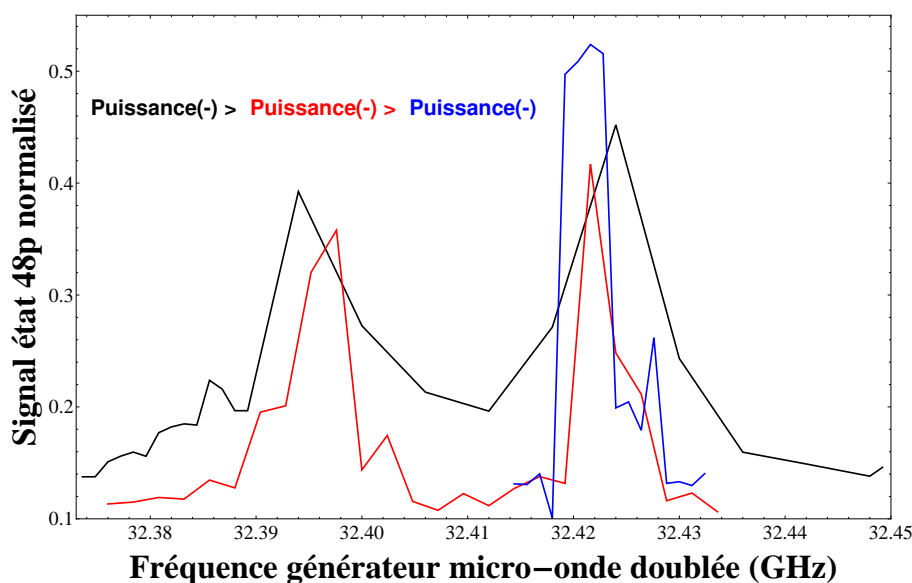


FIGURE 5.15 – Spectres des raies de transitions à deux photons à partir de l’état initial  $47p_{3/2}$  pour trois puissances relatives. Nous représentons le signal en fonction de la fréquence du champ micro-onde à la sortie du doubleur.

Nous observons bien un élargissement par puissance des raies de transitions à deux photons. Afin d’identifier les raies de transitions observées, nous utilisons les calculs théoriques des niveaux d’énergie des états de Rydberg (ici en champ électrique nul), nous trouvons :

$$\begin{aligned}
 47_{3/2} &\rightarrow 48p_{1/2} : \Delta\nu_{47p_{3/2} \rightarrow 48p_{1/2}} = 64.793 \text{ GHz} \\
 47p_{3/2} &\rightarrow 48p_{3/2} : \Delta\nu_{47p_{3/2} \rightarrow 48p_{3/2}} = 64.844 \text{ GHz}
 \end{aligned}$$

Expérimentalement, nous identifions correctement les raies de transitions micro-ondes à deux photons. De plus, à désaccord nul par rapport à l’état final pour une transition à

deux photons, le désaccord pour la transition à un photon micro-onde par rapport à l'état intermédiaire  $48s_{1/2}$  est de 955 MHz.

## 5.5 Résultats Expérimentaux

### 5.5.1 Nuages de Points

Nous utilisons la transition  $47p_{3/2} \rightarrow 48p_{3/2}$  par absorption de deux photons dans un jeu de désaccord par rapport à la résonance et de puissance correctement choisi. Pour chaque valeur de durée d'application du champ micro-onde, nous obtenons donc une production linéaire d'état  $48p_{3/2}$  en fonction du signal total. Du à la dispersion de la production d'atomes dans le dispositif expérimental, nous représentons la production d'atomes dans l'état  $48p_{3/2}$  sous la forme de nuages de points expérimentaux, comme représenté sur la figure 5.16 pour les temps d'application du champ micro-onde suivant :  $t(\text{mw})=0$  ns,  $t(\text{mw})=125$  ns et  $t(\text{mw})=275$  ns.

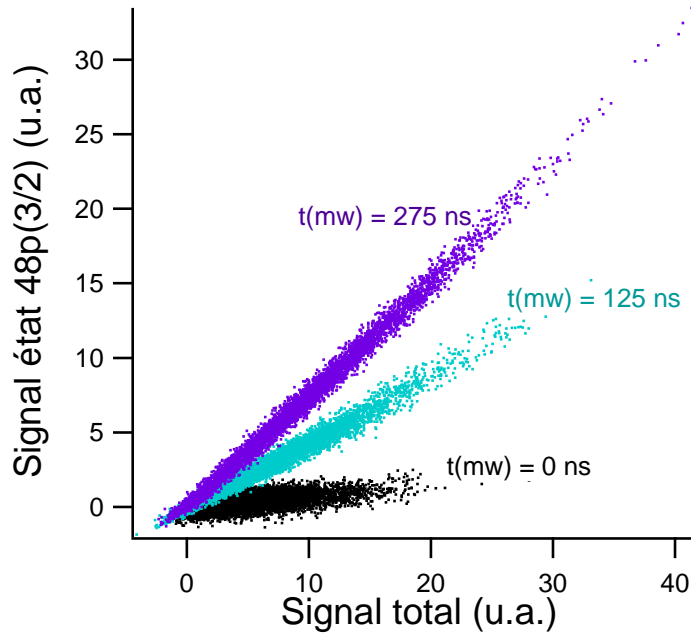


FIGURE 5.16 – Nuages de points expérimentaux représentant la production linéaire du signal d'ions provenant de l'ionisation de l'état  $48p_{3/2}$  en fonction du signal total pour différents temps d'application du champ micro-onde :  $t(\text{mw})=0$  ns,  $t(\text{mw})=125$  ns et  $t(\text{mw})=275$  ns.

Ces nuages de points sont utilisés pour appliquer la procédure décrite dans la partie 5.3.3 pour l'analyse de la variation de la dispersion du signal de production en fonction du signal total. Nous utilisons les points expérimentaux pour le signal total compris dans la gamme suivante : 2 à 15 (u.a.), là où la densité de points expérimentaux est suffisante. L'analyse en tranche se fait par groupe de 100 points expérimentaux.

Les résultats expérimentaux du premier ajustement, donnant la probabilité  $p$  de transfert par ce processus d'absorption à deux photons, sont représentés sur la figure 5.17. Nous

obtenons un maximum de transfert d'environ 74% pour  $t(\text{mw}) = 275$  ns. Nous pouvons observer une oscillation presque complète, en effet le signal de transfert retombe à seulement environ 20% à  $t(\text{mw}) = 525$  ns.

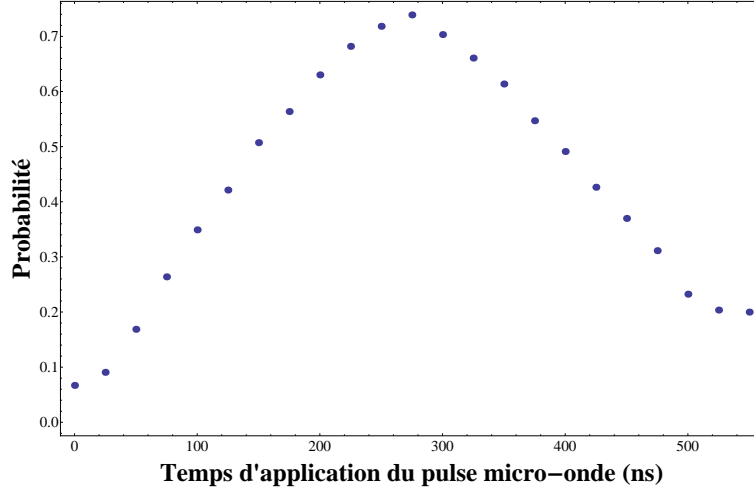


FIGURE 5.17 – Oscillation de Rabi utilisée pour la suite de l'analyse, représentée par la probabilité  $p$  (provenant du premier ajustement des nuages de points dans la procédure d'analyse) en fonction du temps d'application du champ micro-onde.

### 5.5.2 Dépendance de la variance expérimentale

De l'analyse de la variation de la dispersion, nous extrayons les valeurs expérimentales des coefficients  $a$  et  $b$  pour chaque valeur de durée d'application du champ micro-onde, soit pour chaque valeur de probabilité de transfert vers l'état final  $p$ . Rappelons que le coefficient  $a$  du modèle utilisé est directement proportionnel au bruit de projection quantique  $\sigma_{\text{QPN}}^2 = p(1 - p)$ . Le coefficient  $b$  du modèle, représentant l'ordonnée à l'origine de la variation de la variance du signal en fonction du signal total, varie avec  $p$  car nous n'utilisons que la variance du signal de transfert à haut signal total (partie linéaire).

- Le coefficient  $a$  expérimental est représenté sur la figure 5.18 en fonction de la probabilité de transfert  $p$ . Comme attendu, le bruit de projection quantique  $\sigma_{\text{QPN}}^2$  est maximal lorsque la probabilité de transfert  $p$  vaut 0.5, c'est-à-dire lorsque l'atome est dans une superposition cohérente de deux de ses états électroniques, à poids égaux. Le bruit de projection quantique diminue lorsque la probabilité de transfert approche 0 ou 1.

De plus, d'après la formule 5.64,  $a = \frac{\sigma_{\text{QPN}}^2}{\beta}$ , où  $\beta$  est défini par :  $N = \beta \times S^{\text{tot}}$  (nous assurons que nous ne saturons pas le détecteur, galettes de micro-canaux, et que le signal mesuré est linéaire en fonction du nombre d'atomes.). Alors, un simple ajustement du coefficient  $a$  en fonction de  $p$ , permet de déterminer avec une bonne précision le coefficient  $\beta$ <sup>4</sup>. Nous trouvons, pour notre expérience,  $\beta_{\text{exp}}^{-1} = 6.77$

4. Cet ajustement tient compte de tous les points expérimentaux, correspondant aux différents temps

pVs.ion<sup>-1</sup>, avec une déviation standard :  $\sigma_{\beta_{\text{exp}}^{-1}} = 0.16$  pVs.ion<sup>-1</sup>.

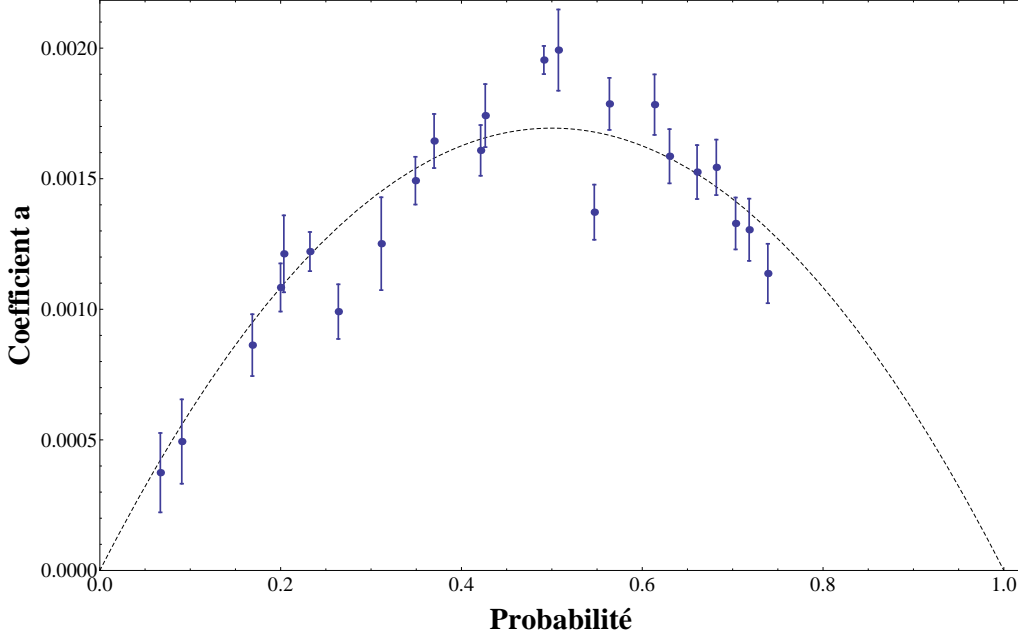


FIGURE 5.18 – Représentation du coefficient  $a$  expérimental en fonction de la probabilité de transfert  $p$ , en bleu. Les barres d’erreurs représentent la déviation standard de l’ajustement, du coefficient  $a$ , de la variation de la variance du signal en fonction du signal total. En traits noirs pointillés, nous avons représenté la fonction  $a = \frac{\sigma_{\text{QPN}}^2}{\beta_{\text{exp}}}$ .

- Le coefficient  $b$  expérimental est représenté sur la figure 5.19 en fonction de la probabilité de transfert  $p$ . Comme attendu, la variation avec la probabilité de transfert  $p$  est bien reproduite selon la formule 5.64. Cette variation dépend des bruits statistiques de mesure.

### 5.5.3 Conclusion partielle

Un modèle adapté pour une analyse en fonction du nombre d’atomes a permis de mettre en évidence le bruit de projection quantique pour une mesure de population lors d’une transition à deux photons entre deux états de Rydberg. Ce modèle fin permet de calibrer le système de détection pour un ion unique, sans le recours au régime de comptage. Pour notre système expérimental, nous avons calibré le système de détection en régime de comptage, nous trouvons  $\approx 8$  pVs.ion<sup>-1</sup>. Le résultat de la calibration du détecteur pour un ion unique par la méthode décrite précédemment est donc tout à fait en accord avec les mesures de calibration standard. Cette méthode est donc applicable à de nombreux systèmes, par exemple dans des jets moléculaires où les molécules présentent des transitions dans la gamme des fréquences micro-onde (OH [Hudson et al., 2006]).

---

d’application du pulse de champ micro-onde. Ceci est discuté en fonction de la génération du pulse, notamment aux temps courts mais ne change rien pour la méthode présentée.

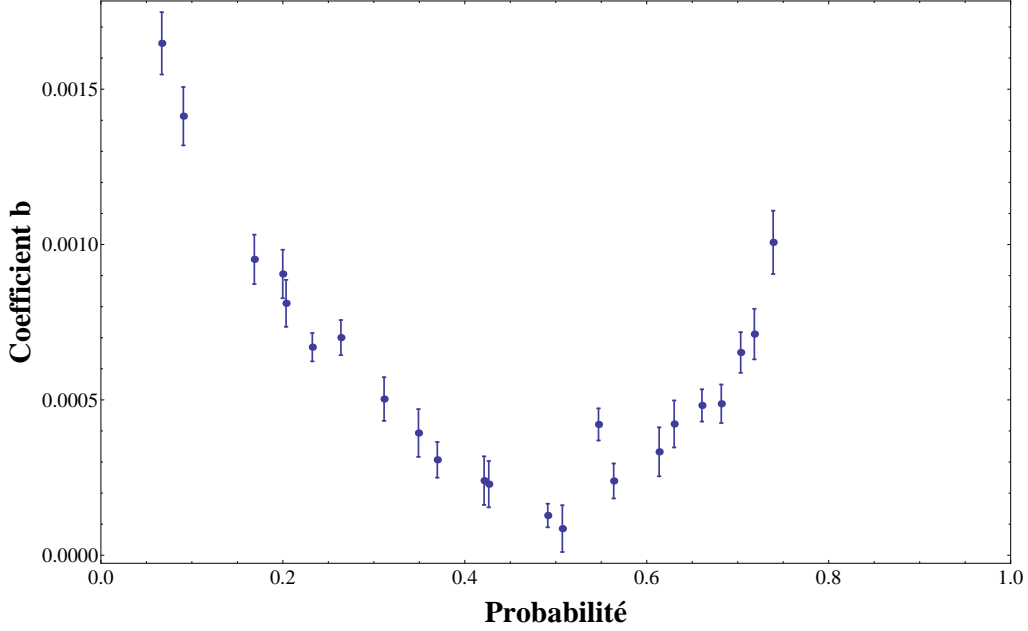


FIGURE 5.19 – Représentation du coefficient  $b$  expérimental en fonction de la probabilité de transfert  $p$ , en bleu. Les barres d'erreurs représentent la déviation standard de l'ajustement, du coefficient  $b$ , de la variation de la variance du signal en fonction du signal total.

## 5.6 Application pour l'intrication d'atomes de Rydberg

Dans cette dernière partie, nous voulons appliquer le principe de la mesure du bruit de projection quantique pour des paires d'atomes de Rydberg intriqués comme preuve de leur intrication.

Nous proposons donc une méthode pour mettre en évidence l'intrication des atomes d'une paire lorsqu'il n'est pas possible d'observer des oscillations de Rabi. La mesure du bruit de projection quantique lors d'un processus d'oscillation de Rabi et sa variation au cours du temps d'application du champ externe, soit avec la probabilité de transfert par absorption ou émission de deux photons micro-onde est une signature de la production d'une superposition cohérente d'états de paire d'atomes.

### 5.6.1 Production de paires d'atomes de Rydberg intriqués par transition Landau-Zener

Nous considérons les paires d'atomes de Rydberg dans l'état :  $npm_l - (n-1)pm'_l$  créées par transition Landau-Zener en champ électrique (autour d'une résonance de Förster). Pour cela, nous posons les hypothèses suivantes : nous pouvons isoler un des quatre croisements évités<sup>5</sup> et la probabilité de passage adiabatique au travers ce croisement évité vaut 1. Nous faisons donc l'hypothèse que nous pouvons transférer toutes les paires d'atomes de Rydberg de l'état  $ns_0 - ns_0$  vers un état donné  $npm_l - (n-1)pm'_l$ . Nous considérons alors la superposition cohérente produite suivante :

5. Nous rappelons que la structure des états  $np$  et  $(n-1)p$  fait apparaître quatre resonances entre les états de paire en champ électrique.



$$|0, 0\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|np0, (n-1)p0\rangle + |(n-1)p0, np0\rangle)$$

créée par passage adiabatique à travers le premier croisement évité lorsque l'état initial est l'état de paire  $|ns0, ns0\rangle$  et que la dérivée temporelle du champ électrique est positive, comme le montre schématiquement la figure 5.20.

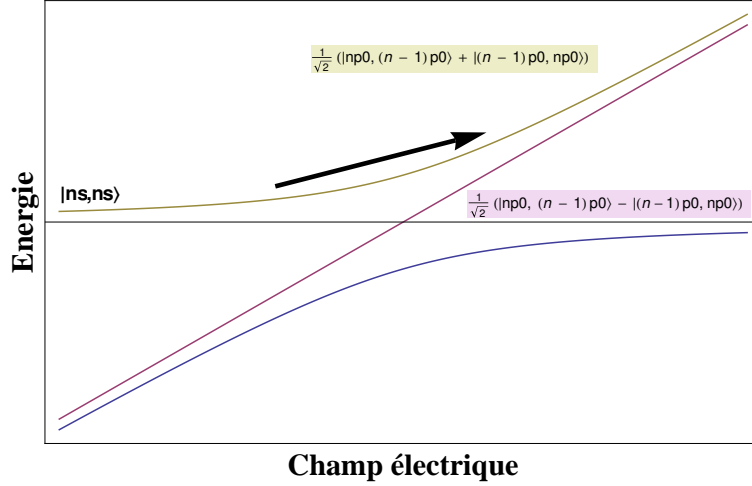


FIGURE 5.20 – Schéma représentant le croisement évité entre les états de paire  $ns0 - ns0$  et  $np0 - (n-1)p0$  en fonction du champ électrique.

Après passage adiabatique à travers le premier croisement évité, les états de paires sont amenés de nouveau en champ électrique nul suffisamment rapidement pour conserver l'état diabatique de la paire d'atomes. Les atomes se trouvent alors dans la superposition cohérente d'état de paire, en champ électrique nul :

$$\frac{1}{\sqrt{2}} (|np_{3/2}, (n-1)p_{3/2}\rangle + |(n-1)p_{3/2}, np_{3/2}\rangle) \quad (5.67)$$

Si nous appliquons une transition à deux photons micro-onde pour un atome de la paire de la superposition cohérente 5.67, par exemple :  $(n-1)p_{3/2} \rightarrow np_{3/2}$  (par absorption de deux photons micro-onde), d'après les formules analytiques 5.35 (dans la gamme des hypothèses posées), les oscillations de Rabi observées ont pour pulsation :  $\frac{3}{2}\Omega_2$  (où  $\Omega_2$  est la pulsation de Rabi pour une transition à deux photons  $(n-1)p_{3/2} \rightarrow np_{3/2}$ ). Cependant, cette transition est aussi résonnante pour l'autre atome de la paire de la superposition cohérente 5.67, soit pour la transition :  $np_{3/2} \rightarrow (n-1)p_{3/2}$  (par émission de deux photons micro-onde) avec la même fréquence d'oscillation de Rabi. Alors, les populations atomiques des états  $np_{3/2}$  et  $(n-1)p_{3/2}$ , restent inchangées au cours du temps lors de l'application d'un pulse de champ électrique micro-onde. Les transitions micro-onde à deux photons entre les états de paire atomique sont représentées schématiquement sur la figure 5.21<sup>6</sup>.

6. par souci de clarté, nous ne faisons pas apparaître l'état  $|ns_{1/2}, ns_{1/2}\rangle$  qui, nous verrons, ne sera pas peuplé lors des transitions à deux photons

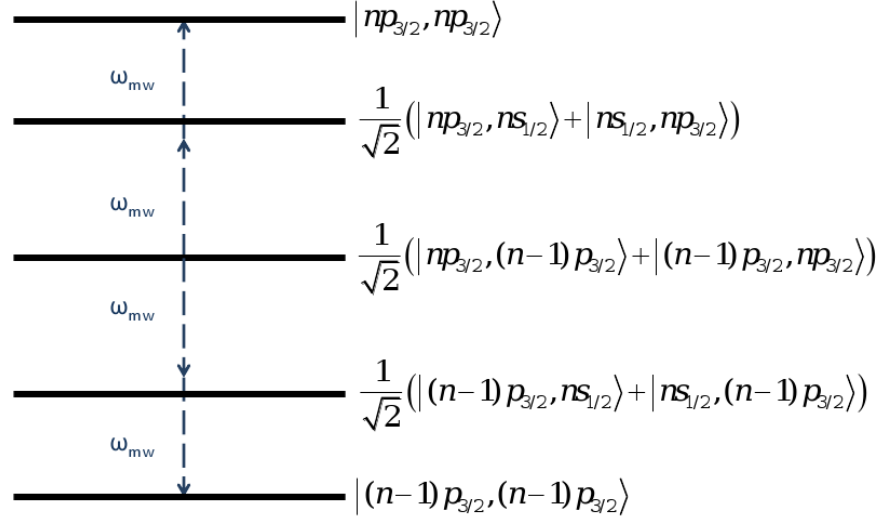


FIGURE 5.21 – Schéma représentant les états de paires considérés pour une transition à deux photons partant de la superposition cohérente produite par passage adiabatique entre les états de paires  $ns0 - ns0$  et  $np0 - (n - 1)p0$  en champ électrique.

### 5.6.2 Modèle simplifié

Nous considérons deux atomes à trois niveaux  $\{|(n - 1)p_{3/2}\rangle, |ns_{1/2}\rangle, |np_{3/2}\rangle\}$ . Nous ne modélisons pas le processus à deux photons (nous avons vérifié dans la partie 5.2.2.4 que l'état intermédiaire n'est que très faiblement peuplé), nous supposons donc les transitions directes  $(n - 1)p_{3/2} \leftrightarrow np_{3/2}$  représentées par un 'couplage' de pulsation de Rabi  $\Omega_2$ . Les états de paire antisymétriques ne sont pas couplés par l'interaction dipôle-dipôle à l'état  $|ns_{1/2}, ns_{1/2}\rangle$ , nous considérons alors l'espace des états suivant<sup>7</sup> :

$$\left\{ |(n - 1)p, (n - 1)p\rangle, \frac{|ns, (n-1)p\rangle + |(n-1)p, ns\rangle}{\sqrt{2}}, \frac{|np, (n-1)p\rangle + |(n-1)p, np\rangle}{\sqrt{2}}, \frac{|np, ns\rangle + |ns, np\rangle}{\sqrt{2}}, |np, np\rangle \right\}$$

Le hamiltonien d'interaction, dans le référentiel tournant et après l'approximation de l'onde tournante, dans cette base s'écrit :

$$H_{int} = \frac{\Omega}{2} \begin{pmatrix} 0 & 0 & \sqrt{2} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 & 0 \\ \sqrt{2} & 0 & 0 & 0 & \sqrt{2} \\ 0 & 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \sqrt{2} & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (5.68)$$

La mesure consiste à détecter l'état  $|np\rangle$  représenté par l'observable :

$$O_2 = |np\rangle \langle np| \otimes \mathbb{I} + \mathbb{I} \otimes |np\rangle \langle np| \quad (5.69)$$

L'observable  $O_2$  s'exprime dans la base définie ci-dessus, par la matrice :

7. Pour ne pas alourdir les notations, nous omettons la valeur du nombre quantique  $j$ .

$$O_2 = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 2 \end{pmatrix}$$

Nous pouvons alors représenter, figure 5.22, en fonction du temps la variance d'une mesure, représentée par l'observable  $O_2$ , donnée par l'expression 5.38<sup>8</sup> pour :

- un cas pur, en bleu, représenté par l'opérateur densité :

$$\rho(t=0) = \frac{|np, (n-1)p\rangle + |(n-1)p, np\rangle}{\sqrt{2}} \frac{\langle np, (n-1)p| + \langle (n-1)p, np|}{\sqrt{2}} \quad (5.70)$$

Cet opérateur correspond bien à la préparation de la superposition cohérente d'intérêt.

- un mélange statistique des états  $np$  et  $(n-1)p$ , en rose, représenté par l'opérateur densité :

$$\begin{aligned} \rho(t=0) &= \frac{1}{2} \left( \frac{|np, ns\rangle + |ns, np\rangle}{\sqrt{2}} \frac{\langle np, ns| + \langle ns, np|}{\sqrt{2}} \right) \\ &+ \frac{1}{2} \left( \frac{|(n-1)p, ns\rangle + |ns, (n-1)p\rangle}{\sqrt{2}} \frac{\langle (n-1)p, ns| + \langle ns, (n-1)p|}{\sqrt{2}} \right) \end{aligned} \quad (5.71)$$

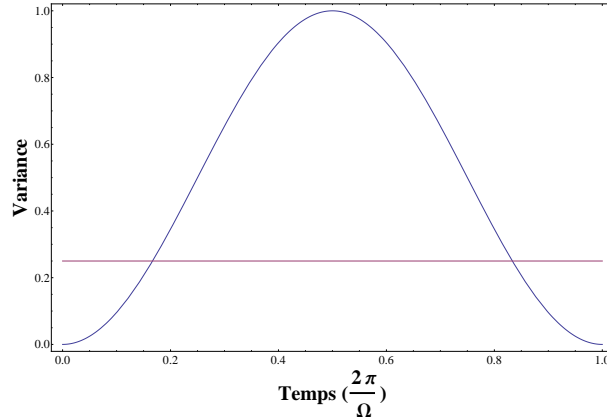


FIGURE 5.22 – Résolution numérique de la variance donnée par la formule 5.22 en fonction du temps, pour le cas pur 5.70 en bleu, et pour le mélange statistique 5.71 en rose.

### 5.6.3 Simulation de la variance

Nous considérons les états de paire d'atomes de Rydberg, représentés sur la figure 5.23 en fonction du champ électrique, formés par la base des états à un atome :

8. Par le formalisme de la matrice densité, la variance d'une mesure d'une observable  $A$  d'un mélange statistique, s'écrit :

$$\Delta A(t)^2 = \left( \sum_k p_k \langle A^2 \rangle_k(t) \right) - \left( \sum_k p_k \langle A \rangle_k(t) \right)^2$$

$$\{|48p_{3/2}\rangle, |48s_{1/2}\rangle, |47p_{3/2}\rangle\}$$

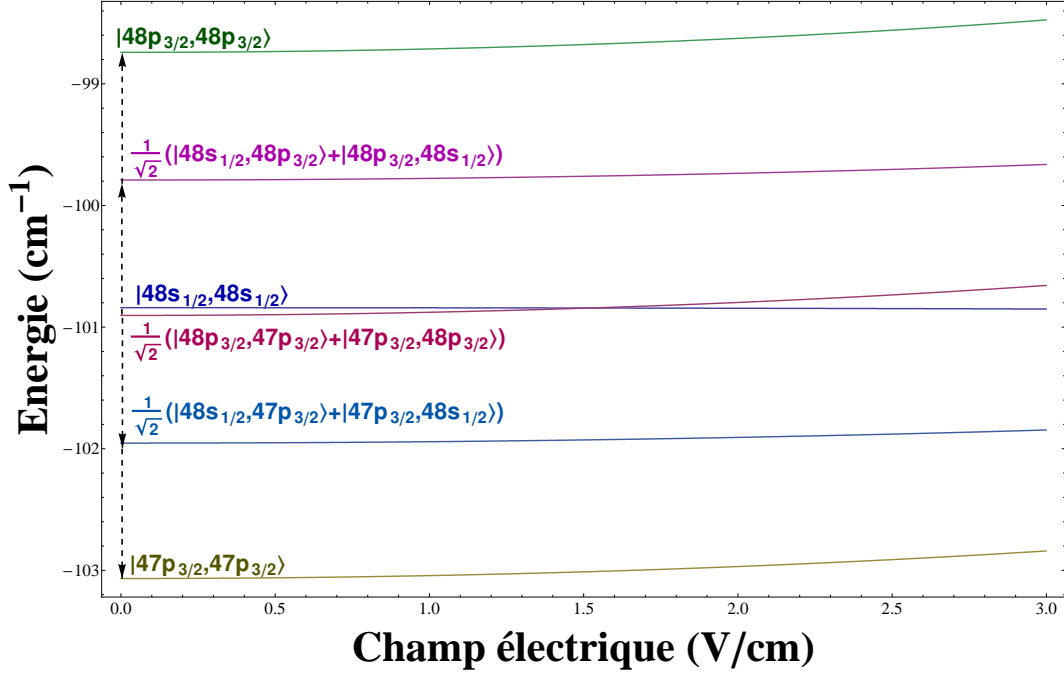


FIGURE 5.23 – Energies des états de paire formés par la base des états (à un atome)  $\{|48p_{3/2}\rangle, |48s_{1/2}\rangle, |47p_{3/2}\rangle\}$  en fonction du champ électrique. Les paires d'atomes sont créées, dans l'état  $\frac{1}{\sqrt{2}}(|48p_0, 47p_0\rangle + |47p_0, 48p_0\rangle)$ , à la résonance de Förster (1.68 V/cm).

Nous posons,  $F_0$  l'amplitude du champ électrique micro-onde, et :

$$\begin{aligned}\Omega_- &= \Omega_{47p \leftrightarrow 48s} = e \langle 48s | r | 47p \rangle F_0 / \hbar \\ \Omega_+ &= \Omega_{48p \leftrightarrow 48s} = e \langle 48s | r | 48p \rangle F_0 / \hbar\end{aligned}\tag{5.72}$$

Dans la base formée par les états représentés sur la figure 5.23, dans le sens des énergies croissantes (en champ électrique statique nul), le hamiltonien d'interaction pour les deux transitions à deux photons, s'écrit (dans le référentiel tournant et en effectuant l'approximation de l'onde tournante) :

$$H_{int} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & \Omega_- & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \Omega_- & 0 & \Omega_+ & \Omega_- & 0 & 0 \\ 0 & \Omega_+ & 0 & 0 & \Omega_- & 0 \\ 0 & \Omega_- & 0 & 0 & \Omega_+ & 0 \\ 0 & 0 & \Omega_- & \Omega_+ & 0 & \Omega_+ \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \Omega_+ & 0 \end{pmatrix}\tag{5.73}$$

Nous considérons la mesure de l'observable  $O_2$  donnée dans la partie 5.6.2 (expression 5.69) dans la base considérée pour  $n = 48$ .

$$O'_2 = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 2 \end{pmatrix}$$

Nous procédons de la même manière que dans la partie 5.2.2.4, en utilisant les valeurs propres de l'observable  $O'_2$  pour simuler le processus de mesure. Nous vérifions de plus que les états intermédiaires des transitions à deux photons ainsi que l'état  $|48s_{1/2}, 48s_{1/2}\rangle$  ne sont que très faiblement peuplés.

La figure 5.24 représente le résultat de la simulation du signal de mesure de la population dans l'état  $48p_{3/2}$ , correspondant à l'observable  $O'_2$ , sous forme d'histogramme en densité pour un cas pur représenté par la matrice densité 5.70. La valeur moyenne de la population des atomes dans l'état  $48p_{3/2}$  est donc constante en fonction du temps d'application du champ électrique micro-onde. Nous retrouvons bien les résultats du modèle simplifié (section 5.6.2), nous observons une dispersion autour de la valeur moyenne qui oscille en fonction du temps d'application et à la même fréquence que l'évolution de l'état  $|48p_{3/2}, 48p_{3/2}\rangle$ . Nous avons représenté en rouge l'évolution en fonction du temps de la mesure de la population de l'état  $|48p_{3/2}, 48p_{3/2}\rangle$  (correspondant également à l'évolution de la population de l'état  $|47p_{3/2}, 47p_{3/2}\rangle$ ).

La figure 5.25 représente le résultat de la simulation du signal de mesure de la population dans l'état  $48p_{3/2}$ , correspondant à l'observable  $O'_2$ , sous forme d'histogramme en densité pour un mélange statistique représenté par la matrice densité 5.71. Nous retrouvons bien les résultats du modèle simplifié, la dispersion des points autour de la valeur moyenne est indépendante du temps d'application du champ micro-onde et vaut  $N \times 0.25$ . Sur cette figure, nous avons représenté en orange l'évolution en fonction du temps de la mesure de la population de l'état  $\frac{1}{\sqrt{2}}(|48p_{3/2}, 48s_{1/2}\rangle + |48s_{1/2}, 48p_{3/2}\rangle)$ .

#### 5.6.4 Expérience préliminaire

La première expérience réalisée est l'application du champ micro-onde, résonant avec la transition  $47p_{3/2} \leftrightarrow 48p_{3/2}$ , aux paires d'atomes de Rydberg intriqués par transition Landau-Zener. Du à la structure des états  $47p$  et  $48p$ , il existe en fait quatre résonances aux croisements des états de paires  $|48s0, 48s0\rangle$  et  $|48pm, 47pm'\rangle$  en champ électrique. Avec le dispositif expérimental utilisé nous ne résolvons pas en champ électrique les quatre résonances entre les états de paire considérés, nous les croisons donc toutes lors d'un passage adiabatique. Or, nous savons que pour la plus petite variation temporelle de champ électrique accessible expérimentalement ( $\frac{dF}{dt} = 0.57 \text{ V.cm}^{-1}.\mu\text{s}$ ), nous transférons 43% des paires d'atomes, dont seulement 8.6% se retrouvent dans la superposition cohérente (en champ électrique nul) :  $\frac{1}{\sqrt{2}}(|48p0, 47p0\rangle + |47p0, 48p0\rangle)$ .

La séquence expérimentale appliquée est représentée schématiquement sur la figure 5.26. Nous appliquons donc une rampe de champ électrique autour du champ de résonance (1.68 V/cm), puis nous appliquons un pulse de champ micro-onde et nous faisons

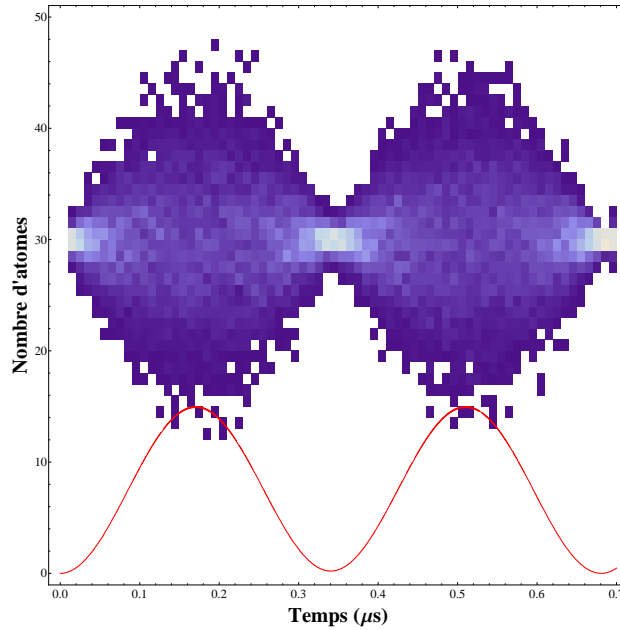


FIGURE 5.24 – Histogramme en densité du nombre d’atomes mesuré pour le cas pur 5.70. Les paramètres de simulation sont les suivants :  $F_0 = 1.7$  V/m,  $N = 30$ ,  $N_{stat} = 300$  et  $\sigma_{\mathcal{N}} = 0.01$ . L’évolution en fonction du temps de la mesure de la population de l’état  $|48p_{3/2}, 48p_{3/2}\rangle$  est représentée en rouge.

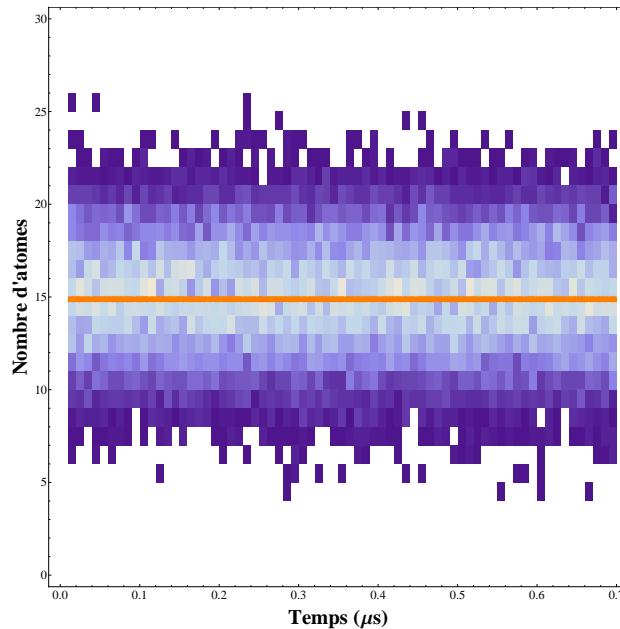


FIGURE 5.25 – Histogramme en densité du nombre d’atomes mesuré pour le mélange statistique 5.71. Les paramètres de simulation sont les suivants :  $F_0 = 1.7$  V/m,  $N = 30$ ,  $N_{stat} = 300$  et  $\sigma_{\mathcal{N}} = 0.01$ . L’évolution en fonction du temps de la mesure de la population de l’état  $\frac{1}{\sqrt{2}} (|48p_{3/2}, 48s_{1/2}\rangle + |48s_{1/2}, 48p_{3/2}\rangle)$  est représentée en orange.

varier le temps d’application du pulse. Les résultats expérimentaux sont représentés sur

la figure 5.27 en bleu. L'efficacité de production d'états  $48p$  a été normalisée à l'efficacité de production de paires d'atomes  $47p, 48p$  lorsque le pulse de champ micro-onde n'est pas appliqué. Nous observons que la production d'atomes dans l'état  $48p$  par transition Landau-Zener est constante en fonction du temps d'application du pulse de champ micro-onde. Nous avons représenté en violet l'oscillation de Rabi obtenue avec les mêmes conditions expérimentales de champ micro-onde pour la transition  $47p_{3/2} \rightarrow 48p_{3/2}$ .

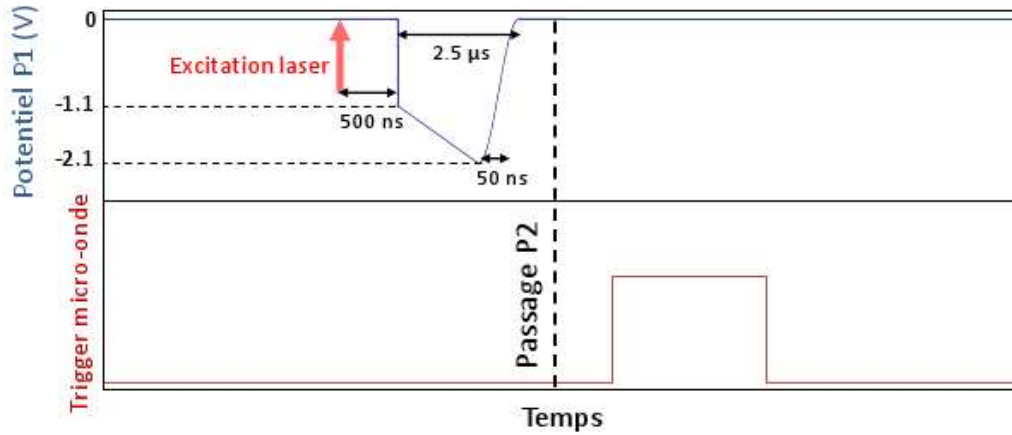


FIGURE 5.26 – Schéma de la séquence expérimentale appliquée pour l'application d'un pulse de champ micro-onde résonant aux paires d'atomes de Rydberg intriqués par transition Landau-Zener. La plaque P2 est au potentiel nul.

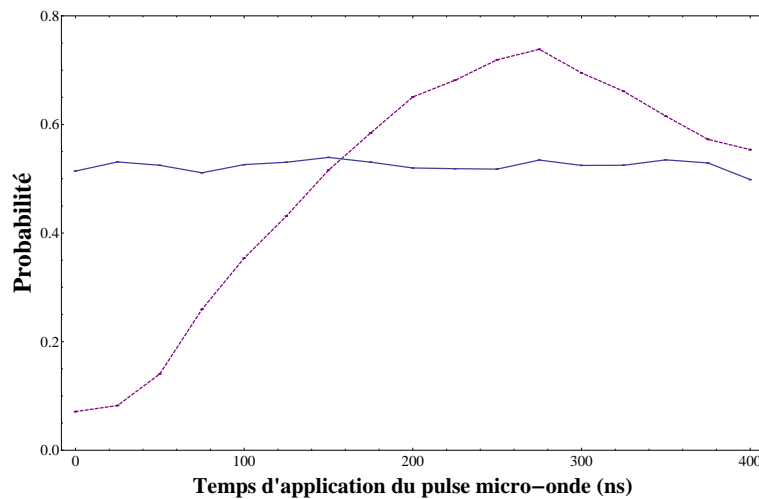


FIGURE 5.27 – En bleu, nous avons représenté l'efficacité de production d'états  $48p$  (normalisée à l'efficacité de production de paires d'atomes  $47p, 48p$  lorsque le pulse de champ micro-onde n'est pas appliqué) en fonction du temps d'application du pulse de champ micro-onde. En violet, nous avons représenté l'oscillation de Rabi obtenue avec les mêmes conditions expérimentales de champ micro-onde pour la transition  $47p_{3/2} \rightarrow 48p_{3/2}$ .

### 5.6.5 Discussions

La seule expérience présentée dans cette partie, figure 5.27 nous renseigne sur les populations des atomes dans les états  $47p$  et  $48p$ . Nous pouvons conclure que nous produisons, par transition Landau-Zener, des atomes dans les états  $47p$  et  $48p$  en même quantité, ce qui est compatible avec la production de paire d'atomes. Cette seule expérience ne prouve évidemment pas l'intrication des atomes au sein des paires créées par transition Landau-Zener.

Des tentatives de mesure de la fluctuation du signal ont été réalisées sur les nuages de points non linéaire mais n'ont pas permis de prouver l'intrication des atomes de Rydberg par transition Landau-Zener selon la méthode décrite dans cette dernière partie. Nous évoquons les raisons suivantes. Pour un nombre initial d'atomes de Rydberg donné, la production des états de paire (par passage adiabatique autour d'une résonance de Förster) peut aussi fluctuer car il y a un nombre fini d'atomes de Rydberg dans l'état initial. Néanmoins, les autres états de paire produits par le passage adiabatique n'introduisent pas de fluctuation du signal supplémentaire. Nous avons vérifié numériquement qu'ils ne sont pas impliqués dans les transitions à deux photons résonants pour l'état de paire d'intérêt  $|47p_{3/2}48p_{3/2}\rangle$ . De plus, il faut éviter toute inhomogénéité de champ électrique et de champ micro-onde. Pour s'en affranchir, il serait possible de mettre en place un dispositif expérimental permettant de contrôler précisément le champ électrique (au mV/cm) et permettant également d'insérer un guide d'onde de champ micro-onde sur le trajet des atomes de Rydberg. Les ions présents dans le nuage d'atomes de Rydberg sont aussi une source d'inhomogénéité de champ électrique. Ces ions sont formés par différents processus : lors de l'ablation laser du barreau de sodium, par photoionisation par l'intermédiaire de l'état relais ( $4P_{3/2}$ ) lors de l'excitation laser vers un état de Rydberg, ou encore par absorption du rayonnement du corps noir par les atomes de Rydberg. Enfin, la plus grosse difficulté expérimentale pour ce type de mesure, reste la faible efficacité du système de détection utilisé. Grâce à la connaissance de la densité d'atomes de Rydberg dans le nuage expérimental (présenté au chapitre 4), ainsi que de la calibration du système de détection pour un ion unique, nous pouvons déterminer que l'efficacité de détection pour notre système de détection est  $\approx 1\%$ . Cette très faible efficacité de détection est due à la contrainte que nous nous sommes imposée pour rester dans un régime où la réponse du détecteur est linéaire, c'est à dire à très faible gain des galettes de microcanaux. Alors, la probabilité d'observer les deux atomes d'une paire dans l'état  $|48p_{3/2}, 48p_{3/2}\rangle$  lors de l'oscillation de Rabi à deux photons est donc extrêmement faible. Ce sont précisément ces événements de détection qui permettraient de mettre en évidence l'oscillation de la variance lors de l'application du champ micro-onde.



## Conclusions

Dans la première partie de ce chapitre, nous avons expérimentalement mis en évidence le bruit de projection quantique lors d'un processus de mesure des différentes probabilités de transfert de l'état (à un atome)  $47p_{3/2}$  vers l'état  $48p_{3/2}$ . Nous avons utilisé les oscillations de Rabi d'une transition à deux photons micro-ondes :  $47p_{3/2} \rightarrow 48p_{3/2}$ .

Le bruit de projection quantique ou fluctuation quantique est fondamentalement relié au processus de la mesure. Extraire le bruit de projection quantique à partir de données expérimentales est une tâche difficile. Dans les données expérimentales, le bruit de nature quantique est en général noyé dans de nombreux bruits statistiques inhérents à tous les dispositifs expérimentaux et systèmes de détection. Ce type de mesure demande donc une connaissance précise du dispositif expérimental, notamment de tous les bruits de nature statistique pouvant affecter les données.

Dans les systèmes d'ions piégés, le nombre d'ions étudiés est connu avec précision. Il n'y a donc pas de bruit engendré par la fluctuation du signal, et l'étude se 'restreint' aux bruits statistiques des systèmes de détection (en général, pour les systèmes de détection de fluorescence). Dans le cas de notre dispositif expérimental, nous avons vu que la fluctuation du nombre d'atomes de Rydberg à chaque expérience est assez importante. Cela nous a donc amené à développer un modèle permettant de simuler le signal mesuré en tenant compte des caractéristiques expérimentales connues : la fluctuation du nombre d'atomes de Rydberg initial, ainsi que le bruit statistique de détection. Nous avons donc pu simuler la dispersion du signal 'mesuré', et ainsi en déduire une procédure permettant d'extraire le bruit de fluctuation quantique au travers la variation de la variance du signal de production en fonction du signal total d'atomes de Rydberg. De plus cette méthode permet une calibration précise du système de détection pour un ion unique sans la nécessité de se placer expérimentalement en régime de comptage.

Dans la deuxième partie de ce chapitre, nous avons proposé une méthode basée sur la mesure du bruit de projection quantique, permettant de montrer l'intrication de deux atomes. Cette méthode peut être utile par exemple lorsqu'il n'est pas possible d'observer des oscillations de Rabi, telles que les oscillations observées par [Gaëtan et al., 2009]. Nous avons démontré ce principe par une simulation appliquée à la mesure de la fluctuation quantique dans notre cas, c'est-à-dire pour les paires d'atomes de Rydberg formées par passage adiabatique autour de la résonance :  $48s \ 48s - 48p \ 47p$ . Dans les conditions actuelles du dispositif expérimental, la réalisation expérimentale de ce type de mesures s'est révélée impossible, bien que paradoxalement la génération des atomes intriqués soit, elle, expérimentalement très simple (par un champ électrique dépendant du temps). Cependant, une étude préliminaire de la mesure de la fluctuation quantique a été réalisée en utilisant les oscillations de Rabi d'une transition à deux photons entre deux états de Rydberg à un atome.

Des systèmes atomiques idéaux pour ce type de mesure sont des systèmes où il est possible de définir avec précision le nombre d'atomes étudiés, comme dans les pinces optiques ou encore dans les réseaux optiques.

# Chapitre 6

## Conclusion Générale

Les atomes de Rydberg en jet supersonique (outre la possibilité de les décélérer par effet Stark [Vliegen et al., 2004, 2007]) constituent des systèmes favorables pour l'étude de l'interaction dipôle-dipôle entre deux atomes de Rydberg. La gamme de températures atteintes lors de la formation d'un jet supersonique se situe dans un régime de température intermédiaire entre celles obtenues dans les jets thermiques et les régimes froids atteints dans les pièges magnéto-optique. Ce sont de plus, des environnements relativement peu denses. Les atomes de Rydberg en jet supersonique constituent donc des systèmes idéaux pour des études portant sur des interactions uniquement à deux corps dans le régime de température intermédiaire  $\approx 100$  mK. Une caractéristique de cette expérience est la production d'atomes de sodium par ablation laser d'une cible solide de sodium et de l'ensemencement des atomes dans leur état fondamental. Ces processus sont hors de portée d'un contrôle expérimental fin, et engendrent une source atomique très fluctuante. Nous avons vu au long des expériences présentées dans ce manuscrit, que nous avons su tirer parti de cette fluctuation grâce à des études statistiques fines.

Les interactions dipôle-dipôle entre deux atomes de Rydberg ont été illustrées par la mise en évidence expérimentale d'un unique passage adiabatique pour des états de paire d'atomes de Rydberg en interaction dipôle-dipôle. Les probabilités de passages sont basées sur un modèle Landau-Zener et les résultats expérimentaux sont en très bon accord avec le modèle théorique. En effet, pendant le temps de la transition, les atomes de Rydberg sont quasi-immobiles et nous pouvons appliquer la vision d'un gaz d'atomes de Rydberg gelés en interaction. Dans notre modèle, l'adiabaticité est contrôlée par la variation temporelle du champ électrique. Le champ électrique permet une sélection des distances interatomiques (par valeur supérieure) des atomes dans l'état de paire produit lors d'un passage adiabatique. Il s'agit alors de sonder le plus proche voisin dans l'environnement de chaque atome.

Dans un milieu homogène, la distribution de plus proche voisin dépend uniquement de la densité. Les passages adiabatiques entre des états de paire d'atomes de Rydberg en interaction dipôle-dipôle ont ensuite été appliqués à une mesure précise de la densité du nuage d'atomes de Rydberg. Nous obtenons une détermination meilleure que 3%. Pour un unique croisement évité, l'application d'un passage adiabatique permet de sonder un volume autour de chaque atome et d'en déduire la présence ou non d'un second atome dans ce volume. La détermination de la densité qui en résulte se révèle particulièrement

précise, bien plus précise que les méthodes standard de mesure de densité dans un milieu dilué. Cette méthode peut s'appliquer aux paires de molécules dans un état de Rydberg présentant des interactions fortes à longue portée (de l'ordre du  $\mu\text{m}$ ); par exemple, dans le cas de l'évolution d'un gaz de molécules dans un état de Rydberg vers un plasma ultra-froid [Morrison et al., 2008]. Il serait tout aussi intéressant d'appliquer un passage adiabatique pour des atomes de Rydberg en régime de blocage dipolaire. Cela permettrait de démontrer l'isolement d'un atome de Rydberg dans sa sphère de blocage. La direction du champ électrique induisant le passage adiabatique au travers le croisement évité permet alors de sonder la distribution au plus proche voisin en fonction de son orientation et ainsi mettre en évidence le caractère anisotrope de l'interaction dipôle-dipôle.

De tels passages adiabatiques pour des états de paire doivent conduire à l'intrication des atomes de la paire produite. La dernière partie de ce manuscrit porte sur la proposition d'une méthode permettant de démontrer l'intrication de deux atomes basée sur la mesure de la fluctuation quantique. Le principe de cette méthode a été démontrée par la simulation de transitions à deux photons entre des états de paire, dont l'état initial est un état de paire dont les atomes sont intriqués. Il n'a cependant pas été possible d'en faire la démonstration expérimentale.

Nous avons mesuré expérimentalement la fluctuation quantique dans le cas des oscillations de Rabi à un atome entre les états  $(n-1)p$  et  $np$ . Le développement d'un modèle fin reposant sur une analyse en fonction du signal a permis de plus la calibration du système de détection pour un ion unique, sans avoir recours au régime de comptage. Cette méthode est versatile et peut s'appliquer à tout système physique dans lequel il est possible d'induire des oscillations de Rabi entre deux niveaux, ainsi qu'à tout type de détecteur.

Ce manuscrit porte sur l'étude du comportement adiabatique de deux atomes de Rydberg en interaction dipôle-dipôle au sein d'un jet supersonique. Un des objectifs du dispositif expérimental utilisé pour réaliser les expériences présentées dans ce manuscrit, est la décélération Stark d'atomes de Rydberg par l'utilisation de champs électriques inhomogènes et dépendant du temps. Les décélérateurs Stark-Rydberg sont optimisés pour un état électronique donné à travers la dépendance temporelle du champ électrique appliqué. Lorsque l'atome de Rydberg change d'état interne, la décélération est alors moins 'efficace', et l'atome peut être perdu pour le processus de décélération. Les collisions inélastiques entre atomes et les passages adiabatiques entre les états de paire d'atomes en interaction sont donc des processus limitants à prendre en considération lors de la décélération des atomes de Rydberg par effet Stark.

Le contrôle des passages adiabatiques entre des paires d'atomes de Rydberg peut également permettre de préparer des échantillons d'atomes dont les distances interatomiques entre les atomes sont contrôlées, comme par exemple dans des expériences à deux atomes piégés dans deux pinces optiques.

Nous pourrions aussi envisager d'étendre l'application des passages adiabatiques entre des états de 3, 4 ...  $N$  atomes de Rydberg en interaction collective permettant un contrôle quantique de ces systèmes. L'application d'un champ électrique bien contrôlé et dépendant du temps est un outil relativement simple qui pourrait trouver de larges applications dans le domaine de la physique des Rydberg à quelques corps ou à de nombreux corps, domaine en plein essor actuellement [Han, 2010, Viteau et al., 2011, Gurian et al., 2011].

# Bibliographie

- M. Abramowitz and I. A. Stegun. *Handbook of mathematical functions with formulas, graphs and mathematical tables*. Dover Publications, 1968.
- K. Afrousheh, P. Bohlouli-Zanjani, D. Vagale, A. Mugford, M. Fedorov, and J. D. D. Martin. Spectroscopic observation of resonant electric dipole-dipole interactions between cold rydberg atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 93 :233001, Nov 2004.
- Thomas Amthor, Christian Giese, Christoph S. Hofmann, and Matthias Weidemüller. Evidence of antiblockade in an ultracold rydberg gas. *Physical Review Letters*, 104, 2010.
- J.B. Anderson. Intermediate energy molecular beams from free jets of mixed gases. *Entropie*, 18 :33–37, 1967.
- M.H. Anderson, J.R. Ensher, M.R. Matthews, C.E. Wieman, and E.A. Cornell. Observation of bose-einstein condensation in a dilute atomic vapor. *Science*, 269 :198–201, Jul 1995.
- W.R. Anderson, J.R. Veale, and T.F. Gallagher. Resonant dipole-dipole energy transfer in a nearly frozen rydberg gas. *Physical Review Letters*, 80 :249–252, 1998.
- J. Appel, P.J. Windpassinger, D. Oblak, U.B. Hoff, N. Kjaergaard, and E.S. Polzik. Mesoscopic atomic entanglement for precision measurements beyond the standard quantum limit. *PNAS*, 106 :10960–10965, July 2009.
- H. Ashkenas and F. Sherman. *Rarefied Gas Dynamics, 4th Symposium*. J.H. de Leeuw (Academic, New York), 1966.
- Alain Aspect, Philippe Grangier, and Gérard Roger. Experimental realization of einstein-podolsky-rosen-bohm *Gedankenexperiment* : A new violation of bell’s inequalities. *Phys. Rev. Lett.*, 49 :91–94, Jul 1982.
- C. Ates, T. Pohl, T. Pattard, and J.M. Rost. Antiblockade in rydberg excitation of an ultracold lattice gas. *Physical Review Letters*, 98, 2007.
- Mireille Aymar, Chris H. Greene, and Eliane Luc-Koenig. Multichannel rydberg spectroscopy of complex atoms. *Rev. Mod. Phys.*, 68 :1015–1123, Oct 1996.
- R. Balian. On the principles of quantum mechanics and the reduction of the wave packet. *American Journal of Physics*, 57 :1019–1027, November 1989.

- J.J. Balmer. Notiz über die spectrallinien des wasserstoffs. *Annalen der Physik und Chemie*, 25 :80–87, 1885.
- N. Balucani, G. Capozza, E. Segoloni, A. Russo, R. Bobbenkamp, P. Casavecchia, T. Gonzales-Lezana, E.J. Rackham, L. Banares, and F.J. Aoiz. Dynamics of the c(1d)+d2 reaction : A comparison of crossed molecular-beam experiments with quasiclassical trajectory and accurate statistical calculations. *The Journal of Chemical Physics*, 122, 2005.
- M. Barat, J.C. Brenot, J.A. Fayeton, and Y.J. Picard. Absolute detection efficiency of a microchannel plate detector for neutral atoms. *Review of Scientific Instruments*, 71, no 5 :2050–2052, May 2000.
- T. Bartsch, S. Schippers, A. Müller, C. Brandau, G. Gwinner, A. A. Saghiri, M. Beutelspacher, M. Grieser, D. Schwalm, A. Wolf, H. Danared, and G. H. Dunn. Experimental evidence for magnetic field effects on dielectronic recombination via high rydberg states. *Phys. Rev. Lett.*, 82 :3779–3782, May 1999.
- J.F. Baugh, C.E. Burkhardt, T. Bergeman, and J.J. Leventhal. Precision stark spectroscopy of sodium  $2p$  and  $2d$  states. *Physical Review A*, 58 :1585–1588, 1998.
- J. E. Bayfield, G. Casati, I. Guarneri, and D. W. Sokol. Localization of classically chaotic diffusion for hydrogen atoms in microwave fields. *Phys. Rev. Lett.*, 63 :364–367, Jul 1989.
- I.L. Beigman and V.S. Lebedev. Collision theory of rydberg atoms with neutral and charged particules. *Physics Reports*, 250 :96–328, 1995.
- H. Beijerinck and N. Verster. Absolute intensities and perpendicular temperatures of supersonic beams of polyatomic gases. *Physica*, 111, 1981.
- V. Bendkowsky, B. Butscher, J. Nipper, J.P. Shaffer, R. Löw, and T. Pfau. Observation of electric-field-induced cs rydberg atom macrodimers. *Nature*, 458 :1005, 2009.
- V. Bendkowsky, B. Butscher, J. Nipper, J. B. Balewski, J. P. Shaffer, R. Löw, T. Pfau, W. Li, J. Stanojevic, T. Pohl, and J. M. Rost. Rydberg trimers and excited dimers bound by internal quantum reflection. *Phys. Rev. Lett.*, 105 :163201, Oct 2010.
- Vera Bendkowsky. *Ultralong-range Rydberg molecules : Investigation of a novel binding*. PhD thesis, Physikalisches Institut der Universität Stuttgart, 2010.
- C.H. Bennett and G. Brassard. Proc. ieee int. conference on computers, systems and signal processing. *IEEE, New York*, 1984.
- I.I. Beterov, I.I. Ryabtsev, D.B. Tretyakov, and V.M. Entin. Quasiclassical calculations of blackbody-radiation-induced depopulation rates and effective lifetimes of rydberg  $nS$ ,  $nP$ , and  $nD$  alkali-metal atoms with  $n \leq 80$ . *Physical Review A*, 79, 2009.
- Hendrick L. Bethlem, Giel Berden, and Gerard Meijer. Decelerating neutral dipolar molecules. *Phys. Rev. Lett.*, 83 :1558–1561, Aug 1999.

- Hendrick L. Bethlem, Giel Berden, Floris M. H. Crompvoets, Rienk T. Jongma, André J.A. van Roij, and Gerard Meijer. Electrostatic trapping of ammonia molecules. *Nature*, 406 :491–494, August 2000.
- Hendrick L. Bethlem, Floris M. H. Crompvoets, Rienk T. Jongma, Sebastiaan Y. T. van de Meerakker, and Gerard Meijer. Deceleration and trapping of ammonia using time-varying electric fields. *Phys. Rev. A*, 65 :053416, May 2002.
- Rainer Blatt and David Wineland. Entangled states of trapped atomic ions. *Nature*, 453 : 1008–1015, June 2008.
- D. Bohm. *Quantum Theory*. Prentice-Hall, 1951.
- Christophe Boisseau, Ionel Simbotin, and Robin Côté. Macrodimers : Ultralong range rydberg molecules. *Phys. Rev. Lett.*, 88 :133004, Mar 2002.
- M. Born and V. Fock. Beweis des adiabatenatzes. *Zeitschrift für Physik a Hadrons and Nuclei*, 51 :165–180, March 1928.
- B.H. Bransden and C.J. Joachain. *Physics of atoms and molecules*. Longman, 1983.
- Samuel L. Braunstein and Peter van Loock. Quantum information with continuous variables. *Rev. Mod. Phys.*, 77 :513–577, Jun 2005.
- B. Brehm, J. Grosser, T. Ruschinski, and M. Zimmer. Absolute detection efficiencies of a microchannel plate detector for ions. *Measurement Science and Technology*, 6 : 953–958, 1995.
- E. Brion, L.H. Pedersen, and K. Molmer. Implementing a neutral atom rydberg gate without populating rydberg state. *Journal of Physics B*, 40 :S159–S166, 2007.
- B. Bussery and M. Aubert-Frécon. Multipolar long-range electrostatic, dispersion, and induction energy terms for the interactions between two identical alkali atoms li, na, rb, and cs in various electronic states. *Journal of Chemical Physics*, 82 (7) :3224–3234, 1985.
- R. Campargue. Progress in overexpanded supersonic jets and skimmed molecular beams in free-jet zone of silence. *The Journal of Physical Chemistry*, 88 :4466–4474, 1984.
- S. Chandrasekhar. Stochastic problems in physics and astronomy. *Reviews of Modern Physics*, 15, no1 :86–87, January 1943.
- B.N. Chichkov, C. Momma, S. Nolte, F. von Alvensleben, and A. Tünnermann. Femtosecond, picosecond and nanosecond laser ablation of solids. *Applied Physics A*, 63 : 109–115, February 1996.
- 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*. PhD thesis, Université Paris Sud XI, 2009.
- B. Chrisey and G.K. Hubler. *Pulsed Laser Deposition of Thin Films*. New-York : Wiley-Interscience, 1994.

- F. Cinti, P. Jain, M. Boninsegni, A. Micheli, P. Zoller, and G. Pupillo. Supersolid droplet crystal in a dipole-blockaded gas. *Phys. Rev. Lett.*, 105 :135301, Sep 2010.
- M. Ciocca, C.E. Burkhardt, J.J. Leventhal, and T. Bergeman. Precision stark spectroscopy of sodium : Improved values for the ionization limit and bound states. *Physical Review A*, 45 :4720–4730, 1992.
- Claude Cohen-Tannoudji, Bernard Diu, and Franck Laloë. *Mécanique Quantique II*. Hermann, 2000.
- Claude N. Cohen-Tannoudji. Nobel lecture : Manipulating atoms with photons. *Rev. Mod. Phys.*, 70 :707–719, Jul 1998.
- D. Comparat and D. Pillet. Dipole blockade in a cold rydberg atomic sample. *J. Opt. Soc. Am. B*, 27 :208–232, June 2010.
- Kelly Cooper Younge and Georg Raithel. Rotary echo tests of coherence in rydberg-atom excitation. *New Journal of Physics*, 11, 2009.
- S. L. Cornish, N. R. Claussen, J. L. Roberts, E. A. Cornell, and C. E. Wieman. Stable  $^{85}\text{Rb}$  bose-einstein condensates with widely tunable interactions. *Phys. Rev. Lett.*, 85 : 1795–1798, Aug 2000.
- Hendrick L. Cromptoets, Floris M.H. Bethlem, Rienk T. Jongma, and Gerard Meijer. A prototype storage ring for neutral molecules. *Nature*, 411 :174–176, May 2001.
- J. Cubizolles, T. Bourdel, S. J. J. M. F. Kokkelmans, G. V. Shlyapnikov, and C. Salomon. Production of long-lived ultracold  $\text{Li}_2$  molecules from a fermi gas. *Phys. Rev. Lett.*, 91 : 240401, Dec 2003.
- A. Dalgarno and W.D. Davison. The calculation of van der waals interactions. *Advances in Atomic and Molecular Physics*, 2 :1–32, 1966.
- Johann G. Danzl, Elmar Haller, Mattias Gustavsson, Manfred J. Mark, Russell Hart, Nadia Bouloufa, Olivier Dulieu, Helmut Ritsch, and Hanns-Christoph Nägerl. Quantum gas of deeply bound ground state molecules. *Science*, 321 :1062–1066, August 2008.
- K. B. Davis, M. O. Mewes, M. R. Andrews, N. J. van Druten, D. S. Durfee, D. M. Kurn, and W. Ketterle. Bose-einstein condensation in a gas of sodium atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 75 :3969–3973, Nov 1995.
- J. O. Day, E. Brekke, and T. G. Walker. Dynamics of low-density ultracold rydberg gases. *Phys. Rev. A*, 77 :052712, May 2008.
- J. Deiglmayr, A. Grochola, M. Repp, K. Mörtlbauer, C. Glück, J. Lange, O. Dulieu, R. Wester, and M. Weidemüller. Formation of ultracold polar molecules in the rovibrational ground state. *Phys. Rev. Lett.*, 101 :133004, Sep 2008.
- R. H. Dicke. Coherence in spontaneous radiation processes. *Phys. Rev.*, 93 :99–110, Jan 1954.

- T.G. Dietz, M.A. Duncan, D.E. Powers, and R.E. Smalley. Laser production of supersonic metal cluster beams. *The Journal of Chemical Physics*, 74 (11) :6511–6512, 1981.
- D. Dijkkamp, T. Venkatesan, X.D. Wu, S.A. Shaheen, N. Jisrawi, Y.H. Min-Lee, W.L. McLean, and M. Croft. Preparation of y-ba-cu oxide superconductor thin films using pulsed laser evaporation from high tc bulk material. *Applied Physics Letters*, 51 : 619–621, 1987.
- John M. Doyle, Bretislav Friedrich, Jinha Kim, and David Patterson. Buffer-gas loading of atoms and molecules into a magnetic trap. *Phys. Rev. A*, 52 :R2515–R2518, Oct 1995.
- Theodore W. Ducas and Myron L. Zimmerman. Infrared stark spectroscopy of sodium rydberg states. *Physical Review A*, 15 :1523–1525, 1977.
- Stephan Dürr, Thomas Volz, Andreas Marte, and Gerhard Rempe. Observation of molecules produced from a bose-einstein condensate. *Phys. Rev. Lett.*, 92 :020406, Jan 2004.
- S. Dyubko, M. Efimenko, M. Efremov, and M. Podnos. Microwave spectroscopy of s, p, and d states of sodium rydberg atoms. *Physical Review A*, 52 :514–517, 1995.
- A. Einstein, B. Podolsky, and N. Rosen. Can quantum-mechanical description of physical reality be considered complete? *Phys. Rev.*, 47 :777–780, May 1935.
- Michael S. Elioff, James J. Valentini, and David W. Chandler. Subkelvin cooling no molecules via "billiard-like" collisions with argon. *Science*, 302 :1940–1943, December 2003.
- C. Fabre, S. Haroche, and P. Goy. Millimeter spectroscopy in sodium rydberg states : Quantum-defect, fine-structure, and polarizability measurements. *Physical Review A*, 18 :229–237, Jul 1978.
- A. Fioretti, D. Comparat, A. Crubellier, O. Dulieu, F. Masnou-Seeuws, and P. Pillet. Formation of cold cs<sub>2</sub> molecules through photoassociation. *Phys. Rev. Lett.*, 80 :4402–4405, May 1998.
- A. Fioretti, D. Comparat, C. Drag, T.F. Gallagher, and P. Pillet. Long-range forces between cold atoms. *Physical Review Letters*, 82 (9) :1839–1842, 1999.
- H. Friedrich. *Theoretical Atomic Physics, Second Edition*. Springer, 1991.
- Theodor Förster. Energiewanderung und fluoreszenz. *Die Naturwissenschaften*, 33 :166–175, 1946.
- T. Gallagher and P. Pillet. Dipole - dipole interactions of rydberg atoms. *Adv. At., Mol., Opt. Phys.*, 56 :161, 2008.
- T.F. Gallagher. *Rydberg Atoms*. Cambridge University Press, 1994.
- T.F. Gallagher and W.E. Cooke. Interaction of blackbody radiation with atoms. *Physical Review Letters*, 42 :835–839, 1979.



- T.F. Gallagher, K.A. Safinya, F. Gounand, J.F. Delpéch, W. Sandner, and R. Kachru. Resonant rydberg-atom - rydberg-atom collisions. *Physical Review A*, 25 (4) :1905–1917, 1982.
- A. Gaëtan, Y. Miroshnychenko, T. Wilk, A. Chotia, M. Viteau, D. Comparat, P. Pillet, A. Browaeys, and P. Grangier. Observation of collective excitation of two individual atoms in the rydberg blockade regime. *Nature Physics*, 5,115, 2009.
- Thomas R. Gentile, Barbara J. Hughey, Daniel Kleppner, and Theodore W. Ducas. Experimental study of one- and two-photon rabi oscillations. *Physical Review A*, 40 : 5103–5115, Nov 1989.
- W. Gerlach and O. Stern. Das magnetische moment des silberatoms. *Zeitschrift für Physik*, 9 :353–355, 1922.
- F.Di. Giacomo and E.E. Nikitin. The majorana formula and the landau-zener-stückelberg treatment of the avoided crossing problem. *Physics-Uspokhi*, 48 :515–517, 2005.
- F. Gounand, M. Hugon, P.R. Fournier, and J. Berlande. Superradiant cascading effects in rubidium rydberg levels. *Journal of Physics B : Atomic and Molecular Physics*, 12 : 547, February 1979.
- P. Goy, J. Liang, M. Gross, and S. Haroche. Quantum defects and specific-isotopic-shift measurements in  $ns$  and  $np$  highly excited states of lithium : Exchange effects between rydberg and core electrons. *Phys. Rev. A*, 34 :2889–2896, Oct 1986.
- S. Goyal, D. L. Schutt, and G. Scoles. Vibrational spectroscopy of sulfur hexafluoride attached to helium clusters. *Phys. Rev. Lett.*, 69 :933–936, Aug 1992.
- L.G. Gray, X. Sun, and K.B. MacAdam. Resonance measurements of d-f-g-h intervals in rydberg states of sodium and a redetermination of the core polarizabilities. *Physical Review A*, 38 :4985–1588, 1988.
- Chris H. Greene, A. S. Dickinson, and H. R. Sadeghpour. Creation of polar and nonpolar ultra-long-range rydberg molecules. *Phys. Rev. Lett.*, 85 :2458–2461, Sep 2000.
- Hans R Griem. *Spectral line broadening by plasmas*. New York, Academic Press, 1974, 1984.
- M. Gross and S. Haroche. Superradiance : An essay on the theory of collective spontaneous emission. *Physics Reports*, 93 :301–396, 1982.
- Ting Guo, Pave Nikolaev, Andrew G. Rinzler, David TomBnek, Daniel T. Colbert, and Richard E. Smalley. Self-assembly of tubular fullerenes. *The Journal of Physical Chemistry*, 99 :10694–10697, 1995.
- J.H. Gurian, P. Cheinet, P. Huillery, A. Fioretti, J. Zhao, P.L. Gould, D. Comparat, and P. Pillet. Observation of a resonant four-body interaction in cold cesium rydberg atoms. *Phys. Rev. Lett.*, To be published, 2011.
- H. Haberland, U. Buck, and M. Tolle. Velocity distribution of supersonic nozzle beams. *Rev. Sci. Instrum.*, 56 (9) :1712–1716, September 1985.

- 
- Jianing Han. Direct evidence of three-body interactions in a cold  $^{85}\text{Rb}$  rydberg gas. *Phys. Rev. A*, 82 :052501, Nov 2010.
- Rolf Heidemann, Ulrich Raitzsch, Vera Bendkowsky, Björn Butscher, Robert Löw, Luis Santos, and Tilman Pfau. Evidence for coherent collective rydberg excitation in the strong blockade regime. *Phys. Rev. Lett.*, 99 :163601, Oct 2007.
- F. Henkel, M. Krug, J. Hofmann, W. Rosenfeld, M. Weber, and H. Weinfurter. Highly efficient state-selective submicrosecond photoionization detection of single atoms. *Physical Review Letters*, 105, December 2010.
- Jens Herbig, Tobias Kraemer, Michael Mark, Tino Weber, Cheng Chin, Hanns-Christoph Nägerl, and Rudolf Grimm. Preparation of a pure molecular quantum gas. *Science*, 301 :1510–1513, September 2003.
- Peter Heyl, Thomas Olschewski, and Roelof W. Wijngaendts. Manufacturing of 3d structures for micro-tools using laser ablation. *Microelectronic Engineering*, 57-58 :775–780, 2001.
- Robert C. Hilborn. Einstein coefficients, cross sections,  $f$  values, dipole moments and all that. *American Journal of Physics*, 50, no11 :982–986, November 1982.
- S. D. Hogan, D. Sprecher, M. Andrist, N. Vanhaecke, and F. Merkt. Zeeman deceleration of h and d. *Phys. Rev. A*, 76 :023412, Aug 2007.
- S. D. Hogan, A. W. Wiederkehr, H. Schmutz, and F. Merkt. Magnetic trapping of hydrogen after multistage zeeman deceleration. *Phys. Rev. Lett.*, 101 :143001, Sep 2008.
- S. D. Hogan, Ch. Seiler, and F. Merkt. Rydberg-state-enabled deceleration and trapping of cold molecules. *Phys. Rev. Lett.*, 103 :123001, Sep 2009.
- Eric R. Hudson, H. J. Lewandowski, Brian C. Sawyer, and Jun Ye. Cold molecule spectroscopy for constraining the evolution of the fine structure constant. *Phys. Rev. Lett.*, 96 :143004, Apr 2006.
- W. M. Itano, J. C. Bergquist, J. J. Bollinger, J. M. Gilligan, D. J. Heinzen, F. L. Moore, M. G. Raizen, and D. J. Wineland. Quantum projection noise : Population fluctuations in two-level systems. *Phys. Rev. A*, 47 :3554–3570, May 1993.
- A. Jeffrey and D. Zwillinger. *Table of Integrals, Series, and Products*. San Diego, CA : Academic Press, 2000.
- Christian Jungen. *Elements of quantum theory*. 2009.
- Arthur Kantrowitz and Jerry Grey. A high intensity source for the molecular beam. part i. theoretical. *The Review of Scientific Instruments*, 22 :328–332, May 1951.
- Andrew J. Kerman, Jeremy M. Sage, Sunil Sainis, Thomas Bergeman, and David DeMille. Production of ultracold, polar rbc $s^*$  molecules via photoassociation. *Phys. Rev. Lett.*, 92 :033004, Jan 2004.

- T. C. Killian, S. Kulin, S. D. Bergeson, L. A. Orozco, C. Orzel, and S. L. Rolston. Creation of an ultracold neutral plasma. *Phys. Rev. Lett.*, 83 :4776–4779, Dec 1999.
- Jinha Kim, Bretislav Friedrich, Daniel P. Katz, David Patterson, Jonathan D. Weinstein, Robert DeCarvalho, and John M. Doyle. Buffer-gas loading and magnetic trapping of atomic europium. *Phys. Rev. Lett.*, 78 :3665–3668, May 1997.
- M. Klapisch. A program for atomic wavefunction computations by the parametric potential method. *Computer Physics Communications*, 2 :239–260, 1971.
- J. Koperski. *Van der Waals Complexes in Supersonic Beams. Laser Spectroscopy of Neutral-Neutral Interactions*. John Wiley and Sons, Hoboken, N.J., 2003.
- M. Krychowiak, Ph. Mertens, R. König, B. Schweer, S. Brezinsek, O. Schmitz, M. Brix, U. Samm, and T. Klinger. Lif measurements on an atomic helium beam in the edge of a fusion plasma. *Plasma Physics and Controlled Fusion*, 50, 2008.
- Lev Landau. Zur theorie der energieubertragung. ii. *Physics of the Soviet Union*, 2 : 46–51, 1932.
- Lev Landau and Evguéni Lifchitz. *Mécanique Quantique*. Editions MIR, 1975.
- W. Li, M.W. Noel, M.P. Robinson, P.J. Tanner, T.F. Gallagher, D. Comparat, B. Laburthe Tolra, N. Vanhaecke, T. Vogt, N. Zahzam, P. Pillet, and D.A. Tate. Evolution dynamics of a dense frozen rydberg gas to a plasma. *Physical Review A*, 70, 2004.
- Wenhui Li, Paul J. Tanner, and T.F. Gallagher. Dipole-dipole excitation and ionization in an ultracold gas of rydberg atoms. *Physical Review Letters*, 94 :173001, 2005.
- J. Liang, M. Gross, P. Goy, and S. Haroche. Circular rydberg-state spectroscopy. *Phys. Rev. A*, 33 :4437–4439, Jun 1986.
- T. Cubel Liebisch, A. Reinhard, P. R. Berman, and G. Raithel. Atom counting statistics in ensembles of interacting rydberg atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 95 :253002, Dec 2005.
- A. Lindgard and S.E. Nielsen. Transition probabilities for the alkali isoelectronic sequences. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 19, no6 :533–633, June 1977.
- Michael G. Littman, Myron L. Zimmerman, Theodore W. Ducas, Richard R. Freeman, and Daniel Kleppner. Structure of sodium rydberg states in weak to strong electric fields. *Phys. Rev. Lett.*, 36 :788–791, Apr 1976.
- M. D. Lukin, M. Fleischhauer, R. Cote, L. M. Duan, D. Jaksch, J. I. Cirac, and P. Zoller. Dipole blockade and quantum information processing in mesoscopic atomic ensembles. *Phys. Rev. Lett.*, 87 :037901, Jun 2001.
- M. W. Mancini, G. D. Telles, A. R. L. Caires, V. S. Bagnato, and L. G. Marcassa. Observation of ultracold ground-state heteronuclear molecules. *Phys. Rev. Lett.*, 92 : 133203, Apr 2004.
- M. Marinescu, H.R. Sadeghpour, and A. Dalgarno. Dispersion coefficients for alkali-metal dimers. *Physical Review A*, 49 :982–988, 1994.

- M. Mark, T. Kraemer, P. Waldburger, J. Herbig, C. Chin, H.-C. Nägerl, and R. Grimm. “stükelberg interferometry” with ultracold molecules. *Phys. Rev. Lett.*, 99 :113201, Sep 2007.
- K. W. McLaughlin and D. W. Duquette. Evidence for resonant formation of  $ca^-$  in collisions of rydberg and ground-state ca atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 72 :1176–1179, Feb 1994.
- Albert Messiah. *Mécanique Quantique*. Dunod, 1959.
- J. J. Mestayer, B. Wyker, J. C. Lancaster, F. B. Dunning, C. O. Reinhold, S. Yoshida, and J. Burgdörfer. Realization of localized bohr-like wave packets. *Phys. Rev. Lett.*, 100 :243004, Jun 2008.
- Terry A. Miller. Chemistry and chemical intermediates in supersonic free jet expansions. *Science*, 10 :545–553, February 1984.
- J.P. Morrison, C.J. Rennick, J.S. Kellern, and E.R. Grant. Evolution from a molecular rydberg gas to an ultracold plasma in a seeded supersonic expansion of no. *Physical Review Letters*, 101, 2008.
- I. Mourachko, D. Comparat, F. de Tomasi, A. Fioretti, P. Nosbaum, V.M. Akulin, and P. Pillet. Many-body effects in a frozen rydberg gas. *Physical Review Letters*, 80 : 253–256, 1998.
- Edvardas Narevicius, Adam Libson, Christian G. Parthey, Isaac Chavez, Julia Narevicius, Uzi Even, and Mark G. Raizen. Stopping supersonic oxygen with a series of pulsed electromagnetic coils : A molecular coilgun. *Phys. Rev. A*, 77 :051401, May 2008.
- K. Niemi, V. Schulz-von der Gathen, and H.F. Döbele. Talif calibration with noble gases for quantitative atomic density measurements.
- A. N. Nikolov, E. E. Eyler, X. T. Wang, J. Li, H. Wang, W. C. Stwalley, and P. L. Gould. Observation of ultracold ground-state potassium molecules. *Phys. Rev. Lett.*, 82 :703–706, Jan 1999.
- J. Oberheide, P. Wilhelms, and M. Zimmer. New results on the absolute ion detection efficiencies of a microchannel plate. *Measurement Science and Technology*, 8 :351–354, 1997.
- A. Omont. On the theory of collisions of atoms in rydberg states with neutral particules. *Journal de Physique*, 38 :1343–1359, 1977.
- A. Osterwalder and F. Merkt. Using high rydberg states as electric field sensors. *Physical Review Letters*, 82 :1831–1834, 1999.
- K.R. Overstreet, A. Schwettmann, J. Tallant, D. Booth, and J.P. Shaffer. Observation of electric-field-induced cs rydberg atom macrodimers. *Nature Physics*, 5 :581–585, 2009.
- F. Penent, D. Delande, and J. C. Gay. Rydberg states of rubidium in crossed electric and magnetic fields. *Phys. Rev. A*, 37 :4707–4719, Jun 1988.

- A. Peres. When is quantum measurement. *American Journal of Physics*, 54 :688–692, August 1986.
- William D. Phillips. Nobel lecture : Laser cooling and trapping of neutral atoms. *Rev. Mod. Phys.*, 70 :721–741, Jul 1998.
- P. Pillet, R. Kachru, N.H. Tran, W.W. Smith, and T.F. Gallagher. Radiative rydberg atom - rydberg atom collisions in the strong field regime. *Physical Review A*, 36 : 1132–1147, 1987.
- Pierre Pillet. *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, 1982.
- M. Planck. Über das gesetz der energieverteilung im normalspectrum. *Annalen der Physik*, 309 :553–563, 1901.
- T. Pohl, E. Demler, and M. D. Lukin. Dynamical crystallization in the dipole blockade of ultracold atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 104 :043002, Jan 2010.
- J. D. Pritchard, D. Maxwell, A. Gauguet, K. J. Weatherill, M. P. A. Jones, and C. S. Adams. Cooperative atom-light interaction in a blockaded rydberg ensemble. *Phys. Rev. Lett.*, 105 :193603, Nov 2010.
- E.L. Raab, M. Prentiss, Alex Cable, Steven Chu, and D.E. Pritchard. Trapping of neutral sodium atoms with radiation pressure. *Physical Review Letters*, 59 :2631–2634, 1987.
- I. I. Rabi. Space quantization in a gyrating magnetic field. *Physical Review*, 51 :652–654, April 1937.
- P.D.P. Raghuraman and J. B. Anderson. Progress in astronautics and aeronautics. *Rarefied Gas dynamics 10<sup>th</sup> Symposium, Aspen*, 51, 1977.
- J.M. Raimond, G. Vitrant, and S. Haroche. 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, 1981.
- U. Raitzsch, V. Bendkowsky, R. Heidemann, B. Butscher, R. Löw, and T. Pfau. Echo experiments in a strongly interacting rydberg gas. *Physical Review Letters*, 100, 2008.
- C. A. Regal, M. Greiner, and D. S. Jin. Lifetime of molecule-atom mixtures near a feshbach resonance in <sup>40</sup>K. *Phys. Rev. Lett.*, 92 :083201, Feb 2004.
- M.J. Renn and T.F. Gallagher. Ramsey interference fringes in radiatively assisted collision of k rydberg atoms. *Physical Review Letters*, 67 (17) :2287–2290, October 1991.
- Seth T. Rittenhouse and H. R. Sadeghpour. Ultracold giant polyatomic rydberg molecules : Coherent control of molecular orientation. *Phys. Rev. Lett.*, 104 :243002, Jun 2010.
- F. Robicheaux. Ionization due to the interaction between two rydberg atoms. *Journal of Physics B : Atomic Molecular Physics*, 38 :333–342, 2005.

- F. Robicheaux and J.V. Hernández. Many-body wavefunction in a dipole blockade configuration. *Physical Review A*, 72, 2005.
- M. P. Robinson, B. Laburthe Tolra, Michael W. Noel, T. F. Gallagher, and P. Pillet. Spontaneous evolution of rydberg atoms into an ultracold plasma. *Phys. Rev. Lett.*, 85 :4466–4469, Nov 2000.
- M.H. Ross and G.L. Shaw. The theory of the model potential of heine et al. *Solid State Physics*, 1, 1955.
- M.H. Ross and G.L. Shaw. Scattering length and effective range theory for multi-channel processes. *Annals of Physics*, 9 :391–415, 1960.
- M.H. Ross and G.L. Shaw. Multichannel effective range theory. *Annals of Physics*, 13 : 147–186, 1961.
- J.R. Rydberg. On the structure of the line-spectra of the chemical elements. *Phil. Mag.*, 29, 331, 1890.
- M. Saffman, T.G. Walker, and K. Molmer. Quantum information with rydberg atoms. *Reviews of Modern Physics*, 82 :2313–2363, 2010.
- K.A. Safinya, J.F. Delpuch, F. Gounand, W. Sandner, and T.F. Gallagher. Resonant rydberg-atom - rydberg-atom collisions. *Physical Review Letters*, 47 (6) :405–408, 1981.
- Nicolas Saquet. *Décélérateur Stark pour atomes et molécules de Rydberg*. PhD thesis, Université Paris Sud XI, 2009.
- E. Schrödinger. An undulatory theory of the mechanics of atoms and molecules. *Physical Review*, 28, 1926.
- Giacinto Scoles. *Atomic and Molecular Beam Methods*. Oxford University Press, 1988.
- M.J. Seaton. Quantum defect theory. *Report on Progress in Physics*, 46 :167–257, 1983.
- Peter W. Shor. Polynomial-time algorithms for prime factorization and discrete logarithms on a quantum computer. *SIAM J. Comput.*, 26(5) :1484–1509, 1997.
- E.S. Shuman, J.F. Barry, and D. DeMille. Laser cooling of a diatomic molecule. *Nature*, 467 :820–823, October 2010.
- Kilian Singer, Markus Reetz-Lamour, Thomas Amthor, Luis Gustavo Marcassa, and Matthias Weidemüller. Suppression of excitation and spectral broadening induced by interactions in a cold gas of rydberg atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 93 :163001, Oct 2004.
- R. L. Sorochenko. Possibilities of investigation of interstellar matter by radio recombination lines. *Astronomische Nachrichten*, 310 :389–398, 1989.
- Dirk Spelsberg, Thomas Lorenz, and Wilfried Meyer. Dynamic multipole polarizabilities and long range interaction coefficients for the systems h, li, na, k, he,  $h^-$ ,  $h_2$ ,  $li_2$ ,  $na_2$ , and  $k_2$ . *Journal of Chemical Physics*, 99 (10) :7845–7858, 1993.

- Daniel A. Steck. Sodium d.line data. *Los Alamos National Laboratory (technical report)*. <http://george.ph.utexas.edu/dsteck/alkalidata/sodiumnumbers.pdf>, May 2008.
- E.C.G. Stückelberg. Theorie der unelastischen stösse zwischen atomen. *Helv. Phys. Acta*, 5 :369, 1932.
- Daniel Taupin. *Probabilities, data reduction and error analysis in the physical sciences*. Les éditions de physique, 1988.
- J. Peter Toennis and Klaus Winkelmann. Theoretical studies of highly expanded free jets : Influence of quantum effects and a realistic intermolecular potential. *The Journal of Chemical Physics*, 86 :3965–3979, May 1977.
- D. Tong, S. M. Farooqi, J. Stanojevic, S. Krishnan, Y. P. Zhang, R. Côté, E. E. Eyler, and P. L. Gould. Local blockade of rydberg excitation in an ultracold gas. *Phys. Rev. Lett.*, 93 :063001, Aug 2004.
- Q. A. Turchette, C. S. Wood, B. E. King, C. J. Myatt, D. Leibfried, W. M. Itano, C. Monroe, and D. J. Wineland. Deterministic entanglement of two trapped ions. *Phys. Rev. Lett.*, 81 :3631–3634, Oct 1998.
- E. Urban, T. A. Johnson, T. Henage, L. Isenhower, D. D. Yavuz, T.G. Walker, and M. Saffman. Observation of rydberg blockade between two atoms. *Nature Physics*, 5,110, 2009.
- A. Ganesh Vaidyanathan, William P. Spencer, Jan R. Rubbmark, Hajo Kuiper, Claude Fabre, Daniel Kleppner, and Theodore W. Ducas. Experimental study of nonadiabatic core interactions in rydberg states of calcium. *Phys. Rev. A*, 26 :3346–3350, Dec 1982.
- C. S. E. van Ditzhuijzen, Atreju Tauschinsky, and H. B. van Linden van den Heuvell. Observation of stückelberg oscillations in dipole-dipole interactions. *Phys. Rev. A*, 80 : 063407, Dec 2009.
- Nicolas Vanhaecke, Urban Meier, Markus Andrist, Beat H. Meier, and Frédéric Merkt. Multistage zeeman deceleration of hydrogen atoms. *Phys. Rev. A*, 75 :031402, Mar 2007.
- D.A. Varshalovich, A.N. Moskalev, and V.K. Khersonskii. *Quantum Theory of Angular Momentum*. World Scientific, 1989.
- J. R. Veale, W. Anderson, M. Gatzke, M. Renn, and T. F. Gallagher. Line-shape analysis of resonant energy transfer collisions. *Phys. Rev. A*, 54 :1430–1434, Aug 1996.
- N. V. Vitanov. Transition times in the landau-zener model. *Phys. Rev. A*, 59 :988–994, Feb 1999.
- N. V. Vitanov and B. M. Garraway. Landau-zener model : Effects of finite coupling duration. *Phys. Rev. A*, 53 :4288–4304, Jun 1996.
- M. Viteau, M. G. Bason, J. Radogostowicz, N. Malossi, D. Ciampini, O. Morsch, and E. Arimondo. Rydberg excitations in bose-einstein condensates in quasi-one-dimensional potentials and optical lattices. *Phys. Rev. Lett.*, 107 :060402, Aug 2011.

- Matthieu Viteau, Amodsen Chotia, Maria Allegrini, Nadia Bouloufa, Olivier Dulieu, Daniel Comparat, and Pierre Pillet. Optical pumping and vibrational cooling of molecules. *Science*, 321 :232–234, July 2008.
- E. Vliegen, H. J. Wörner, T. P. Softley, and F. Merkt. Nonhydrogenic effects in the deceleration of rydberg atoms in inhomogeneous electric fields. *Phys. Rev. Lett.*, 92 : 033005, Jan 2004.
- E. Vliegen, S. D. Hogan, H. Schmutz, and F. Merkt. Stark deceleration and trapping of hydrogen rydberg atoms. *Phys. Rev. A*, 76 :023405, Aug 2007.
- T. Vogt, M. Viteau, A. Chotia, J. Zhao, D. Comparat, and P. Pillet. Electric-field induced dipole blockade with rydberg atoms. *Physical Review Letters*, 99, 2007.
- T. Vogt, M. Viteau, J. Zhao, A. Chotia, D. Comparat, and P. Pillet. Dipole blockade at förster resonances in high resolution laser excitation of rydberg states of cesium atoms. *Physical Review Letters*, 100, 2008.
- Thibault Vogt. *Blocage dipolaire 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, 2006.
- J. von Neumann. *Mathematical Foundations of Quantum Mechanics*. Princeton U. P., Princeton, NJ, 1955.
- T. Wang, S. F. Yelin, R. Côté, E. E. Eyler, S. M. Farooqi, P. L. Gould, M. Koštrun, D. Tong, and D. Vrinceanu. Superradiance in ultracold rydberg gases. *Phys. Rev. A*, 75 :033802, Mar 2007.
- Tino Weber, Jens Herbig, Michael Mark, Hanns-Christoph Nägerl, and Rudolf Grimm. Bose-einstein condensation of cesium. *Science*, 299 :232–235, January 2003.
- Jonathan D. Weinstein, Robert deCarvalho, Thierry Guillet, Bretislav Friedrich, and John M. Doyle. Magnetic trapping of calcium monohydride molecules at millikelvin temperatures. *Nature*, 395 :148–150, July 1998.
- S. Westermann, T. Amthor, A.L. de Oliveira, J. Deiglmayr, M. Reetz-Lamour, and M. Weidemüller. Dynamics of resonant energy transfer in a cold rydberg gas. *The European Physical Journal D*, 40 :37–43, 2006.
- T. Wilk, A. Gaëtan, C. Evellin, J. Wolters, Y. Miroshnychenko, P. Grangier, and A. Browaeys. Entanglement of two individual neutral atoms using rydberg blockade. *Phys. Rev. Lett.*, 104 :010502, Jan 2010.
- James D. Winefordner, Igor B. Gornushkin, Tiffany Correll, Emily Gibb, Benjamin W. Smith, and Nicoló Omenetto. Comparing several atomic spectrometric methods to the super stars : special emphasis on laser induced breakdown spectrometry, libs, a future super star. *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, 19 :1061–1083, 2004.
- D. J. Wineland, J. J. Bollinger, W. M. Itano, and D. J. Heinzen. Squeezed atomic states and projection noise in spectroscopy. *Phys. Rev. A*, 50 :67–88, Jul 1994.



- D.J. Wineland, J.C. Bergquist, Bollinger J.J., and W.M. Itano. Quantum effects in measurements on trapped ions. *Physica Scripta*, T59 :286–293, 1995.
- Curt Wittig. The landau-zener formula. *J. Phys. Chem. B*, 109 :8428–8430, 2005.
- J.L. Wiza. Microchannel plate detector. *Nucl. Instr. and Meth.*, 162(179) :587–601, 1979.
- Z. Wu, M. Kitano, W. Happer, M. Hou, and J. Daniels. Optical determination of alkali metal vapor number density using faraday rotation. *Applied Optics*, 25, no 23 :4483–4492, December 1986.
- K. Xu, T. Mukaiyama, J. R. Abo-Shaeer, J. K. Chin, D. E. Miller, and W. Ketterle. Formation of quantum-degenerate sodium molecules. *Phys. Rev. Lett.*, 91 :210402, Nov 2003.
- C. Zener. Non-adiabatic crossing of energy levels. *Proceedings of the Royal Society of London, Series A*, 137, no6 :692–702, 1932.
- A. Zenesini, D. Ciampini, O. Morsch, and E. Arimondo. Observation of Stückelberg oscillations in accelerated optical lattices. *Phys. Rev. A*, 82 :065601, Dec 2010.
- M.L. Zimmerman, M.G. Littman, M.M. Kash, and D. Kleppner. Stark structure of the rydberg states of alkali-metals atoms. *Physical Review A*, 320 :2251–2275, 1979.