COLLISIONS ET INTERACTIONS FROIDES :- Collisions froides dans des pièges d'atomes et de molécules- Dynamique de l'interaction dipôle-dipôle dans un gaz de Rydberg froid

Nassim Zahzam

▶ **To cite this version:**

Nassim Zahzam. COLLISIONS ET INTERACTIONS FROIDES :- Collisions froides dans des pièges d'atomes et de molécules- Dynamique de l'interaction dipôle-dipôle dans un gaz de Rydberg froid. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Paris-Diderot - Paris VII, 2005. Français. NNT : . tel-00011696

HAL Id: tel-00011696

https://theses.hal.science/tel-00011696

Submitted on 27 Feb 2006

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

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

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

UNIVERSITE PARIS 7 - DENIS DIDEROT
UFR de PHYSIQUE

THESE

Pour l'obtention du grade de

Docteur de l'Université Paris 7

Spécialité : Physique atomique et moléculaire

Présentée par

Nassim ZAHZAM

Sujet :

Collisions et interactions froides :

- Collisions froides dans des pièges d'atomes et de molécules

- Dynamique de l'interaction dipôle-dipôle dans un gaz de Rydberg froid

Soutenue le 6 décembre 2005 devant le jury composé de :

Mme Michèle Leduc	:	Présidente
M. Thomas Coudreau	:	Examinateur
M. Olivier Gorceix	:	Rapporteur
M. Pierre Labastie	:	Rapporteur
M. Pierre Pillet	:	Directeur de Thèse
M. Matthias Weidemüller	:	Examinateur

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

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Ma thèse s'est déroulée sous la direction de Pierre Pillet au laboratoire Aimé Cotton dans le groupe Atomes et Molécules froids. Elle a débuté en octobre 2002 et s'est poursuivie pendant trois belles années. Je tiens ici à remercier toutes les personnes avec qui j'ai partagé des moments inoubliables.

J'aimerais remercier en tout premier lieu Pierre Pillet pour m'avoir accueilli au laboratoire et avoir encadré mes travaux de recherche. Malgré la lourde tâche qu'il a de diriger le laboratoire, il a toujours suivi avec une grande attention et beaucoup de bienveillance le déroulement de cette thèse et je lui en suis très reconnaissant.

Deux personnes ont également joué un rôle important dans le bon déroulement de cette thèse. Samuel Guibal a guidé mes premiers pas dans le monde de la recherche et Daniel Comparat s'est toujours montré disponible pour me faire partager ses connaissances et son savoir-faire, notamment lors de la correction de ce mémoire de thèse. J'ai particulièrement apprécié leur bonne humeur, leur dynamisme et leur grande culture scientifique.

Cette thèse est le résultat du travail d'une équipe au sein de laquelle l'ambiance a toujours été chaleureuse. J'ai eu la chance de travailler avec Nathalie Hoang, Thibault Vogt et Marcel Müdrich avec lesquels j'ai partagé la même passion pour la recherche. Je dois beaucoup à chacun d'entre eux et je les en remercie. Je n'oublierai jamais ces longues nuits de travail passées sur l'expérience aux côtés de Thibault ; j'en garde un excellent souvenir.

Je remercie les nombreuses personnes du laboratoire avec qui j'ai pu interagir de près ou de loin pendant cette thèse ; je pense en particulier à Anne Crubellier, Andrea Fioretti, Jacques Pinard, Dan Marescaux, Olivier Dulieu et Laurence Pruvost.

Je tiens à remercier tout spécialement Bruno Laburthe Tolra grâce à qui j'ai effectué en DEUG mon premier stage dans le milieu de la recherche, dans l'équipe atomes froids du laboratoire Aimé Cotton. Il a joué un rôle important dans le choix et le bon déroulement de ma thèse et je lui en suis extrêmement reconnaissant.

J'aimerais remercier toutes les personnes qui ont rendu agréable mon quotidien au laboratoire, et tout particulièrement Cyril Drag et René-Jean Champeau pour leur soutien amical, leurs conseils bienveillants et les discussions passionnantes que l'on a eues ensemble.

Je suis reconnaissant à tout le personnel du laboratoire qui a assuré avec beaucoup d'efficacité et de gentillesse le support administratif et technique de nos expériences. Je pense à Amanda Trépagny qui a toujours été là pour faciliter les multiples tâches administratives et qui m'a témoigné beaucoup de sympathie. Je pense aussi à Sylvie Poumalet, qui a participé à égayer toutes ces belles matinées au laboratoire. Je n'oublie pas les membres de l'atelier mécanique (Patrice Leroy, Henri Pézard, Daniel Civiale et Alain Drouet), ceux de l'atelier d'électronique (Roger Leroux, Jacques Durand, Eric Marius et Alain Jucha), le support administratif (Josiane Felgines, Claudine Leroux, et Mireille Fremont), Jean-Louis Tutou, Stéphane Roux, Marie-Henriette Carroll, Roland Bremont, Pierre Farret, Benoît Lantin, Gregory Pollet, et Jocelyne Sinzelle. J'ai une pensée particulière pour Bruno Vivan, de l'atelier dessin, pour ses conseils avisés et sa gentillesse.

Je me souviendrai de l'ambiance exceptionnelle qui régnait entre thésards et post-docs du laboratoire. Je pense aux amis du bureau, Vincent Crozatier, Guillaume Gorju et Vincent Lavielle, au trinôme 2002-2005 que l'on formait avec Aurélie Lando et Frédéric de Seze, aux anciens, Nicolas Vanhaecke, Sihem Azizi, Philippe Pellegrini, Fabienne Goldfarb, Carine Julien, Kai Willner et Sébastien Fraigne, à la post-doc, Emiliya Dimova et aux plus jeunes, Guillaume Stern, Haikel Jelassi, Walid Chaibi, Pierre Feiden, Elodie Milhiet, Matthieu Viteau et aux autres que je n'ai pas eu la chance de mieux connaître. A tous je vous souhaite bonne chance pour l'avenir.

J'adresse tous mes remerciements à Olivier Gorceix et Pierre Labastie qui ont eu la gentillesse d'accepter d'être les rapporteurs de ce travail de thèse, ainsi qu'à Michèle Leduc, Thomas Coudreau et Matthias Weidemüller pour leur participation au jury de ma soutenance de thèse.

Enfin, j'ai une profonde gratitude envers tous ceux qui, en dehors du laboratoire, m'ont toujours soutenu. Je pense en tout premier lieu à mes parents, mon frère, les grand-parents et le tonton pour leur relecture attentive du manuscrit, Benchicao, les Rous, les Mathieu-Fournier, le club de hand de Lagny et tous mes amis. Je ne pourrais terminer ces lignes sans remercier infiniment ma douce Lucie pour son soutien et son dévouement tout au long de ces trois années de travail.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Table des matières

Introduction générale **11**

I Piégeage d'atomes et de molécules ultrafroids de césium **15**

1 Principe du piégeage dipolaire : Application au césium **17**
1.1 **Introduction** . . . 17
1.1.1 Présentation du chapitre . . . 18
1.2 **Piégeage dans un faisceau laser focalisé** . . . 19
1.3 **Approche quantique de l'atome habillé** . . . 21
1.4 **Expression générale du potentiel dipolaire et du taux de diffusion** . . . 24
1.4.1 Le potentiel de piégeage . . . 24
1.4.2 Le taux de diffusion . . . 24
1.5 **Détermination de la polarisabilité** . . . 26
1.5.1 Polarisabilité atomique . . . 27
Calcul classique : Modèle de Lorentz . . . 27
Calcul semi-classique . . . 28
Atome à plusieurs niveaux : . . . 28
Atome à deux niveaux : . . . 29
1.5.2 Polarisabilité moléculaire . . . 29
1.6 **Piège FORT (Far Off Resonance Trap)** . . . 31
1.7 **Piège QUEST(QUasi-ElectroStatic Trap)** . . . 32
1.8 **Cas du piégeage d'atomes froids de césium** . . . 33
1.8.1 L'atome de césium . . . 33
1.8.2 Piégeage avec un laser Nd:YAG . . . 35
Potentiel dipolaire . . . 35
Piège de type FORT : . . . 35
Taux de diffusion . . . 36
Taux de chauffage . . . 37
Récapitulatif des paramètres du piège dipolaire . . . 38
1.8.3 Piégeage avec un laser CO_2 . . . 38
1.8.4 Conclusion . . . 38
1.9 **Cas du piégeage de molécules froides de césium** . . . 40
1.9.1 Piégeage avec un laser Nd:YAG . . . 40
1.9.2 Piégeage avec un laser CO_2 . . . 41
Absorption des photons du CO_2 . . . 42
Absorption du rayonnement du corps noir . . . 43
1.9.3 Conclusion . . . 45

2 Piège atomique optique et magnétique vers la CBE **47**
2.1 **Introduction** . . . 47
2.1.1 Présentation du chapitre . . . 47
2.2 **Vers la Condensation de Bose-Einstein (CBE)** . . . 49
2.2.1 Généralités . . . 49
2.2.2 Du gaz thermique au gaz quantique dégénéré . . . 51
Gaz thermique . . . 51
Piège Magnéto-Optique . . . 51
Piège conservatif . . . 52
Refroidissement évaporatif . . . 53
2.2.3 Cas du césium . . . 55
Interactions entre atomes de césium ultrafroids . . . 55
Collisions inélastiques à deux corps . . . 57
Transitions d'échange : . . . 57
Transitions dipolaires : . . . 57
Tentatives expérimentales de CBE du césium . . . 57
Etat $|f = 4, m_f = 4\rangle$: . . . 58
Etat $|f = 3, m_f = -3\rangle$: . . . 59
Condensation de Bose-Eintein avec l'état $|f = 3, m_f = +3\rangle$: . . . 60
2.3 **Présentation du piège hybride** . . . 63
2.3.1 Principe du piège . . . 63
Piégeage magnétique 1D . . . 64
Piégeage optique 2D . . . 64
Piégeage optique et magnétique 3D . . . 65
2.3.2 Dispositif expérimental . . . 65
Présentation globale . . . 65
Système de vide . . . 65
Montage optique . . . 66
Lasers du MOT : . . . 67
Laser de polarisation : . . . 68
Laser de confinement dipolaire : . . . 69
Système d'imagerie . . . 70
Imagerie par fluorescence : . . . 70
Imagerie par absorption : . . . 70
2.4 **Caractérisation du piège : régime collisionnel** . . . 71
2.4.1 Transfert des atomes vers le piège hybride . . . 71
2.4.2 Durée de vie . . . 73
2.4.3 Régime collisionnel : oscillations du nuage . . . 74
Oscillations du centre de masse . . . 75
Oscillations de la taille du nuage . . . 76
Influence du champ magnétique sur le régime collisionnel . . . 78
Section efficace et taux de collisions élastiques : . . . 78
Détermination du régime collisionnel du piège hybride : . . . 78
2.4.4 Conclusion . . . 82
2.5 **Orientation vers un piège tout optique** . . . 83

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

3 Piège dipolaire QUEST de molécules ultrafroides 85
3.1 **Introduction** . . . 85
3.1.1 Les différentes techniques de formation de molécules froides . . . 85
Méthodes de refroidissement indirect . . . 86
Photoassociation : . . . 86
Résonance de Feshbach : . . . 87
Méthodes de refroidissement direct . . . 88
Refroidissement par Gaz tampon : . . . 88
Ralentisseur Stark : . . . 88
3.1.2 Présentation du chapitre . . . 88
3.2 **Formation de molécules ultrafroides par photoassociation** . . . 89
3.2.1 Principe de la photoassociation (PA) . . . 89
3.2.2 Taux de photoassociation . . . 90
3.2.3 Bref historique et intérêt de la photoassociation . . . 94
3.2.4 Formation de molécules ultrafroides : cas du césium . . . 95
3.3 **Description du dispositif expérimental** . . . 99
3.3.1 Le Piège Magnéto-Optique (MOT) . . . 99
3.3.2 Le piège dipolaire : laser CO_2 . . . 101
Laser CO_2 . . . 101
Système optique et caractéristiques du piège . . . 102
Procédures d'alignement . . . 103
3.3.3 La photoassociation : laser Ti:Sa . . . 104
3.3.4 La détection . . . 105
Principe général de la détection . . . 105
Processus de photoionisation . . . 105
Photoionisation des atomes : . . . 105
Photoionisation des molécules : . . . 105
Laser de photoionisation : . . . 106
Détection des ions . . . 107
Efficacité de la détection . . . 109
3.4 **Piégeage des atomes et des molécules** . . . 109
3.4.1 Chargement atomique du piège dipolaire . . . 109
3.4.2 Piège atomique . . . 111
Interprétation des courbes de décroissance . . . 111
3.4.3 Photassociation dans le piège atomique . . . 114
Séquence temporelle . . . 114
Spectres de photoassociation . . . 115
Forme des raies : . . . 117
3.4.4 Piège moléculaire . . . 122
3.5 **Etude des collisions au sein du piège moléculaire** . . . 125
3.5.1 Equations d'évolution du nombre de molécules . . . 126
3.5.2 Collisions molécule-molécule . . . 127
3.5.3 Collisions molécule-atome . . . 129
3.5.4 Étude des collisions en fonction de l'état interne moléculaire . . . 134
3.5.5 Durée de vie du piège moléculaire . . . 135
Influence du laser CO_2 . . . 136
Influence du gaz chaud : piégeage magnétique . . . 137
3.6 **Conclusion** . . . 139

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

II Spectroscopie haute résolution d'un gaz d'atomes de Rydberg froids en interaction 141

4 Spectroscopie haute résolution d'un gaz d'atomes de Rydberg froids en interaction 143

4.1 **Préambule** . . . 143

4.2 **Introduction : intérêt des atomes de Rydberg** . . . 143

4.2.1 Information quantique . . . 144

Théorie de l'information classique . . . 145

Théorie de l'information quantique . . . 146

Le bit quantique (qubit) : . . . 146

Opération sur 1 qubit : . . . 147

Opération sur 2 qubits : . . . 148

Opération sur plusieurs qubits : . . . 149

Mesure d'un qubit : . . . 149

Réalisation expérimentale . . . 149

Atomes de Rydberg et information quantique . . . 151

4.2.2 Présentation du chapitre . . . 153

4.3 **Propriétés générales des atomes de Rydberg** . . . 154

4.3.1 Energie des niveaux de Rydberg . . . 154

L'atome d'hydrogène . . . 154

Les atomes alcalins . . . 154

4.3.2 Forces d'oscillateur . . . 156

4.3.3 Durée de vie . . . 156

4.3.4 Atomes de Rydberg en champ électrique . . . 158

Effet Stark sur l'atome d'hydrogène . . . 158

Effet Stark sur les atomes alcalins . . . 159

Détection des états de Rydberg : Ionisation par champ . . . 161

Ionisation par un champ électrique : . . . 161

Polarisabilité . . . 164

4.3.5 Récapitulatif des principales propriétés des atomes de Rydberg . . . 164

4.4 **Evolution spontanée d'un gaz de Rydberg gelé vers un plasma ultrafroid** 165

4.4.1 Initiation du processus d'ionisation . . . 166

Approche expérimentale . . . 166

Excitation des états de Rydberg : . . . 166

Détection des atomes de Rydberg et du plasma : . . . 168

Extraction des seuils de densité de Rydberg pour la formation d'un plasma : . . . 168

Influence du gaz chaud dans la formation du plasma . . . 169

4.5 **Spectroscopie haute résolution d'un gaz d'atomes de Rydberg froids : interaction ions-atomes de Rydberg** . . . 173

4.5.1 Interactions dipôle-dipôle au sein d'un gaz d'atomes de Rydberg froids . 173

Interactions de Van der Waals . . . 173

Interactions dipôle-dipôle en C_3/R^3 . . . 174

4.5.2 Schéma d'excitation et dispositif expérimental . . . 178

Excitation des états de Rydberg . . . 178

Modèle simplifié du schéma d'excitation . . . 180

Détection ionique des atomes de Rydberg . . . 181

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

4.5.3 Etude des raies d'excitation d'états de Rydberg . . . 182
Spectres en champ électrique nul . . . 182
Spectres en champ électrique . . . 186
4.5.4 Interprétation des résultats . . . 188
Photoions du Ti:Sa . . . 188
Distribution homogène des photoions : . . . 190
Distribution gaussienne des photoions : . . . 192
Conclusion . . . 192
4.5.5 Dynamique des ions . . . 193
4.5.6 Schéma de dé-excitation : contourner l'effet parasite des ions . . . 195
4.5.7 Spectroscopie de dépompage . . . 197
4.5.8 Conclusion . . . 199
Revue des expériences en cours . . . 201
Nouvelle orientation : Transfert résonant d'excitation . . . 205
4.6 **Dynamique de l'interaction dipolaire dans le processus de transfert résonant d'excitation** . . . 207
4.6.1 Introduction aux réactions de transfert résonant . . . 207
Collisions résonantes entre atomes de Rydberg . . . 208
Transfert résonant d'énergie dans un gaz de Rydberg gelé . . . 209
Effet à N corps : Diffusion d'excitation . . . 211
4.6.2 Contexte expérimental . . . 215
Deux schémas de spectroscopie : Continu-Continu (CC), Pulsé-Continu(PC) . . . 216
Transfert résonant d'énergie . . . 217
Détection : . . . 218
Dynamique de formation : . . . 219
Résonance du transfert d'énergie : . . . 219
4.6.3 Spectroscopie du croisement évité de l'interaction dipôle-dipôle . . . 220
4.6.4 Dynamique de cohérence de l'interaction dipôle-dipôle . . . 226
Spectroscopie Continu-Continu . . . 226
Spectroscopie Pulsé-Continu . . . 228
Interprétation de la perte de cohérence . . . 228
4.6.5 Conclusion . . . 229
4.7 **Conclusion** . . . 230

Conclusion générale **233**

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Introduction générale

Les avancées marquantes dans le domaine du refroidissement atomique ont permis l'observation d'un nombre impressionnant de phénomènes physiques ces dix dernières années. Le premier couronnement des techniques de refroidissement laser et de piégeage vint avec l'obtention du premier condensat atomique, en 1995, à Boulder (USA), dans le groupe de E. Cornell et C. Wieman. Suivirent ensuite une multitude de démonstrations de condensation de Bose-Einstein sur des atomes différents. Ces expériences, toutes plus ingénieuses les unes que les autres, permirent une avancée certaine dans les techniques de manipulation d'atomes. On a vu par exemple l'émergence de l'utilisation des forces optiques dipolaires pour stocker des atomes et même des molécules froides. Des atomes stockés dans des réseaux optiques ont permis, par exemple, la mise en évidence de la transition de phase superfluide-isolant de Mott. Les forces dipolaires interviennent également dans toutes les expériences ayant mis en évidence les résultats marquants de ces dernières années que sont l'obtention des premiers condensats moléculaires, puis l'observation de la transition BEC-BCS (Condensat de Bose-Einstein - paire de Cooper).
Forte des développements qu'a connu le domaine de la physique atomique, une partie de cette communauté s'est orientée vers l'étude des molécules froides qui est actuellement un domaine en pleine expansion avec, par exemple, l'intérêt prononcé pour les molécules hétéronucléaires, possédant de forts moments dipolaires permanents, les rendant relativement pratiques à manipuler dans des pièges électrostatiques. De telles molécules, placées dans des réseaux optiques, constituent un système prometteur dans le domaine de l'information quantique qui s'ouvre de plus en plus au domaine des atomes et molécules froids.
L'interaction à longue distance entre atomes de Rydberg froids a connu également un vif intérêt, puisque de nombreuses propositions théoriques ont vu le jour pour utiliser les grands moments dipolaires de ces atomes afin de réaliser des portes quantiques, briques élémentaires d'un "futur ordinateur quantique", à la puissance de calcul inégalable.

Il est vite apparu au cours des développements dans le domaine des atomes froids que les collisions froides ou les interactions entre atomes froids étaient au cœur du sujet. "Phénomènes parasites", elles limitent les densités d'atomes dans les pièges magnéto-optiques. Plus intéressant, elles correspondent aussi à des mécanismes essentiels au développement du domaine. On peut citer la photoassociation d'atomes froids permettant une spectroscopie moléculaire innovante de molécules de très longue élongation ou correspondant à des puits de potentiel dont le minimum est à très grande distance interatomique. Le mécanisme de photoassociation a aussi conduit à la mise en évidence de molécules froides dans leur état fondamental, ouvrant un domaine dont l'activité ne se relâche pas. On citera, bien sûr, le refroidissement évaporatif qui a conduit, avec l'obtention des condensats de Bose-Einstein, à une véritable rupture scientifique et technologique dans le domaine des atomes froids, suivant de près celle provoquée avec le refroidissement laser. On mentionnera finalement le

refroidissement sympathique, les résonances de Feshbach et les collisions à trois corps dont l'impact dans le domaine est considérable.
Les collisions et interactions froides se caractérisent par des temps d'interaction très longs et des distances d'interaction très grandes, ce qui conduit à des propriétés nouvelles qu'il convient d'étudier. Ce mémoire aborde deux aspects un peu différents : le premier concerne les collisions élastiques ou inélastiques d'atomes ou de molécules dans un piège. Le but est ici d'obtenir des échantillons atomiques ou moléculaires froids et denses, outils devant ouvrir la voie à de nombreuses applications, dont l'une est la condensation de Bose-Einstein. Le second aspect est l'étude d'un gaz de Rydberg froid, système très particulier où les interactions entre atomes excités deviennent incontournables, mettant un tel système au croisement de la physique atomique et moléculaire, de la physique du solide et la physique des plasmas. Le contrôle de ces interactions peut conduire à de nombreuses applications dont l'une, déjà citée, concerne l'information quantique.

Ma thèse se situe donc dans la thématique des collisions et des interactions impliquant des atomes et des molécules ultrafroids. A travers ce mémoire de thèse nous allons aborder, de près ou de loin, différents thèmes comme la condensation de Bose-Einstein et l'information quantique, tous deux intimement liées à la physique des interactions et collisions entre particules qui restera tout au long de cette thèse le fil conducteur.

A mon arrivée au laboratoire Aimé Cotton, en octobre 2002, j'ai participé à une expérience qui visait à obtenir un condensat de Bose-Einstein à partir d'atomes de césium. L'expérience avait débuté en 1999, et présentait une idée originale pour atteindre le seuil de dégénérescence quantique avec l'atome de césium, qui résistait à toutes les tentatives de condensation depuis 1996. Les propriétés des collisions inélastiques de cet atome rendent vaine toute tentative de condensation dans un piège magnétique. La solution adoptée par notre groupe a consisté à piéger l'atome de césium dans le niveau Zeeman de plus basse énergie en utilisant un piège conservatif "hybride", combinant la force optique dipolaire et la force magnétique. Au début de ma thèse, le dispositif expérimental était quasiment achevé. Le montage de l'ensemble du dispositif expérimental, ainsi que les problèmes techniques rencontrés sont décrits dans le mémoire de thèse de Salah Boussen [Boussen, 2002], qui termina sa thèse à mon arrivée. J'ai participé à l'achèvement de la mise en place du piège hybride, puis à la caractérisation du régime collisionnel des atomes au sein du piège. Ce travail a fait l'objet du mémoire de thèse de Nathalie Hoang [Hoang, 2003] à la fin de l'année 2003. Ce travail de caractérisation du piège hybride a montré un régime de collisions peu favorable à l'obtention d'un condensat de Bose-Einstein à l'aide de ce dispositif expérimental. L'expérience a été provisoirement arrêtée. En effet, à cette date, la condensation de Bose-Einstein de l'atome de césium a été démontrée par le groupe de R. Grimm ; il nous a semblé, compte tenu des forces disponibles sur l'expérience, plus judicieux de réajuster la stratégie pour atteindre la condensation de Bose-Eintein du césium, qui reste un des objectifs du groupe pour des applications aux molécules froides Cs_2.

Mon travail de thèse a pris alors une nouvelle orientation. Je me suis concentré sur l'étude expérimentale des collisions froides impliquant des atomes, des molécules, ainsi que des atomes de Rydberg. J'ai été amené à travailler sur un dispositif expérimental différent, consistant en un piège magnéto-optique chargé par une vapeur d'atomes de césium.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Je me suis consacré dans un premier temps à mettre en place un dispositif de piégeage dipolaire de molécules de césium, réalisé à l'aide d'un laser CO_2. Le but était de réaliser un échantillon dense et froid de molécules, créées par photoassociation d'atomes froids et accumulées dans le piège. Le confinement d'atomes et de molécules a été observé et j'ai pu étudier quantitativement les collisions froides atome-molécule et molécule-molécule au sein de ce piège. Les expériences concernant des collisions froides de molécules sont un domaine nouveau où très peu de résultats ont été obtenus, car cela nécessite l'obtention d'échantillons moléculaires relativement denses. Beaucoup d'équipes dans le domaine des molécules froides font porter leurs efforts sur ce problème.

J'ai finalement étudié, avec le même dispositif expérimental que précédemment, les phénomènes d'interaction qui règnent au sein d'un gaz d'atomes de Rydberg froids et me suis intéressé, plus particulièrement, à comprendre l'origine de son évolution vers un plasma ultrafroid. L'interaction dipôle-dipôle joue en effet un rôle important dans l'initiation de l'évolution spontanée d'un gaz neutre d'atomes de Rydberg vers un plasma ultrafroid. Je me suis par conséquent attaché à mettre en évidence et à caractériser ces interactions à l'aide d'une méthode de spectroscopie optique de haute résolution. Un des buts de cette étude était de caractériser la frontière entre l'image de "gaz de Rydberg gelé", où le mouvement des atomes est dans une première approximation ignoré, et l'image de "gaz de dipôles de Rydberg", où les forces dipolaires exercées entre atomes de Rydberg conduisent à des pertes de cohérence, à des phénomènes d'ionisation et à des issues aussi "dramatiques" que la formation d'un plasma ultrafroid.

Ce mémoire de thèse est divisé en deux parties.

La première est consacrée à l'étude des collisions froides dans des pièges d'atomes et de molécules de césium. Cette partie comporte trois chapitres :

– Le chapitre 1 présente l'origine de la force dipolaire obtenue grâce à un faisceau laser intense focalisé, et a pour but de familiariser le lecteur avec la technique de piégeage dipolaire intervenant dans la réalisation des expériences décrites dans les chapitres 2 et 3. Le piégeage dipolaire d'atomes et de molécules de césium est décrit dans les cas d'un laser de piégeage Nd:YAG et CO_2.
– Le chapitre 2 décrit un montage expérimental de piège hybride dipolaire et magnétique visant à atteindre la condensation de Bose-Einstein. Il débute avec quelques généralités concernant le phénomène de condensation, puis nous expliquons pourquoi il est si difficile de franchir le seuil de dégénérescence quantique avec un gaz d'atomes de césium. Nous décrivons ensuite le principe du piège hybride optique et magnétique que nous avons mis en place. Le régime collisionnel au sein du piège est ensuite caractérisé afin d'établir la possibilité d'obtenir un condensat de Bose-Einstein avec un tel dispositif.
– Le chapitre 3 porte sur la réalisation d'un piège dipolaire pour atomes et molécules froids. Il décrit, dans un premier temps, la technique de formation de molécules froides par photoassociation, puis passe en revue le dispositif expérimental et les différentes étapes qui nous ont permis, d'abord d'obtenir un piège dipolaire atomique puis, dans un second temps, de confiner les molécules. Ce dispositif rendant possible le piégeage simultané d'atomes et de molécules, nous avons pu mesurer les taux de collisions inélastiques molécule-atome et molécule-molécule

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

dans le piège dipolaire. Ces taux de collisions sont d'une importance capitale pour évaluer la possibilité d'atteindre le régime de dégénérescence quantique moléculaire. Une partie du chapitre est consacrée à la dépendance de ces taux de collisions en fonction de l'état interne des molécules piégées.

La deuxième partie de cette thèse est consacrée à l'étude des interactions dipôle-dipôle au sein d'un gaz d'atomes de Rydberg froids :

Cette expérience est décrite dans le chapitre 4 de cette thèse. Les résultats présentés dans ce chapitre proviennent d'expériences réalisées sur le même dispositif expérimental que celui décrit dans le chapitre 3. Une partie de l'introduction du chapitre 4 est consacrée à une brève présentation de la théorie de l'information quantique, domaine dans lequel les interactions dipôle-dipôle entre atomes de Rydberg peuvent être amenées à jouer un rôle important. Les propriétés fondamentales des atomes de Rydberg sont ensuite passées en revue. Les premiers résultats expérimentaux de ce chapitre concernent l'évolution d'un gaz d'atomes froids de Rydberg vers la formation d'un plasma froid, où les interactions dipôle-dipôle jouent un rôle capital dans le démarrage du processus. Nous présentons dans ce chapitre des méthodes originales de spectroscopie optique haute résolution que nous avons mises au point pour sonder et mettre en évidence ces interactions dipolaires. Nous avons utilisé pour cela un laser continu Ti:Sa dont la largeur spectrale est de l'ordre du mégahertz. Cette spectroscopie nous a permis de mettre en évidence l'influence d'ions parasites sur le profil des raies d'excitation des états de Rydberg. Le rôle de ces ions est un élément clé dans l'évolution future de ces expériences. Une partie du chapitre est consacrée à évaluer leur effet sur la spectroscopie des états de Rydberg que nous avons réalisée. Le chapitre se termine par la caractérisation de la dynamique de cohérence de l'interaction dipôle-dipôle à travers l'étude du processus de transfert résonant d'énergie, utilisant une spectroscopie de dépeuplement des états de Rydberg.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Première partie

Piégeage d'atomes et de molécules ultrafroids de césium

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Chapitre 1

Principe du piégeage dipolaire : Application au césium

1.1 Introduction

Nous allons voir dans ce chapitre comment la force dipolaire, obtenue avec un faisceau laser suffisamment intense, peut nous permettre de réaliser un piège pour des particules neutres. L'origine de cette force vient de l'interaction dispersive entre le champ électrique d'une onde lumineuse et le moment dipolaire qu'il induit sur la particule. Cette force de nature conservative dérive donc d'un potentiel dont le minimum détermine la position de piégeage des particules soumises au rayonnement. Alors que la force de pression de radiation est dirigée suivant l'axe de propagation du faisceau laser, la force dipolaire, elle, agit suivant la direction du gradient de l'intensité du laser.

L'action de cette force dipolaire sur des atomes a été pour la première fois observée en 1978 [Bjorkholm et al., 1978]. En alignant un faisceau laser focalisé, proche de résonance atomique, le long d'un jet atomique, les chercheurs observèrent la déflection et la focalisation des atomes. La lumière exerçait alors sur les atomes une force perpendiculaire à la direction de propagation du laser, ce qui prouvait l'influence de la force dipolaire et non celle de la pression de radiation.

La possibilité de piéger des atomes en utilisant la force dipolaire a été proposée bien avant, dès 1968, par Letokhov [Letokhov, 1968]. L'idée consistait à piéger les atomes aux anti-nœuds d'une onde stationnaire, dont la fréquence était décalée vers le rouge de la transition atomique. Il fallut attendre 1986 pour voir, en exploitant la force dipolaire, la réalisation du premier piège atomique tout optique [Chu et al., 1986]. Dans cette expérience, près de cinq cents atomes de sodium furent confinés au niveau du col d'un faisceau laser d'environ 220 mW, focalisé sur 10 microns, et décalé de 650 GHz vers le rouge de la transition atomique.

L'année suivante, le concept du piège magnéto-optique fut suggéré puis réalisé expérimentalement [Raab et al., 1987], permettant alors le piégeage d'un nombre bien plus important d'atomes, à des densités plus élevées. L'utilisation de pièges dipolaires fut alors plus ou moins abandonnée puis reprise en 1993 avec la réalisation d'un piège dipolaire fortement hors résonance [Miller et al., 1993]. Ce piège était formé par un laser beaucoup plus puissant et bien plus désaccordé par rapport aux transitions atomiques que les premiers pièges dipolaires. Quelques milliers d'atomes furent piégés, et les grands désaccords employés permirent des durées de vie de piégeage plus longues. On se dirigeait alors vers la conception de pièges dipolaires aux taux de diffusion très faibles et donc de nature conservative.

Les tentatives de piégeage dipolaire de molécules furent bien moins nombreuses que

celles effectuées sur les atomes. Au début des années 1970, il y eut toutefois, d'après ([Balykin et al., 2000] p1432), une tentative pour observer le confinement unidimensionnel de molécules dans une onde stationnaire produite par un puissant laser continu CO_2. La preuve du confinement n'avait pas été établie à cause de la difficulté qu'il y avait de détecter de probables molécules piégées. Finalement, en 1998, l'équipe de Knize démontra expérimentalement la possibilité de piéger des molécules de césium dans un laser CO_2 [Takekoshi et al., 1998]. Ces molécules de Cs_2, très peu nombreuses, correspondaient à celles qui sont "naturellement" présentes dans un piège magnéto-optique de césium.

1.1.1 Présentation du chapitre

Nous allons, dans ce chapitre, commencer par donner une brève description du principe de réalisation d'un piège dipolaire, obtenu par simple focalisation d'un faisceau laser. Nous verrons par la suite comment déterminer l'expression du potentiel de ce type de piège. Deux méthodes seront présentées :
– la première, celle de l'atome habillé, permet de comprendre de manière intuitive et donc simplement, l'origine du potentiel d'interaction permettant la réalisation d'un piège optique.
– la deuxième consiste à faire une analogie entre la particule neutre que l'on veut piéger et un simple oscillateur soumis à une radiation lumineuse. Cette vision nous permet d'en déduire l'expression générale du potentiel dipolaire, ainsi que celle du taux de diffusion, grandeur essentielle pour déterminer le caractère conservatif d'un piège lumineux.

L'expression du potentiel d'interaction fait intervenir la polarisabilité électrique de la particule, qu'il s'agit de déterminer pour caractériser le piège de façon complète. Nous donnerons son expression dans le cas où la particule neutre est un atome ou une molécule.
Nous décrirons ensuite les cas particuliers des pièges optiques FORT et QUEST obtenus selon le désaccord du faisceau laser par rapport aux transitions énergétiques de la particule piégée. Pour finir, nous présenterons les caractéristiques d'un piège dipolaire d'atomes et de molécules froids de césium, dans les cas d'un laser de piégeage Nd:YAG et d'un laser CO_2.

Ce chapitre ne présente pas de résultat expérimental. Il a simplement pour but de familiariser le lecteur avec les techniques de piégeage optique dipolaire intervenant dans la réalisation des expériences décrites aux chapitres 2 et 3 de la première partie de cette thèse. Dans le chapitre 2, une expérience de piégeage d'atomes de césium est réalisée à l'aide d'un laser Nd:YAG. Dans le chapitre 3, nous présentons les caractéristiques d'un piège dipolaire d'atomes et de molécules de césium confinés en utilisant un laser CO_2.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

1.2 Piégeage dans un faisceau laser focalisé

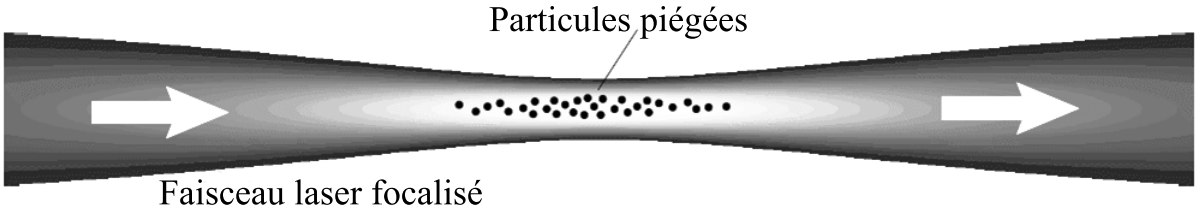

FIG. 1.1 – Piégeage dans un faisceau laser focalisé.

La force dipolaire agissant sur les particules est orientée, comme nous allons le voir dans les sections suivantes, vers les régions de forte intensité si le champ lumineux est décalé en fréquence vers le rouge de la transition atomique. Dans ce cas, la focalisation d'un faisceau laser, constitue, au niveau du waist (point de focalisation), le moyen le plus simple de créer un piège dipolaire confinant dans les trois dimensions de l'espace. L'idée est illustrée sur la Fig. 1.1. L'intensité d'un faisceau gaussien focalisé, de puissance P, et se propageant suivant l'axe z, s'écrit sous la forme :

$$I(r,z) = \frac{2P}{\pi w^2(z)} \exp\left(-2\frac{r^2}{w^2(z)}\right) \tag{1.1}$$

où $r = \sqrt{x^2+y^2}$ représente la coordonnée radiale associée au faisceau.

La taille (rayon à $1/e^2$) transverse $w(z)$ du faisceau est donnée par :

$$w(z) = w_0\sqrt{1+\left(\frac{z}{z_R}\right)^2} \tag{1.2}$$

où le rayon mininum du faisceau w_0 est appelé le waist du faisceau focalisé, et $z_R = \pi w_0^2/\lambda$ est la longueur de Rayleigh, λ étant la longueur d'onde du faisceau laser.

A partir de l'expression (1.1), on peut déduire le potentiel dipolaire du piège créé, puisque, comme on le verra d'après l' Eq. (1.14), $U_{dip}(r,z) \propto I(r,z)$; la profondeur du piège est, elle, donnée par $U_0 = |U(r=0,z=0)|$.
La distance de Rayleigh z_R étant plus grande que le waist du faisceau d'un facteur $\pi w_0/\lambda$, le potentiel est donc beaucoup plus lâche suivant la direction longitudinale. Pour réaliser un piège, on doit s'assurer que la force gravitationnelle n'est pas plus importante que la force de confinement dipolaire. La plupart du temps, on aligne donc le faisceau le long de l'axe horizontal, la force de confinement radiale compensant l'effet de la gravité. Le potentiel vertical (axe y) dans lequel évoluent les particules est alors diminué d'une quantité mgy (où m est la masse de chaque particule et g la constante gravitationnelle). La profondeur du piège suivant la direction verticale n'est donc plus U_0 mais une valeur plus faible U_0^{vert} (voir Fig. 1.2).

Si l'énergie thermique k_BT des particules piégées est bien plus petite que la profondeur du potentiel U_0, on peut alors approximer le potentiel optique avec un simple potentiel d'oscillateur harmonique (voir Fig. 1.2) à symétrie cylindrique :

$$U_{dip}(r,z) \simeq -U_0\left[1-2\left(\frac{r}{w_0}\right)^2-\left(\frac{z}{z_R}\right)^2\right] \tag{1.3}$$

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Les fréquences d'oscillation suivant les directions radiale ω_r et longitudinale ω_z d'une particule piégée de masse m sont alors données par :

$$\omega_r = \sqrt{\frac{4U_0}{mw_0^2}} \qquad \omega_z = \sqrt{\frac{2U_0}{mz_R^2}} \tag{1.4}$$

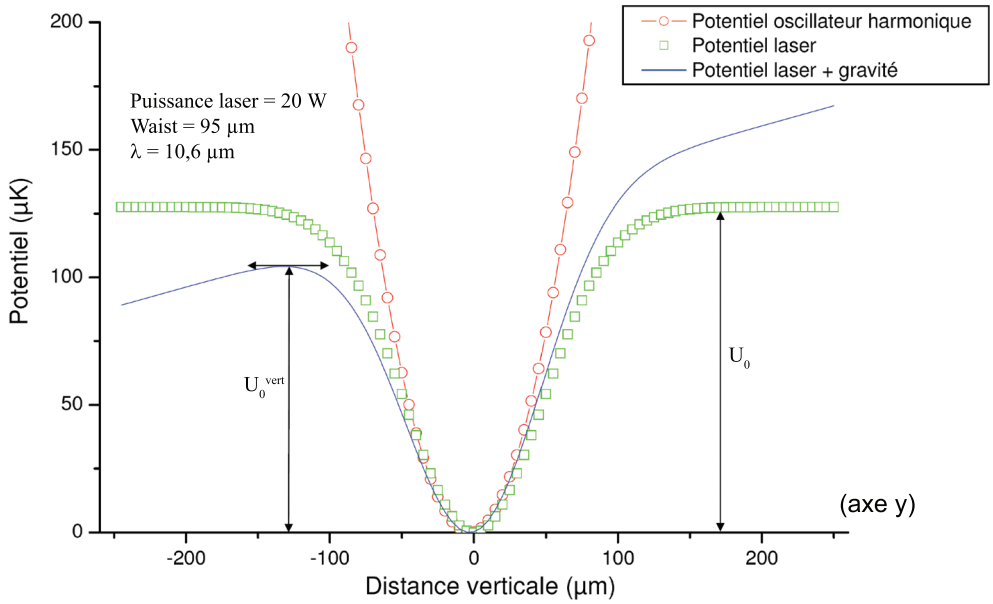

FIG. 1.2 – En ligne continue : l'énergie potentielle totale (laser + gravité) suivant l'axe vertical d'un atome de césium dans le cas d'un laser se propageant horizontalement, de 20 W, focalisé sur 95 μm, et remplissant les critères pour la réalisation d'un QUEST (utilisation des expressions (1.38) et (1.1) pour tracer les énergies potentielles). La courbe de carrés représente l'énergie potentielle de l'atome confiné, sans tenir compte de la gravité et dans les mêmes conditions que précédemment. La courbe de cercles reliés représente l'énergie potentielle de l'oscillateur harmonique associé. On voit que pour de faibles températures, le potentiel de l'oscillateur harmonique constitue une bonne approximation du système global.

Nous allons, dans la suite, exposer deux approches pour déterminer l'expression du potentiel dipolaire de ce type de piège. La première, la méthode quantique de l'atome habillé et la deuxième, qui consiste à faire une analogie classique entre la particule neutre que l'on veut piéger et un simple oscillateur soumis à une radiation lumineuse.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

1.3 Approche quantique de l'atome habillé

L'image de l'atome habillé est une façon élégante et intuitive de décrire la force dipolaire. Cette méthode a été décrite en détail par [Cohen-Tannoudji et al., 1988, Dalibard and Cohen-Tannoudji, 1985] et nous voulons en donner ici les idées principales [Helmerson and Phillips, 1998].

On considère d'un côté un atome à 2 niveaux, avec un état fondamental $|g\rangle$ et un état excité $|e\rangle$. De l'autre côté, nous avons un champ lumineux quantifié, dont un seul mode, de fréquence ω_L, est excité et dont les niveaux d'énergie sont notés $\{..., |N-1\rangle, |N\rangle, |N+1\rangle, ...\}$ selon le nombre de photons dans le mode du champ. Les énergies de ces deux systèmes distincts sont illustrées sur la Fig. 1.3-a) dans le cas où l'énergie du photon $\hbar\omega_L$ est plus grande que la différence en énergie entre les deux niveaux atomiques $\hbar\omega_A$. Cela correspond à la vision où l'on considère les niveaux d'énergie de l'atome et ceux du champ lumineux séparément.

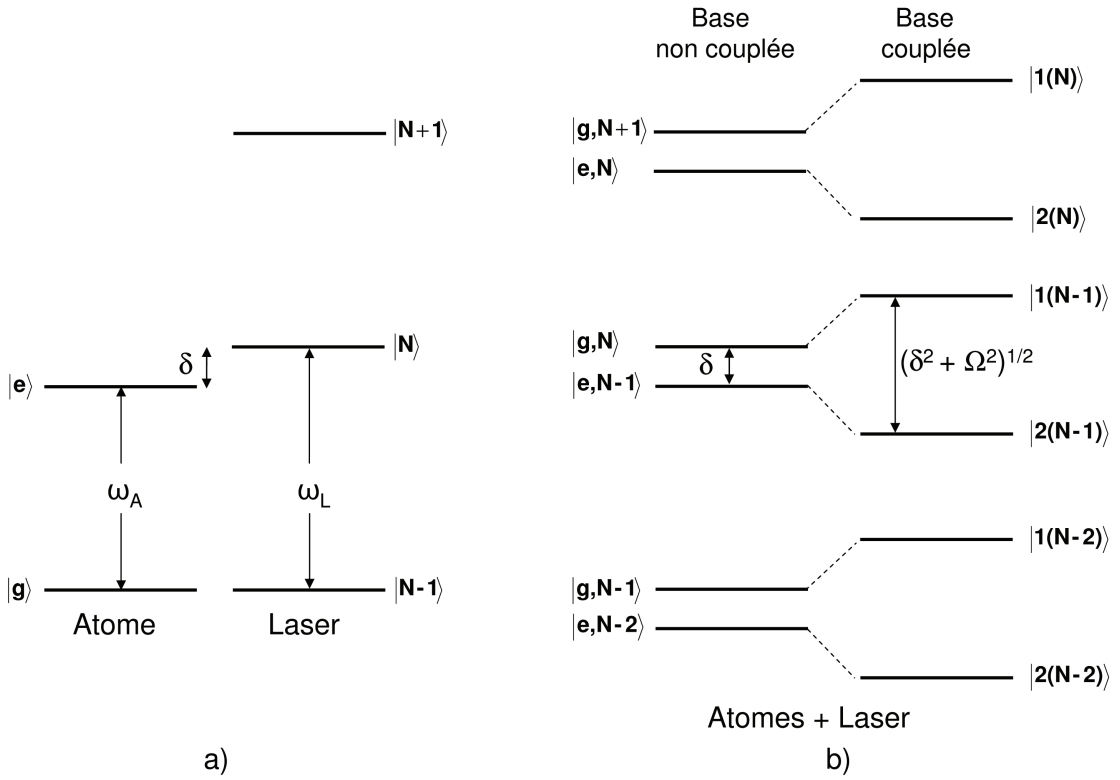

FIG. 1.3 – a) Diagrammes énergétiques d'un atome à deux niveaux et d'un champ laser indépendant. b) Représentation du système total atome + champ dans la base de l'atome habillé, dans le cas où le champ laser n'est pas couplé à l'atome (à gauche), et dans le cas d'un couplage entre le champ laser et l'atome (à droite).

Si nous étudions maintenant le système global atome + champ, nous travaillons alors dans la base de l'atome habillé (atome habillé par les photons laser) décrite sur la Fig. 1.3-b). S'il n'y a aucune interaction entre l'atome et le champ laser (quand par exemple le champ laser et l'atome ne se recouvrent pas spatialement), les énergies des niveaux habillés sont simplement la somme de l'énergie de l'atome et celle du champ (base non couplée).

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

On peut s'imaginer le diagramme d'énergie comme une échelle dont chaque barreau est une paire de niveaux presque dégénérés, puisqu'un atome dans l'état fondamental habillé par N photons du champ, $|g, N\rangle$, a quasiment la même énergie qu'un atome dans le niveau excité habillé par $N-1$ photons, $|e, N-1\rangle$. La différence énergétique entre les niveaux d'un même barreau est simplement égale au désaccord δ du laser.

Quand l'atome interagit avec le champ (base couplée), les états habillés deviennent une superposition des états fondamental et excité de la base non couplée. Le couplage entre les niveaux $|g, N\rangle$ et $|e, N-1\rangle$ crée les deux états propres notés $|1(N-1)\rangle$ et $|2(N-1)\rangle$.
Par convention, l'état $|1(N-1)\rangle$ est celui de plus haute énergie, de sorte que les états propres $|1(N-1)\rangle$ et $|2(N-1)\rangle$ s'écrivent :

$$|1(N-1)\rangle = \sin\theta|g, N\rangle + \cos\theta|e, N-1\rangle \tag{1.5}$$

$$|2(N-1)\rangle = \cos\theta|g, N\rangle - \sin\theta|e, N-1\rangle \tag{1.6}$$

où θ est défini par $\operatorname{cotg} 2\theta = -\delta/\Omega_1$ avec $0 \leq 2\theta < \pi$, Ω_1 représentant la fréquence de Rabi.

Ces niveaux vont se repousser d'autant plus que leur couplage est important. Ils sont disposés symétriquement par rapport aux niveaux non perturbés et sont séparés par un intervalle d'énergie :

$$\hbar\Omega = \hbar\sqrt{\delta^2 + \Omega_1^2} \tag{1.7}$$

On considère maintenant un champ laser variant dans l'espace, tel qu'un faisceau laser focalisé de profil d'intensité gaussien. La fréquence de Rabi vue par l'atome variera elle aussi dans l'espace, tout comme l'énergie des niveaux habillés.
Les courbes d'énergie des niveaux $|1(N-1)\rangle$ ou $|2(N-1)\rangle$, dans lesquelles peut se touver un atome, apparaissent comme des courbes d'énergie potentielle. La force dipolaire provient de cette variation d'énergie des niveaux habillés, et agit sur les atomes en les poussant vers les minima de potentiel.

Pour des désaccords vers le bleu ($\delta > 0$), le niveau le plus haut des niveaux habillés, $|1(N-1)\rangle$, est relié au niveau fondamental, $|g, N\rangle$, dans la limite de faible interaction. L'atome peuple préférentiellement cet état, et donc le potentiel a tendance à repousser les atomes hors du faisceau laser, vers les régions de faible intensité (voir Fig. 1.4).

Pour $\delta < 0$, c'est cette fois le niveau habillé le plus bas, $|2(N-1)\rangle$, qui est connecté au niveau fondamental, $|g, N\rangle$, toujours préférentiellement peuplé par l'atome ; le potentiel attire donc l'atome vers les régions de forte intensité, au centre du faisceau (voir Fig. 1.4).

Dans le cas où $\delta < 0$, l'expression du potentiel de piégeage est donnée par le déplacement lumineux du niveau $|2(N-1)\rangle$:

$$U_{dip}(\boldsymbol{r}) = \frac{\hbar\sqrt{\delta^2 + \Omega_1^2(\boldsymbol{r})}}{2} - \frac{\hbar\delta}{2} \tag{1.8}$$

Dans des conditions éloignées de la résonance, où $|\delta| \gg \Omega_1(\boldsymbol{r})$, qui s'apparente au cas du FORT (voir Sec.1.6), on peut faire un calcul approché de la racine carrée :

$$\sqrt{\delta^2 + \Omega_1^2(\boldsymbol{r})} \simeq |\delta| + \frac{\Omega_1^2(\boldsymbol{r})}{2|\delta|} \tag{1.9}$$

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

En injectant l'expression approchée (1.9) dans (1.8), on trouve l'expression (1.35) qui sera établie dans le cas d'un FORT (Far Off Resonance Trap) :

$$U_{dip}(\boldsymbol{r}) = \frac{\hbar\Omega_1^2(\boldsymbol{r})}{4\delta} \tag{1.10}$$

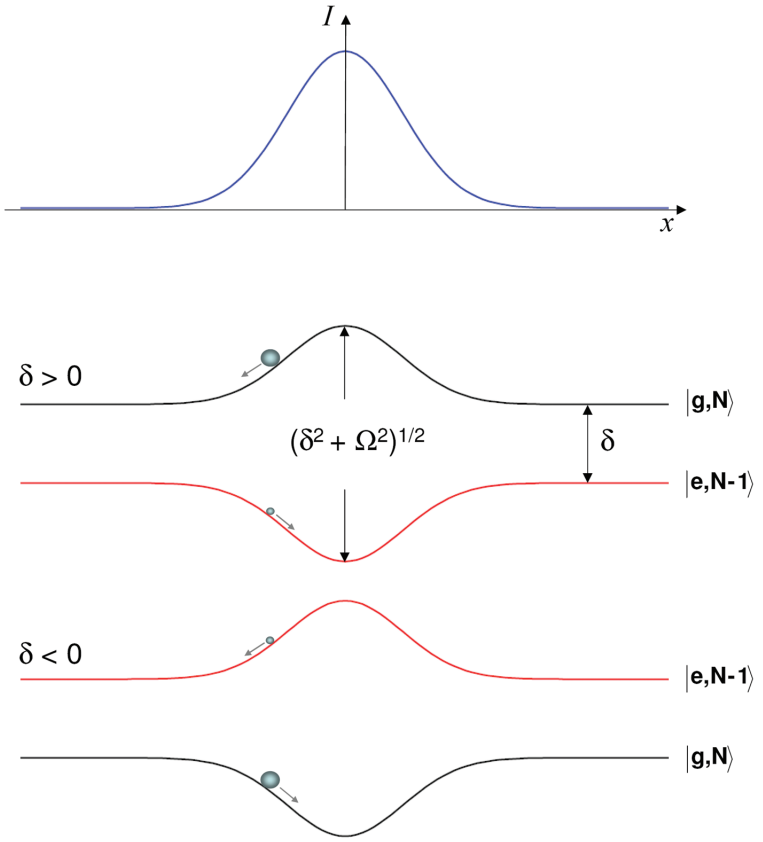

FIG. 1.4 – En haut : le profil d'intensité gaussien du faisceau laser. En bas : la variation spatiale de l'énergie des niveaux habillés pour ce profil d'intensité et pour des désaccords δ positifs et négatifs. La taille des ronds indique la population relative des niveaux habillés.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

1.4 Expression générale du potentiel dipolaire et du taux de diffusion

Pour se faire une idée simple de l'interaction dipolaire, nous allons considérer ici la particule comme un simple oscillateur soumis à une radiation lumineuse classique. Le champ électrique $\boldsymbol{E}$ associé, induit sur la particule un moment dipolaire électrique $\boldsymbol{d}$ qui oscille à la pulsation d'excitation ω_L. On adoptera la notation complexe habituelle :

$$\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r},t) = \boldsymbol{\epsilon}\tilde{E}(\boldsymbol{r})\exp(-i\omega_L t) + c.c. \tag{1.11}$$

$$\boldsymbol{d}(\boldsymbol{r},t) = \boldsymbol{\epsilon}\tilde{d}(\boldsymbol{r})\exp(-i\omega_L t) + c.c. \tag{1.12}$$

où $\boldsymbol{\epsilon}$ désigne le vecteur unitaire de polarisation du champ électrique, et c.c. désigne le complexe conjugué.

Les amplitudes complexes du moment dipolaire et du champ électrique sont reliées simplement par :

$$\tilde{d} = \alpha\tilde{E} \tag{1.13}$$

où α représente la polarisabilité électrique complexe et dépend explicitement de la fréquence ω_L de l'onde lumineuse. Son expression sera donnée plus loin.

1.4.1 Le potentiel de piégeage

Le potentiel d'interaction du moment dipolaire $\boldsymbol{d}$ avec le champ électrique $\boldsymbol{E}$ s'écrit alors :

$$U_{dip}(\boldsymbol{r}) = -\frac{1}{2}\langle \boldsymbol{d}.\boldsymbol{E}\rangle = -\frac{1}{2\epsilon_0 c}Re(\alpha)I(\boldsymbol{r}) \tag{1.14}$$

où $\langle . \rangle$ représente une moyenne temporelle, le facteur 1/2 prend en compte le fait que le moment dipolaire $\boldsymbol{d}$ est induit et non permanent. L'intensité I est reliée au champ par $I = 2\epsilon_0 c|\tilde{E}|^2$.

L'énergie potentielle de la particule dans le champ lumineux est donc proportionnelle à l'intensité $I(\boldsymbol{r})$ et à la partie réelle de la polarisabilité électrique $Re(\alpha)$. Cette dernière décrit la composante du moment dipolaire qui oscille en phase avec le champ électrique, responsable des propriétés dispersives de l'interaction et donc de la force dipolaire :

$$\boldsymbol{F}_{dip}(\boldsymbol{r}) = -\boldsymbol{\nabla}U_{dip}(\boldsymbol{r}) = \frac{1}{2\epsilon_0 c}Re(\alpha)\boldsymbol{\nabla}I(\boldsymbol{r}) \tag{1.15}$$

La force dipolaire est donc proportionnelle au gradient de l'intensité du champ lumineux.

1.4.2 Le taux de diffusion

Il faut tenir compte aussi du phénomène d'absorption (et ré-émission) de photons du champ par la particule, qui fait intervenir cette fois la partie imaginaire de la polarisabilité $Im(\alpha)$. Cette dernière décrit la composante du moment dipolaire qui oscille en quadrature avec le champ, responsable de la force de pression de radiation.
La puissance absorbée par la particule s'écrit :

$$P_{abs}(\boldsymbol{r}) = \left\langle \left(\frac{d}{dt}\boldsymbol{d}\right).\boldsymbol{E} \right\rangle = 2\omega_L Im(\tilde{d}\tilde{E}^*) = \frac{\omega_L}{\epsilon_0 c}Im(\alpha)I(\boldsymbol{r}) \tag{1.16}$$

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Si l'on considère le faisceau lumineux comme un flux de photons d'énergie $\hbar\omega_L$, la puissance absorbée peut être interprétée en terme de diffusion de photons avec des cycles d'absorption et émission spontanée. On décrit alors l'absorption par le taux de diffusion :

$$\Gamma_{diff}(\boldsymbol{r}) = \frac{P_{abs}(\boldsymbol{r})}{\hbar\omega_L} = \frac{1}{\hbar\epsilon_0 c} Im(\alpha) I(\boldsymbol{r}) \tag{1.17}$$

Nous avons exprimé les deux principales grandeurs d'un piège dipolaire, le potentiel d'interaction et le taux de diffusion, en fonction de l'intensité du champ laser $I(\boldsymbol{r})$ et de la polarisabilité $\alpha(\omega_L)$ de la particule. Ces expressions (1.14) et (1.17) sont valables pour n'importe quelle particule neutre polarisable dans un champ électrique oscillant, quel que soit le désaccord du laser par rapport aux transitions énergétiques.

Nous allons maintenant expliquer comment déterminer la polarisablité électrique d'un atome et d'une molécule pour en déduire les valeurs du potentiel d'interaction et du taux de diffusion dans un piège dipolaire.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

1.5 Détermination de la polarisabilité

Le concept de polarisabilité est basé sur l'idée que les particules chargées d'un atome ou d'une molécule non polaire peuvent être mis en mouvement dans des directions opposées, suivant le signe de leur charge, en interagissant avec un champ électrique extérieur $\boldsymbol{E}$. L'atome ou la molécule acquiert ainsi un moment dipolaire électrique $\boldsymbol{d}$, en général d'autant plus important que le champ électrique est intense. Généralement, cette dépendance n'est pas linéaire ; toutefois, pour des champs faibles, on peut effectuer un développement en puissance de $\boldsymbol{E}$, et au premier ordre on obtient :

$$\boldsymbol{d} = \bar{\bar{\alpha}}\boldsymbol{E} \tag{1.18}$$

(1.19)

$$\begin{pmatrix} d_x \\ d_y \\ d_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \alpha_{xx} & \alpha_{xy} & \alpha_{xz} \\ \alpha_{yx} & \alpha_{yy} & \alpha_{yz} \\ \alpha_{zx} & \alpha_{zy} & \alpha_{zz} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix} \tag{1.20}$$

où $\bar{\bar{\alpha}}$ représente le tenseur de polarisabilité électrique.

On doit distinguer deux types de polarisabilité électrique : la polarisabilité statique α_{ij}^{stat} qui détermine la déformation de la distribution de charges sous l'effet d'un champ électrique constant, et la polarisabilité dynamique $\alpha_{ij}(\omega_L)$, qui intervient pour décrire la réponse de l'atome ou de la molécule, au champ électrique oscillant d'une onde électromagnétique de pulsation ω_L. C'est donc l'expression de cette dernière que nous allons établir par la suite.

En général, la direction du moment dipolaire induit $\boldsymbol{d}$ ne coïncide pas avec celle du champ électrique $\boldsymbol{E}$. Néanmoins, pour des raisons de symétrie, elles sont les mêmes lorsque $\boldsymbol{E}$ est suivant un axe de symétrie du système [1] ([Herzberg, 1950] p83). Choisissant ces axes comme axes des coordonnées, nous avons alors :

$$d_x = \alpha_{xx}E_x, \quad d_y = \alpha_{yy}E_y, \quad d_z = \alpha_{zz}E_z \tag{1.21}$$

Le tenseur est finalement défini uniquement par α_{xx}, α_{yy}, et α_{zz}.

La polarisabilité d'un atome sera déterminée dans le cas habituel où le tenseur α_{ij} est isotrope ($\alpha_{xx} = \alpha_{yy} = \alpha_{zz}$). Cette hypothèse est assez bien vérifiée en considérant l'atome dans son état fondamental, avec une distribution électronique à symétrie sphérique (état de moment angulaire orbital s). On est amené à calculer une polarisabilité électrique de l'atome qui n'est plus un tenseur de rang deux mais une quantité scalaire α.
Deux approches seront abordées pour ce calcul : la première utilise le modèle simple de l'électron élastiquement lié à l'atome, dit modèle de Lorentz. La deuxième est un calcul semi-classique, et constitue une description plus complète de l'interaction de l'atome avec l'onde électromagnétique.

Dans le cas des molécules, on va se limiter uniquement au cas de dimères homonucléaires. En considérant le référentiel lié à la molécule, caractérisé par le système de coordonnées (x, y, z), on choisit l'axe z le long de l'axe internucléaire. Le tenseur de polarisabilité diagonal (voir Eq. (1.21)) ne possède plus que deux composantes indépendantes, α_{xx} et α_{zz}, puisque $\alpha_{xx} = \alpha_{yy}$.

[1] Dans le cas où le système ne possède pas d'axes de symétrie on peut se référer à ([Herzberg, 1950] p243).

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

On a parfois dans la littérature recours aux notations $\alpha_\perp \equiv \alpha_{xx} = \alpha_{yy}$ et $\alpha_{||} \equiv \alpha_{zz}$.
On discutera dans la suite la possibilité d'estimer la polarisabilité moyenne d'une molécule, pour en déduire les caractéristiques d'un piège dipolaire moléculaire.

1.5.1 Polarisabilité atomique

Calcul classique : Modèle de Lorentz

Pour calculer la polarisabilité α, on utilise le modèle simple d'un électron (masse m_e, charge q) élastiquement lié au cœur atomique, de pulsation propre ω_0. Cette vision correspond à l'étude d'un atome à deux niveaux reliés par une transition optique de pulsation ω_0.
L'équation classique du mouvement de l'électron s'écrit :

$$\ddot{d} + \Gamma_{\omega_L}\dot{d} + \omega_0^2 d = \frac{q^2}{m_e}E(t) \tag{1.22}$$

avec $d = qx$ et où $\Gamma_{\omega_L} = \frac{q^2\omega_L^2}{6\pi\epsilon_0 m_e c^3}$ est un taux d'amortissement qui traduit la perte d'énergie par le rayonnement de l'électron oscillant.

On exprime alors la polarisabilité en résolvant l'équation du mouvement forcé de l'électron (1.22). On trouve alors la polarisabilité complexe :

$$\alpha(\omega_L) = \frac{q^2/m_e}{\omega_0^2 - \omega_L^2 - i\omega_L\Gamma_{\omega_L}} \tag{1.23}$$

En introduisant le taux d'amortissement à résonance $\Gamma \equiv \Gamma_{\omega_0} = (\omega_0/\omega_L)^2\Gamma_{\omega_L}$, on obtient finalement :

$$\alpha(\omega_L) = 6\pi\epsilon_0 c^3 \frac{\Gamma/\omega_0^2}{\omega_0^2 - \omega_L^2 - i(\omega_L^3/\omega_0^2)\Gamma} \tag{1.24}$$

Le taux d'amortissement Γ correspond au taux de désexcitation spontanée du niveau excité de l'atome.

Cette expression classique de la polarisabilité (1.24) n'est valable qu'en absence de saturation de la transition, c'est-à-dire tant que le niveau excité n'est pas notablement peuplé. Cependant, pour réaliser un piège dipolaire, on se place largement hors résonance et, malgré les fortes intensités employées, la saturation reste suffisamment faible. On obtient ainsi des taux de diffusion très bas ($\Gamma_{diff} \ll \Gamma$), et l'expression (1.24) reste une bonne approximation.
On peut maintenant déduire de (1.14), (1.17), et (1.24) les expressions du potentiel dipolaire et du taux de diffusion :

$$U_{dip}(\boldsymbol{r}) = -\frac{3\pi c^2}{2\omega_0^3}\left(\frac{\Gamma}{\omega_0 - \omega_L} + \frac{\Gamma}{\omega_0 + \omega_L}\right) I(\boldsymbol{r}) \tag{1.25}$$

$$\Gamma_{diff}(\boldsymbol{r}) = \frac{3\pi c^2}{2\hbar\omega_0^3}\left(\frac{\omega_L}{\omega_0}\right)^3\left(\frac{\Gamma}{\omega_0 - \omega_L} + \frac{\Gamma}{\omega_0 + \omega_L}\right)^2 I(\boldsymbol{r}) \tag{1.26}$$

On remarque dans ces expressions un terme résonant $\Gamma/(\omega_0 - \omega_L)$ et un autre non-résonant $\Gamma/(\omega_0 + \omega_L)$. Ce dernier pourra être négligé selon la valeur du désaccord de l'onde par rapport aux transitions atomiques (voir Sec. 1.6).

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Pour déterminer une expression de la polarisabilité valable aussi à saturation, une approche semi-classique peut être considérée. Elle permet de prendre en compte une structure atomique plus complexe que les deux niveaux considérés précédemment, comme par exemple la structure fine atomique des niveaux excités.

Calcul semi-classique

Atome à plusieurs niveaux : Dans le cadre d'une approche semi-classique, on peut effectuer un calcul quantique de la polarisabilité par l'intermédiaire de la théorie des perturbations dépendant du temps ([Cohen-Tannoudji et al., 1996] p1310) en traitant le champ électrique classiquement.
On note $|g\rangle$ l'état fondamental couplé à n états excités notés $\{|e_1\rangle, ..., |e_k\rangle, ...|e_n\rangle\}$. Les différents états excités possèdent chacun une largeur naturelle Γ_{e_k}, décrivant l'émission spontanée du niveau $|e_k\rangle$ vers les autres états.
Par un calcul perturbatif, on montre que la polarisabilité peut s'écrire en fonction des éléments de matrice dipolaire entre les états excités et l'état fondamental :

$$\alpha(\omega_L) = \frac{2}{\hbar} \sum_{k=1}^{n} \frac{|\langle e_k| \boldsymbol{d}.\boldsymbol{\epsilon} |g\rangle|^2 \omega_{e_k}}{\omega_{e_k}^2 - \omega_L^2 - i\Gamma_{e_k}\omega_{e_k}} \tag{1.27}$$

$\boldsymbol{\epsilon}$ est le vecteur unitaire du champ électrique. La somme sur k fait intervenir tous les états excités $|e_k\rangle$ couplés à l'état fondamental par l'interaction dipolaire électrique. Cette formule suppose que $\Gamma_{e_k} \ll \omega_L, \omega_{e_k}$.

Les expressions du potentiel de piégeage et du taux de diffusion se déduisent directement de (1.14), (1.17) et (1.27), en considérant $(\omega_{e_k}^2 - \omega_L^2)^2 \gg \Gamma_{e_k}^2 \omega_{e_k}^2$:

$$U_{dip}(\boldsymbol{r}) = -\frac{I(\boldsymbol{r})}{2\hbar\epsilon_0 c} \sum_{k=1}^{n} \left(\frac{|\langle e_k| \boldsymbol{d}.\boldsymbol{\epsilon} |g\rangle|^2}{\omega_{e_k} - \omega_L} + \frac{|\langle e_k| \boldsymbol{d}.\boldsymbol{\epsilon} |g\rangle|^2}{\omega_{e_k} + \omega_L} \right) \tag{1.28}$$

$$\Gamma_{diff}(\boldsymbol{r}) = \frac{2I(\boldsymbol{r})}{\hbar^2\epsilon_0 c} \sum_{k=1}^{n} \frac{|\langle e_k| \boldsymbol{d}.\boldsymbol{\epsilon} |g\rangle|^2 \omega_{e_k} \Gamma_{e_k}^2}{(\omega_{e_k}^2 - {\omega_L}^2)^2 - i\Gamma_{e_k}\omega_{e_k}} \tag{1.29}$$

L'expression (1.29) du taux de diffusion n'est rigoureusement valable que dans le cas particulier où le niveau fondamental $|g\rangle$ n'est pas dégénéré. Dans le cas plus général où le niveau fondamental comporte plusieurs états $|g_i\rangle$ (niveaux hyperfins, états Zeeman d'un niveau hyperfin), son calcul est plus complexe puisque l'atome initialement dans l'état $|g_{i\ init}\rangle$ peut, après diffusion, retomber dans un état $|g_{i\ diff}\rangle$ différent. Ce calcul fait donc intervenir des produits d'éléments de matrice dipolaire du type $\langle g_{i\ diff}| \boldsymbol{d}.\boldsymbol{\epsilon}^*_{diff} |e_k\rangle\langle e_k| \boldsymbol{d}.\boldsymbol{\epsilon} |g_{i\ init}\rangle$, où $\boldsymbol{\epsilon}_{diff}$ représente le vecteur unitaire de polarisation de la lumière diffusée.
L'atome, donc, après avoir été excité de l'état $|g_{i\ init}\rangle$ vers un des états $|e_k\rangle$ (probabilité $\propto |\langle g_{i\ diff}| \boldsymbol{d}.\boldsymbol{\epsilon}_{diff} |e_k\rangle|^2$), retombe vers un état du fondamental $|g_{i\ diff}\rangle$ (probabilité $\propto |\langle e_k| \boldsymbol{d}.\boldsymbol{\epsilon} |g_{i\ init}\rangle|^2$) en émettant un photon de polarisation définie par $\boldsymbol{\epsilon}_{diff}$.
Si $|g_{i\ init}\rangle = |g_{i\ diff}\rangle$, on parle de diffusion Rayleigh ([Cohen-Tannoudji et al., 1988] p87). En revanche, si l'absorption d'un photon conduit à un changement d'état $|g_{i\ init}\rangle \neq |g_{i\ diff}\rangle$, il s'agit alors d'une diffusion Raman.
L'expression (1.29) représente donc le taux de diffusion Rayleigh. Pour une onde fortement désaccordée par rapport aux transitions atomiques, le taux de diffusion Rayleigh est très grand devant le taux de diffusion Raman. Ainsi, en général, l'expression (1.29) constitue une bonne approximation pour évaluer le taux de diffusion total.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Atome à deux niveaux : Dans la vision d'un atome à deux niveaux, nous ne considérons plus qu'une seule transition atomique de pulsation ω_0 reliant l'état fondamental $|g\rangle$ à un seul état excité $|e\rangle$. En remplaçant dans (1.28) et (1.29), Γ_e, par son expression en fonction de l'élément de matrice dipolaire reliant les deux états, soit $\Gamma_e = \frac{\omega_0^3}{3\pi\epsilon_0\hbar c^3}|\langle e|\, d\, |g\rangle|^2$ ([Fabre, 2000] p64), on retrouve, loin de la saturation, les expressions (1.25) et (1.26) obtenues dans le modèle classique.

1.5.2 Polarisabilité moléculaire

Les molécules diatomiques homonucléaires, pour des raisons de symétrie, ne possèdent pas de moment dipolaire électrique permanent et se polarisent, tout comme les atomes, en présence d'un champ électrique.
Le potentiel de piégeage des molécules fait donc intervenir leur polarisabilité dynamique [Makarov and Fedorov, 1976, Tulub and Balmakov, 1975]. Néanmoins cette polarisabilité n'est pas connue, et les seules données que l'on a sur la polarisabilité des dimères d'alcalins concernent la polarisabilité statique des molécules. Cette dernière reste cependant utile pour la détermination du potentiel de pièges dipolaires de type QUEST, traités dans la section 1.7.
La polarisabilité statique d'une molécule est un tenseur d'ordre deux α_{ij}^{stat} [Brieger, 1984, Tarnovsky et al., 1993, Molof et al., 1974] qui, contrairement au cas d'un atome, pour des raisons de symétrie, ne peut être réduit à une quantité scalaire. Elle dépend de l'état électronique de la molécule, comme du niveau de rotation-vibration considéré. On se limitera à l'exprimer pour une molécule dans son état fondamental électronique $|\psi_0^{el}\rangle$:

$$\alpha_{ij}^{stat}(R) = 2\sum_{n>0} \frac{\langle\psi_0^{el}|\, d_i\, |\psi_n^{el}\rangle\langle\psi_n^{el}|\, d_j\, |\psi_0^{el}\rangle}{E_n - E_0} \tag{1.30}$$

où d_i est la composante de l'opérateur moment dipolaire électrique. Les fonctions d'ondes électroniques ψ_n^{el} sont évaluées pour une distance internucléaire fixée R, de sorte que le tenseur α_{ij} dépend de R.

Le tenseur de polarisabilité moléculaire, comme on l'a déjà vu, ne possède plus que deux composantes indépendantes, $\alpha_{||}$ et $\alpha_\perp$. On définit communément une valeur moyenne de la polarisabilité :

$$\overline{\alpha}^{stat}(R) = \frac{(\alpha_{||} + 2\alpha_\perp)}{3} \tag{1.31}$$

La polarisabilité moyenne statique d'un niveau de rotation-vibration, caractérisé par le couple (v, J), est donnée par :

$$\overline{\alpha}^{stat}(v, J) = \langle\psi_{v,J}(R)|\, \overline{\alpha}^{stat}(R)\, |\psi_{v,J}(R)\rangle \tag{1.32}$$

Les différentes mesures de polarisabilité [Miller and Bederson, 1988, Molof et al., 1974, Tarnovsky et al., 1993] ont été effectuées dans des jets moléculaires d'une température typique T de quelques centaines de Kelvins. La quantité mesurée est donc une moyenne, suivant une distribution de Boltzmann, sur les niveaux de rotation-vibration :

$$\overline{\alpha}^{stat}(T) = \sum_{v,J} \frac{(2J+1)\quad \overline{\alpha}^{stat}(v,J)\quad e^{\frac{-E_{v,J}}{k_B T}}}{(2J+1)\quad e^{\frac{-E_{v,J}}{k_B T}}} \tag{1.33}$$

où $E_{v,J}$ est l'énergie du niveau de rotation-vibration (v, J).

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

[Müller and Meyer, 1986] ont représenté (voir Fig. 1.5) les courbes théoriques des polarisabilités $\alpha_\perp$ et $\alpha_{||}$ en fonction de la distance internucléaire, pour les dimères Li_2, Na_2 et K_2 qui sont en bon accord avec les mesures réalisées par [Tarnovsky et al., 1993] sur ces mêmes dimères, complétées par une mesure pour Cs_2. On peut remarquer sur la Fig. 1.5 , pour des distances internucléaires intermédiaires (5-15 a_0), que la polarisabilité parallèle $\alpha_{||}$ devient bien plus grande que la polarisabilté perpendiculaire $\alpha_\perp$. Une telle anisotropie est vraiment intéressante dans la perspective d'obtenir un échantillon de molécules alignées dans la même direction, suivant leur axe internucléaire [Friedrich and Herschbach, 1995, Sakai et al., 1999, Stapelfeldt and Seideman, 2003]. L'interaction de ces molécules avec de forts champs électriques donne naissance à ce que l'on appelle des états pendulaires [Rost et al., 1992], superpositions linéaires d'états rotationnels $|J, M\rangle$, non perturbés par le champ, dont la valeur de la projection M du moment cinétique angulaire total J sur l'axe du champ reste fixe. L'axe moléculaire se met alors à se "balancer" autour du champ électrique.
La manipulation moléculaire des degrés de liberté externes, l'alignement des molécules (axe moléculaire parallèle au champ électrique du laser) ou même leur orientation (axe moléculaire suivant une direction arbitraire), promet de nombreuses applications. Un des enjeux réside dans le domaine de la chimie, puisque cela permettrait une augmentation importante des sections efficaces des réactions chimiques.

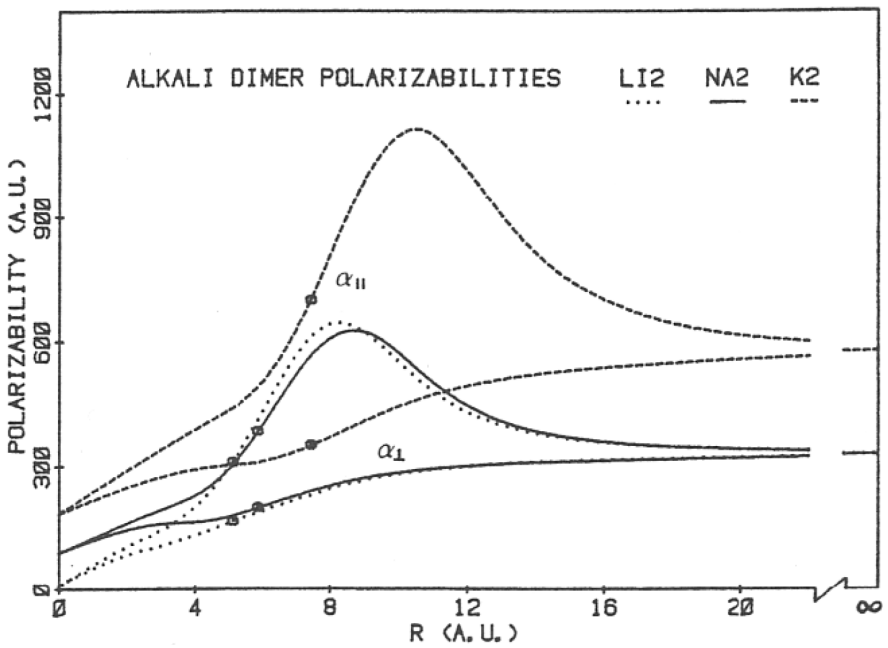

FIG. 1.5 – Composantes $\alpha_{||}$ et $\alpha_\perp$ de la polarisabilité statique des alcalins Li_2, Na_2, et K_2 calculées par [Müller and Meyer, 1986]

On peut remarquer sur la Fig. 1.5, lorsque les deux atomes sont de plus en plus éloignés, que les composantes de la polarisabilité, $\alpha_{||}$ et $\alpha_\perp$, tendent vers une valeur commune qui n'est autre que la polarisabilité atomique. Une approximation, qui s'avère judicieuse dans le cas où les deux noyaux se situent en moyenne à grande distance l'un de l'autre, consiste donc à considérer la polarisabilité du dimère comme la somme de celles des deux atomes non liés.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

1.6 Piège FORT (Far Off Resonance Trap)

Ce type de piège dipolaire a la particularité d'être réalisé avec une onde lumineuse de pulsation ω_L telle que :

$$|\delta| = |\omega_L - \omega_0| \ll \omega_0 \tag{1.34}$$

où ω_0 représente la pulsation associée à la transition entre l'état fondamental et l'état excité de la particule.

On peut alors appliquer l'approximation du champ tournant $\Gamma/(\omega_0 + \omega_L) \ll \Gamma/(\omega_0 - \omega_L)$ dans les expressions (1.25) et (1.26) et poser $\omega_L/\omega_0 \approx 1$. On obtient alors pour un système à 2 niveaux :

$$U_{dip}^{FORT}(\boldsymbol{r}) = \frac{3\pi c^2}{2\omega_0^3}\frac{\Gamma}{\delta}\, I(\boldsymbol{r}) \qquad = \frac{\hbar\Gamma}{2}\frac{I(\boldsymbol{r})/I_{sat}}{4\delta/\Gamma} = \frac{\hbar\Omega_1^2(\boldsymbol{r})}{4\delta} \tag{1.35}$$

$$\Gamma_{diff}^{FORT}(\boldsymbol{r}) = \frac{3\pi c^2}{2\hbar\omega_0^3}\left(\frac{\Gamma}{\delta}\right)^2 I(\boldsymbol{r}) \;= \frac{\Gamma}{2}\frac{I(\boldsymbol{r})/I_{sat}}{4\delta^2/\Gamma^2} \;= \frac{\Gamma\Omega_1^2(\boldsymbol{r})}{4\delta^2} \tag{1.36}$$

On a introduit l'intensité de saturation $I_{sat} = \hbar\Gamma\omega_0^3/12\pi c^2$ et la fréquence de Rabi $\Omega_1(\boldsymbol{r}) = \sqrt{\Gamma^2 I(\boldsymbol{r})/2I_{sat}}$.

On voit immédiatement qu'il existe une relation simple entre le taux de diffusion et le potentiel dipolaire :

$$\hbar\Gamma_{diff}^{FORT}(\boldsymbol{r}) = \frac{\Gamma}{\delta}\, U_{dip}^{FORT}(\boldsymbol{r}) \tag{1.37}$$

Les expressions (1.35),(1.36) et (1.37) mettent en évidence deux points essentiels pour réaliser un FORT :

- *Le signe du désaccord :* Pour une onde lumineuse désaccordée vers le rouge de la transition ($\delta < 0$), les particules sont attirées vers les régions de forte intensité, et inversement, pour un désaccord vers le bleu de la transition ($\delta > 0$), elles sont attirées vers les minima d'intensité.

- *Intensité/désaccord :* Le potentiel dipolaire (Eq. (1.35)) varie en I/δ, alors que le taux de diffusion (Eq. (1.36)) varie en I/δ^2. On comprend immédiatement (Eq. (1.37)) que les pièges dipolaires FORT sont réalisés avec de grands désaccords et de fortes intensités, afin de maintenir un taux de diffusion le plus bas possible, en conservant un potentiel assez profond.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

1.7 Piège QUEST(QUasi-ElectroStatic Trap)

Le QUEST est un type de piège dipolaire dans lequel on peut faire l'approximation quasi-statique $\omega_L \ll \omega_0$.
Dans ce cas, un faisceau laser focalisé (cf section 1.2) peut être vu localement comme une charge créant un maximum de champ électrostatique. Ce champ électrostatique induit donc, par effet Stark, un déplacement lumineux faisant intervenir la polarisabilité statique de la particule $\alpha^{stat} = \alpha(\omega_L = 0)$:

$$U_{dip}^{QUEST}(\boldsymbol{r}) = -\alpha^{stat}\frac{I(\boldsymbol{r})}{2\epsilon_0 c} \tag{1.38}$$

On peut aussi revenir aux expressions (1.25) et (1.26), et leur appliquer l'approximation quasi-statique, en notant que l'approximation de champ tournant, contrairement au FORT, ne peut pas être utilisée pour un QUEST :

$$U_{dip}^{QUEST}(\boldsymbol{r}) = -\frac{3\pi c^2}{\omega_0^3}\frac{\Gamma}{\omega_0}\, I(\boldsymbol{r}) \tag{1.39}$$

$$\hbar\Gamma_{diff}^{QUEST}(\boldsymbol{r}) = \frac{6\pi c^2}{\omega_0^3}\left(\frac{\omega_L}{\omega_0}\right)^3\left(\frac{\Gamma}{\omega_0}\right)^2 I(\boldsymbol{r}) \tag{1.40}$$

$$= 2\left(\frac{\omega_L}{\omega_0}\right)^3\frac{\Gamma}{\omega_0}\quad U_{dip}^{QUEST}(\boldsymbol{r}) \tag{1.41}$$

A l'inverse du FORT, le potentiel créé par un QUEST est indépendant du désaccord δ, et comme généralement la polarisabilité est positive, il est toujours attractif. Il permet le piégeage d'atomes dans n'importe quel état interne, et rend possible le piégeage simultané d'atomes de différentes espèces, de molécules et même d'ions.
Une importante caractéristique d'un QUEST est l'absence quasi totale de photons diffusés. Les taux de diffusion obtenus sont en effet typiquement inférieurs à 10^{-3} s^{-1}, ce qui rend le QUEST idéal à la réalisation de pièges purement conservatifs. On peut calculer le taux de diffusion total [Takekoshi et al., 1995, Hoang, 2003] et montrer qu'il est presque entièrement dû à la diffusion Rayleigh.
Les taux de chauffage associés à ces taux de diffusion sont typiquement de l'ordre du nK/s et restent inférieurs aux taux de chauffage induits par les fluctuations en puissance du laser [Savard et al., 1997].

Si l'on considère un piège FORT désaccordé d'une quantité δ, la profondeur du potentiel obtenu avec un champ lumineux de même intensité dans un QUEST, est $2\delta/\omega_0$ plus petite. Des lasers de fortes puissances, émettant dans l'infrarouge lointain, doivent être donc utilisés pour créer des pièges QUEST suffisamment profonds. Le laser CO_2 ($\lambda_L \approx 10,6\mu m$), qui peut atteindre en régime continu des puissances de quelques dizaines de kilowatts, convient parfaitement à la réalisation d'un QUEST [Takekoshi et al., 1995, Takekoshi and Knize, 1996, Engler et al., 2000, Engler, 2000, Mudrich, 2003].

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

1.8 Cas du piégeage d'atomes froids de césium

1.8.1 L'atome de césium

Pour obtenir le détail des propriétés de l'atome de césium, on peut se référer à la revue de Daniel Steck [Steck, 2004].

L'atome de césium est l'élément alcalin le plus lourd, avec une masse $M = 2,207 \times 10^{-25}$ kg. Il ne possède qu'un seul isotope stable, le $^{133}_{55}$Cs. Cet atome bosonique contient donc 55 électrons, dont un électron de valence situé sur l'orbital $6s$. La structure électronique des premiers niveaux d'énergie du césium est reproduite sur la Fig. 1.6. On y a représenté, à gauche, la structure fine, produite par l'interaction spin-orbite. Les deux transitions optiques les plus intenses du césium relient l'état fondamental $6^2s_{1/2}$ aux premiers niveaux excités $6^2p_{1/2}$ (raie D1) et $6^2p_{3/2}$ (raie D2).
L'interaction du spin nucléaire $\boldsymbol{i}$ avec le moment cinétique total électronique $\boldsymbol{j}$ engendre la structure hyperfine ($\boldsymbol{f} = \boldsymbol{i} + \boldsymbol{j}$). Le niveau fondamental est ainsi scindé en deux niveaux $f = 3$ et $f = 4$, reliés par une transition micro-onde utilisée dans les horloges atomiques pour définir l'unité de temps.
Sur la partie droite de la figure, on a représenté, pour des champs magnétiques faibles, l'effet Zeeman linéaire responsable de la levée de dégénérescence de la structure hyperfine.
Les écarts en énergie de la structure fine Δ_{SF}^{6p}, hyperfine du fondamental $\Delta_{SHF}^{6^2s_{1/2}}$, et hyperfine des niveaux excités $\Delta_{SHF}^{6^2p_j}$, obéissent à la relation

$$\Delta_{SF}^{6p} \gg \Delta_{SHF}^{6^2s_{1/2}} \gg \Delta_{SHF}^{6^2p_j}$$

et représentent les trois échelles d'énergie atomique pertinentes.

Les tableaux ci-dessous rappellent quelques caractéristiques de l'atome de césium :

Masse atomique	Spin nucléaire	Temp. de recul	Temp. Doppler	Polarisabilité statique $6^2s_{1/2}$
$2,20694650 \times 10^{-25}$ kg	7/2	~ 190 nK	125 μK	$6,63 \times 10^{-39}$ C m^2/V

Fréquences		Largeurs naturelles	
ω_{D_1}	ω_{D_2}	Γ_{D_1}	Γ_{D_2}
$2\pi \times 335,116048807$ THz	$2\pi \times 351,725718$ THz	$2\pi \times 4,6$ MHz	$2\pi \times 5,2$ MHz

Δ_{SF}^{6p}	$\Delta_{SHF}^{6^2s_{1/2}}$	$\Delta_{SHF}^{6^2p_{1/2}}$	$\Delta_{SHF}^{6^2p_{3/2}}$
$2\pi \times 16,6$ THz	$2\pi \times 9192$ MHz	$2\pi \times 1168$ MHz	$2\pi \times 604$ MHz

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

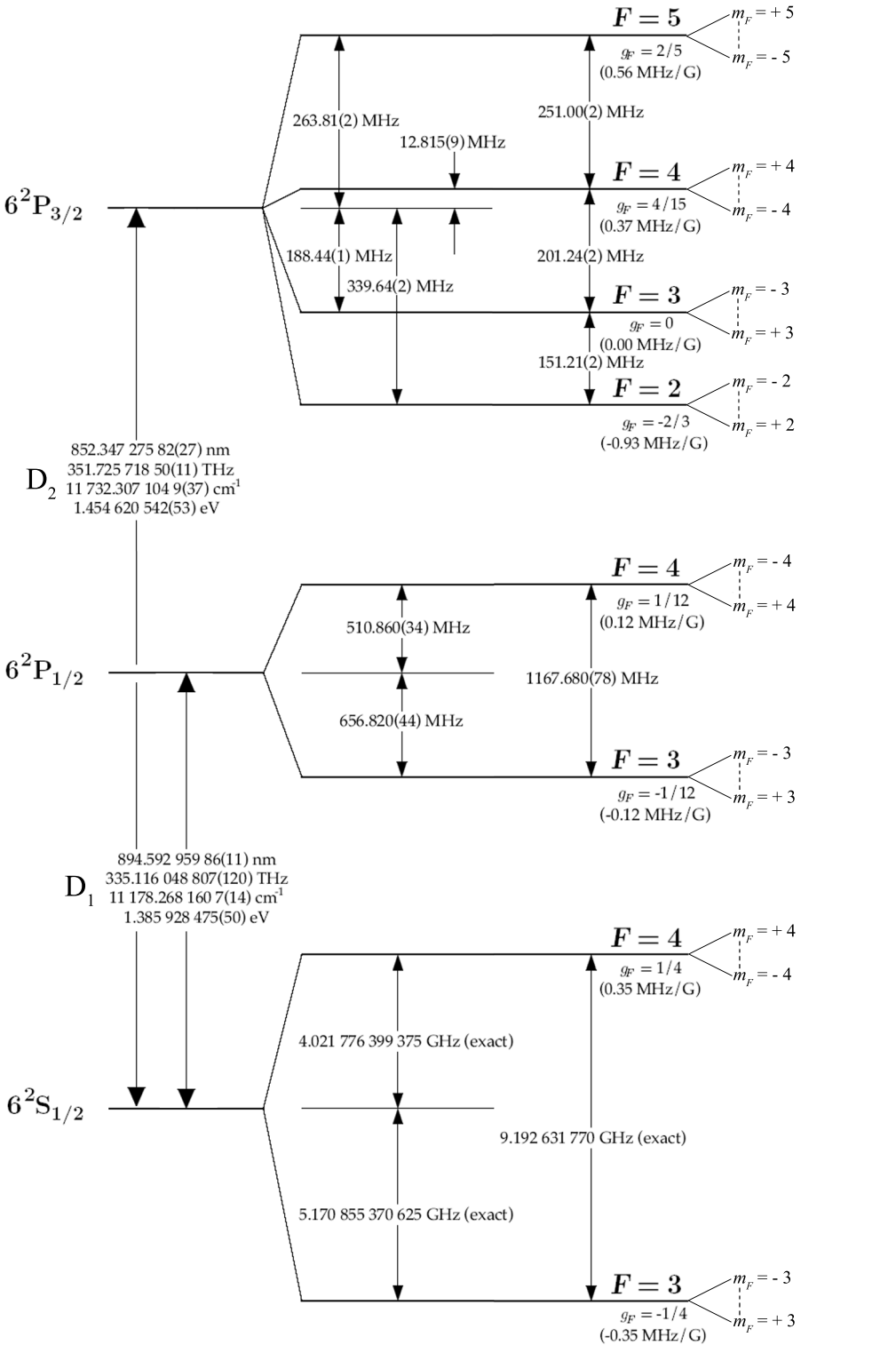

FIG. 1.6 – Diagramme des premiers niveaux d'énergie de l'atome de césium.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

1.8.2 Piégeage avec un laser Nd:YAG

Nous allons établir les expressions du potentiel dipolaire et du taux de diffusion d'un piège atomique de césium créé par un laser Nd:YAG ($\lambda_L = 1064$ nm).
Un calcul complet et général de ces grandeurs doit tenir compte de la structure à plusieurs niveaux de l'atome (voir Sec. 1.5.1).
Les désaccords du laser Nd :YAG par rapport aux raies D_1 ($\delta_1 = -2\pi \times 54$ THz) et D_2 ($\delta_2 = -2\pi \times 69$ THz) sont très grands devant les écarts en énergie de la structure hyperfine des états $6^2s_{1/2}$, $6^2p_{1/2}$ et $6^2p_{3/2}$. Par conséquent, l'effet du laser peut être calculé sans tenir compte de la structure hyperfine. Les décalages mis en jeu ne sont cependant pas suffisants pour que l'on puisse s'affranchir de la structure fine de l'état excité $6p$.
L'interaction avec le laser Nd :YAG fait donc intervenir uniquement les transitions associées aux raies D_1 et D_2, $(j = \frac{1}{2}) \rightarrow (j' = \frac{1}{2}, \frac{3}{2})$. On peut alors calculer les déplacements lumineux des deux sous-niveaux ($m_j = \pm\frac{1}{2}$) de l'état fondamental, en tenant compte de la polarisation q du laser. On peut se référer à ([Hoang, 2003] p192) pour un traitement détaillé du calcul.

Potentiel dipolaire

En partant de l'expression (1.28), et après le calcul des deux éléments de matrice dipolaire $\langle (6p)j', m'_j \,|\boldsymbol{d}.\boldsymbol{\epsilon}\,|(6s)j = 1/2, m_j\rangle$ (pour $j' = 1/2$ et $j' = 3/2$) en utilisant le théorème de Wigner-Eckart, on en déduit l'expression très générale du potentiel dipolaire en fonction de la polarisation q du laser :

$$U_{dip}(\boldsymbol{r}) = -\frac{\pi c^2 \Gamma_{D_2}}{2\omega_{D_2}^3} I(\boldsymbol{r}) \left[(2 + q g_f m_f) \left(\frac{1}{\omega_{2,f} - \omega_L} + \frac{1}{\omega_{2,f} + \omega_L} \right) + (1 - q g_f m_f) \left(\frac{1}{\omega_{1,f} - \omega_L} + \frac{1}{\omega_{1,f} + \omega_L} \right) \right] \tag{1.42}$$

$q = 0$ correspond à une polarisation π ou σ linéaire (laser polarisé linéairement se propageant suivant l'axe de quantification) et $q = \pm 1$ correspond à une polarisation $\sigma^{\pm}$. $\omega_{1,f}$ et $\omega_{2,f}$ sont les pulsations associées aux transitions entre le niveau fondamental hyperfin f de $6^2s_{1/2}$ et les niveaux excités $6^2p_{1/2}$ et $6^2p_{3/2}$ respectivement. g_f est le facteur de Landé du niveau hyperfin f, et m_f est le sous-niveau Zeeman dans lequel se trouve l'atome. Cette expression est valable, comme on l'a expliqué auparavant, pour toute onde lumineuse vérifiant la condition : $|\delta_1|, |\delta_2| \gg \Delta_{SHF}^{6^2s_{1/2}}, \Delta_{SHF}^{6^2p_j}$.

On voit clairement que le potentiel dipolaire dépend de la polarisation du laser (voir Fig. 1.7) et, dans le cas d'une polarisation $\sigma^{\pm}$, qu'il est différent suivant le sous-niveau Zeeman m_f peuplé.

Piège de type FORT : Le laser Nd:YAG constitue un FORT pour des atomes de césium dans leur état fondamental, puiqu'il vérifie la relation (1.34) avec $|\omega_L - \omega_{D_1}| \simeq 0.16\ \omega_{D_1}$ et $|\omega_L - \omega_{D_2}| \simeq 0.2\ \omega_{D_2}$. Dans ce cas, on peut faire l'approximation de l'onde tournante et

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

négliger les termes non résonants de l'expression (1.42) :

$$U_{dip}(\boldsymbol{r}) = -\frac{\pi c^2 \Gamma_{D_2}}{2\omega_{D_2}^3} I(\boldsymbol{r}) \left(\frac{2 + q g_f m_f}{\omega_{2,f} - \omega_L} + \frac{1 - q g_f m_f}{\omega_{1,f} - \omega_L} \right) \tag{1.43}$$

On peut comparer au moyen de cette formule les contributions au potentiel dipolaire des raies D_1 et D_2, en fonction de la polarisation du laser. On a représenté sur la Fig. 1.7 l'énergie potentielle d'un atome dans le niveau fondamental $|f = 3, m_f = +3\rangle$ pour les trois polarisations possibles du laser, calculée à partir de l'Eq.(1.43) pour une puissance de 15 W et un waist du faisceau de 220 μm. Il est intéressant de remarquer que la profondeur du potentiel change avec la polarisation du laser ; nous avons pu voir cet effet expérimentalement ([Hoang, 2003] p 125).

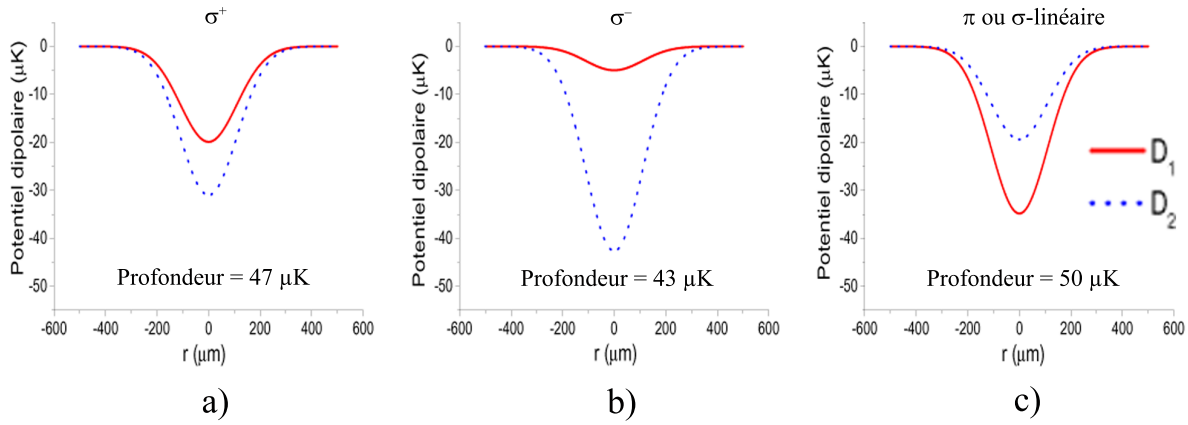

FIG. 1.7 – Contribution des raies D_1 et D_2 au potentiel dipolaire (Eq. (1.43)) d'atomes dans l'état $|f = 3, m_f = +3\rangle$, pour une polarisation du laser YAG (P = 15 W w = 220 μm) : a) σ^+ b) σ^- c) π ou σ-linéaire. On peut remarquer sur la figure que la profondeur du potentiel varie en fonction de la polarisation.

Taux de diffusion

Pour calculer le taux de diffusion d'un laser Nd:YAG sur des atomes de césium, on part cette fois de l'expression générale (1.29). On doit alors calculer les mêmes éléments de matrice dipolaire que ceux intervenant pour établir l'expression du potentiel. On obtient finalement, en ne gardant que les termes résonants (approximation du champ tournant) :

$$\Gamma_{diff}(\boldsymbol{r}) = \frac{\pi c^2 \Gamma_{D_2}}{2\hbar\omega_{D_2}^3} I(\boldsymbol{r}) \left(\frac{2 + q g_f m_f}{(\omega_{2,f} - \omega_L)^2} + \frac{1 - q g_f m_f}{(\omega_{1,f} - \omega_L)^2} \right) \tag{1.44}$$

Le taux de diffusion total Γ_{diff} résulte, comme on l'a déjà évoqué, de la contribution de deux phénomènes de diffusion, la diffusion Rayleigh et la diffusion Raman :

$$\Gamma_{diff} = \Gamma_{Ray} + \Gamma_{Ram} \tag{1.45}$$

La diffusion Rayleigh est une diffusion élastisque au cours de laquelle le photon diffusé a la même fréquence que le photon incident. Par conséquent, à l'issue de ce processus, l'atome retombe sur son état initial. Au contraire, la diffusion Raman est une diffusion inélastique, au cours de laquelle le photon diffusé n'a pas la même fréquence que le photon incident.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Finalement, à l'issue de ce processus, l'atome se retrouve dans un état différent de l'état initial.
La diffusion Raman peut être réellement ennuyeuse lorsque l'on effectue des expériences de piégeage d'atomes polarisés, puisqu'au bout du temps Γ_{Ram}^{-1}, 63 % de l'échantillon auront été dépolarisés. L'évaluation de ce taux de diffusion est alors nécéssaire pour déterminer la faisabilité de ce genre d'expérience.
On peut trouver le calcul de ces taux de diffusion dans la référence ([Hoang, 2003] p123). Ces calculs ont été effectués en considérant une puissance du laser Nd:YAG de 15 W et un waist de 220 μm. La durée de vie Raman (Γ_{Ram}^{-1}), pour des atomes initialement dans l'état $|6s, f = 3, m_f = +3\rangle$, est estimée supérieure à 100 s, et ce pour n'importe quelle polarisation du laser.

Taux de chauffage

La probabilité de diffuser un photon issu du faisceau Nd:YAG n'étant pas nulle, un processus de chauffage de l'échantillon a lieu. Dans notre cas d'un laser fortement hors résonance, l'énergie du photon diffusé est déterminée par la fréquence du laser et non par la fréquence de la transition optique. Le chauffage induit a deux origines, liées toutes deux à l'effet de recul d'un atome lors des processus d'absorption et d'émission spontanée. Le processus d'absorption entraîne un chauffage dans la direction de propagation du faisceau, correspondant à l'énergie de recul $E_{rec} = k_B T_{rec}/2$ où $T_{rec} = \hbar^2 k_{YAG}^2 / M k_B$.
La deuxième contribution, qui vient de l'émission spontanée d'un photon se faisant dans des directions aléatoires, induit un chauffage correspondant à E_{rec} mais cette fois réparti dans les trois directions de l'espace.
L'effet global, après un processus de diffusion, est un chauffage correspondant à $4E_{rec}/3$ suivant la direction de propagation du faisceau et à $E_{rec}/3$ dans chacune des deux directions transverses. Le chauffage total de l'échantillon correspond donc à une augmentation de l'énergie thermique d'une quantité $2E_{rec}$ pendant un temps typique Γ_{diff}^{-1} (pour des questions de simplicité, nous ne considérons plus le caractère anisotropique du chauffage).
Le taux de chauffage global dû au processus de diffusion est donc :

$$\frac{d\bar{E}}{dt} = 2E_{rec}\Gamma_{diff} = k_B T_{rec}\Gamma_{diff} \tag{1.46}$$

où $\bar{E}$ représente l'énergie thermique moyenne d'un atome.

A l'équilibre thermodynamique et pour un piège harmonique à 3 dimensions, l'énergie cinétique moyenne d'un atome $\bar{E}_{cin}$ est égale à son énergie potentielle moyenne $\bar{E}_{pot}$, avec : $\bar{E}_{cin} = 3k_B T/2 = \bar{E}_{pot}$ où T est la température de l'échantillon atomique. L'énergie totale moyenne par atome $\bar{E}$ est finalement égale à $\bar{E} = \bar{E}_{cin} + \bar{E}_{pot} = 3k_B T$.

On peut alors réécrire l'expression (1.46) sous la forme :

$$\frac{dT}{dt} = \frac{T_{rec}\Gamma_{diff}}{3} \tag{1.47}$$

Dans le cas du laser Nd:YAG ($\lambda = 1064$ nm), $T_{rec} = 126$ nK, et la relation (1.47) s'écrit :

$$\frac{dT^{YAG}}{dt} = 42\,[\text{nK}] \times \Gamma_{diff} \tag{1.48}$$

Dans nos expériences ($P \approx 15$ W, waist ≈ 220 μm), le taux de chauffage correspondant au taux de diffusion $\Gamma_{diff} \approx 0{,}5$ s^{-1} vaut d'après (1.48) ≈ 21 nK/s.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Récapitulatif des paramètres du piège dipolaire

On peut récapituler ici l'expression numérique des paramètres importants d'un piège dipolaire d'atomes de césium réalisé à l'aide d'un laser Nd:YAG. La profondeur dans le plan horizontal U_0^{hor} (la profondeur suivant l'axe vertical est diminuée par la gravité (voir Sec. 1.2)), le taux de diffusion au centre du piège Γ_{max} et les fréquences radiale ν_r et longitudinale ν_z s'écrivent, dans des unités courantes :

$$U_0^{hor}[\mu K] \simeq \frac{1,5 \times 10^5 P[W]}{w_0^2[\mu m^2]} \tag{1.49}$$

$$\Gamma_{max}[s^{-1}] \simeq \frac{1,7 \times 10^3 P[W]}{w_0^2[\mu m^2]} \tag{1.50}$$

$$\nu_r[Hz] \simeq \frac{9,7 \times 10^5 \sqrt{P[W]}}{w_0^2[\mu m^2]} \tag{1.51}$$

$$\nu_z[Hz] \simeq \frac{2,3 \times 10^5 \sqrt{P[W]}}{w_0^3[\mu m^3]} \tag{1.52}$$

Pour $P \approx 15$ W et un waist ≈ 220 μm, nous trouvons les paramètres de piégeage : $U_0^{hor} \approx 46$ μK, $\Gamma_{max} \approx 0,5$ s^{-1}, $\nu_r \approx 78$ Hz, et $\nu_z \approx 0,1$ Hz.

1.8.3 Piégeage avec un laser CO_2

Le laser CO_2 est un exemple parfait de piège de type QUEST pour l'atome de césium [Takekoshi and Knize, 1996] puisque l'on peut faire l'approximation quasi-statique : $\omega_L \simeq 0.08 \times \omega_{6s \to 6p} \ll \omega_{6s \to 6p}$.
La profondeur du potentiel dipolaire dans le plan horizontal peut alors se déduire aisément de l'expression (1.38), la polarisabilité statique de l'atome de césium dans son état fondamental valant $\alpha_{Cs}^{stat} = 6,63 \times 10^{-39}$ C m^2/V :

$$U_0^{hor}[\mu K] \simeq \frac{5,76 \times 10^4 P[W]}{w_0^2[\mu m^2]} \tag{1.53}$$

L'expression des fréquences d'oscillation radiale ν_r et longitudinale ν_z du piège s'écrivent :

$$\nu_r[Hz] \simeq \frac{6,04 \times 10^5 \sqrt{P[W]}}{w_0^2[\mu m^2]} \tag{1.54}$$

$$\nu_z[Hz] \simeq \frac{1,44 \times 10^6 \sqrt{P[W]}}{w_0^3[\mu m^3]} \tag{1.55}$$

Pour $P \approx 100$ W et un waist ≈ 80 μm, nous trouvons les paramètres de piégeage : $U_0^{hor} \approx 900$ μK, $\nu_r \approx 940$ Hz, et $\nu_z \approx 28$ Hz.
Le taux de diffusion est quant à lui typiquement de l'ordre de 10^{-3} s^{-1} (voir Sec. 1.7), et permet donc un piégeage qu'on peut considérer comme conservatif.

1.8.4 Conclusion

L'utilisation de lasers Nd:YAG ou CO_2 est donc une bonne méthode pour entreprendre le confinement d'atomes de césium. Il existe quelques différences entre ces deux types de piégeage qui peuvent nous conduire à choisir l'un plutôt que l'autre :

Le premier point que l'on peut rappeler est l'absence presque totale de photons diffusés avec un laser CO_2. L'emploi d'un laser Nd:YAG peut, dans certaines conditions d'utilisation (forte puissance et faisceau très focalisé), engendrer un taux de diffusion assez important, limitant la durée de vie de l'échantillon atomique.
Le deuxième point, défavorisant le piégeage QUEST, est le manque de commodité dans l'utilisation du laser CO_2. En effet, l'émission lumineuse se fait dans l'infrarouge lointain, ce qui complique la visualisation du trajet du laser et ne permet pas l'utilisation de simples fenêtres en verre ou quartz qui absorberaient complètement le faisceau laser. On doit donc installer des fenêtres spéciales en ZnSe (Séléniure de Zinc) pour permettre le passage du CO_2. Le grand désaccord du laser par rapport aux transitions atomiques implique l'utilisation de lasers CO_2 de forte puissance (voir Sec. 1.7), typiquement d'une centaine de watts, pour créer des potentiels de piégeage assez profond. Il peut alors s'avérer nécessaire de refroidir les hublots pour éviter le chauffage de l'enceinte qui induirait des dégazages pouvant perturber le nuage atomique piégé. Bien sûr, avec de telles puissances mises en jeu, il convient d'être encore plus prudent, et d'imposer des mesures de sécurité particulières autour de l'expérience.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

1.9 Cas du piégeage de molécules froides de césium

La première démonstration du piégeage dipolaire de molécules froides a été effectuée dans l'équipe de Knize [Takekoshi et al., 1998], en confinant une dizaine de molécules Cs_2 dans un laser CO_2 focalisé. Ces molécules correspondent à celles présentes dans le piège magnéto-optique de césium, dont la formation résulte soit de processus de photoassociation dûs aux lasers de refroidissement soit à des collisions à trois corps.
La réaction de photoassociation consiste à exciter une paire d'atomes en collision vers un potentiel moléculaire excité. Après désexcitation spontanée de cette molécule, deux cas peuvent se produire : soit la molécule se dissocie en deux atomes chauds (cas le plus probable), soit elle se désexcite vers un des deux potentiels électroniques fondamentaux ; ce dernier cas correspond à la formation de molécules froides. Le principe de formation de molécules froides est décrit en détail dans le chapitre 3 de cette thèse.
Nous discuterons, dans un premier temps, la possibilité de piéger des molécules froides de césium en utilisant un laser Nd :YAG, puis nous étudierons les caractéristiques d'un piège moléculaire créé par un laser CO_2.
On peut trouver une description détaillée de la molécule Cs_2 dans les thèses [Comparat, 1999, Drag, 2000, T'Jampens, 2002].

1.9.1 Piégeage avec un laser Nd:YAG

L'étude du piégeage dipolaire de molécules de césium s'avère plus délicate à entreprendre que celle effectuée pour les atomes. En effet, les molécules possèdent un nombre important de niveaux qui compliquent la description du confinement.
Les molécules de césium que l'on veut piéger sont dans les niveaux de rotation-vibration appartenant aux états électroniques fondamentaux singulet $X^1\Sigma_g^+$ ou triplet $a^3\Sigma_u^+$. On a représenté sur la Fig. 1.8 les potentiels électroniques moléculaires corrélés aux limites asymptotiques $6s + 6p_{1/2}$ et $6s + 6p_{3/2}$, avec comme origine des énergies, la limite asymptotique associée aux potentiels des états électroniques fondamentaux $6s + 6s$. Le laser Nd:YAG, avec lequel on veut réaliser le confinement dipolaire des molécules, émet des photons d'énergie 9400 cm^{-1}, ce qui rend accessible, par transition dipolaire électrique, plusieurs potentiels excités corrélés à la limite $6s + 6p$ (voir Fig. 1.8).
On voit donc que ni l'état singulet, ni l'état triplet ne sont à l'abri de telles transitions, qui, selon leur importance, peuvent être à l'origine de taux de diffusion conséquents, et donc rendre la réalisation d'un piège moléculaire fortement compromis.

Le piégeage dipolaire de molécules froides de césium a déjà été tenté dans notre laboratoire ([Drag, 2000] p324). L'expérience consistait à charger les atomes d'un piège magnéto-optique vers un piège dipolaire réalisé à l'aide d'un faisceau laser Nd :YAG. Ces atomes sont ensuite photoassociés pour former, après désexcitation spontanée des molécules excitées ainsi obtenues, un échantillon de molécules froides dans l'état fondamental triplet $a^3\Sigma_u^+$. L'étude a montré que ces molécules n'étaient pas piégeables dans un laser Nd:YAG ; elles sont excitées par les photons du laser vers le potentiel $^1\Sigma_g$ et peuvent soit se désexciter en deux atomes chauds, soit éventuellement être soumises à une force dipolaire répulsive qui les chasserait de la zone de piégeage en raison du désaccord du laser vers le bleu par rapport à certaines transitions moléculaires.
Le processus est sans doute complexe, mais le résultat est une impossibilité de piéger les molécules froides obtenues. Nous verrons dans la suite que les molécules formées sont généralement dans des niveaux de rotation-vibration proches de la limite de dissociation

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

$6s + 6s$. Elles sont de ce fait très sensibles au rayonnement infrarouge, ce qui limite aussi l'accumulation de molécules dans les pièges.

Une difficulté supplémentaire vient s'ajouter si l'on veut caractériser ce genre de piège, puisque le calcul du potentiel dipolaire fait intervenir la polarisabilité dynamique $\alpha(\omega_{YAG})$ des molécules qui, à ce jour, n'est pas connue. Les seules données que l'on peut trouver concernent la polarisabilité statique des dimères d'alcalins (voir Sec. 1.5.2), suffisante pour déterminer les caractéristiques d'un piège dipolaire formé grâce à un laser CO_2.

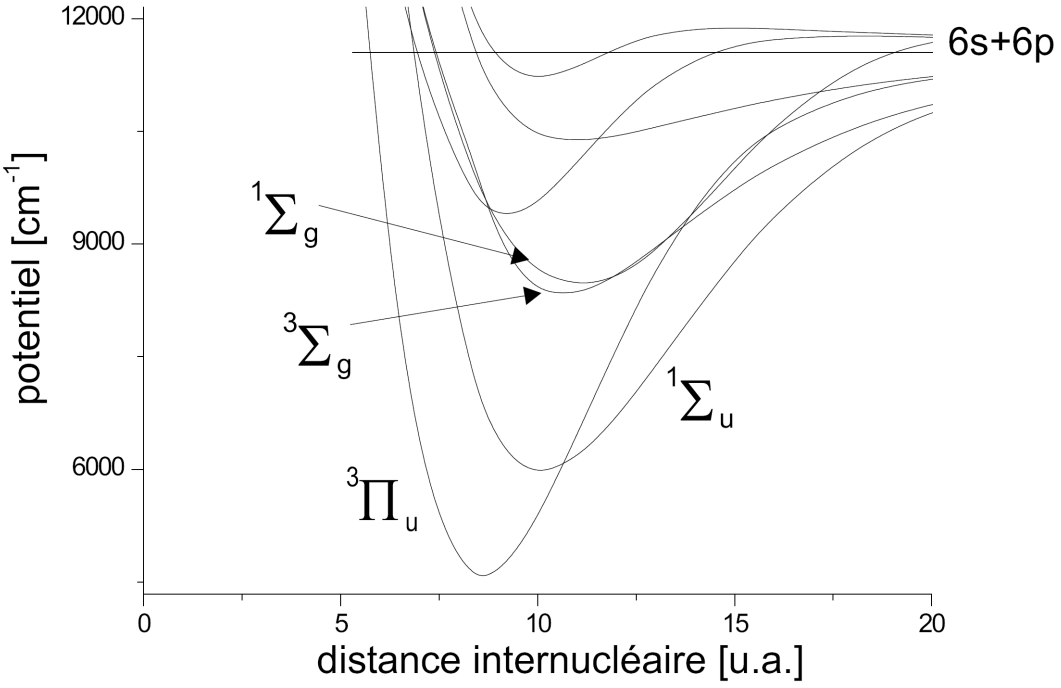

FIG. 1.8 – Potentiels électroniques moléculaires du césium corrélés aux limites $6s + 6p_{1/2,3/2}$, l'origine des énergies étant la limite de dissociation $6s + 6s$. En supposant que les molécules froides sont formées par photoassociation, c'est-à-dire qu'elles se trouvent principalement dans les niveaux vibrationnellement élevés des potentiels fondamentaux, le laser Nd:YAG ($\lambda^{-1} \sim 9400$ cm^{-1}) rend accessible par transition dipolaire électrique plusieurs potentiels excités comme $^1\Sigma_u$, $^3\Pi_u$, $^1\Sigma_g$ ou encore $^3\Sigma_g$. Le couplage des niveaux de ces potentiels excités avec les niveaux des potentiels électroniques fondamentaux rend très compromise la réalisation d'un piège dipolaire à molécules avec un laser Nd:YAG. Le laser CO_2 ($\lambda^{-1} \sim 943$ cm^{-1}) remplit, de ce point de vue, les critères pour la réalisation d'un tel piège conservatif.

1.9.2 Piégeage avec un laser CO_2

Nous allons nous intéresser maintenant au cas du laser CO_2 pour réaliser le confinement dipolaire de molécules froides de césium dans leur état électronique fondamental singulet $X^1\Sigma_g^+$ ou triplet $a^3\Sigma_u^+$.
Le laser CO_2 ($\lambda = 10600$ nm) produit des photons dont l'énergie est environ de 943 cm^{-1}. On peut voir sur la Fig. 1.8 qu'il rend très improbable l'excitation de molécules du fondamental vers les potentiels électroniques corrélés à la limite $6s + 6p$; il remplit donc, à première vue, les conditions pour la réalisation d'un piège moléculaire conservatif.
Le grand désaccord du laser CO_2 par rapport aux transitions électroniques moléculaires nous

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

permet d'utiliser l'approximation quasi-statique (voir Sec. 1.7), et de déduire ainsi l'expression du potentiel dipolaire d'un piège moléculaire de césium en fonction de la polarisabilité statique $\alpha_{Cs_2}^{stat}$ (voir Eq. 1.38) :

$$U_{dip}(\boldsymbol{r}) = -\alpha_{Cs_2}^{stat}\frac{I(\boldsymbol{r})}{2\epsilon_0 c} \tag{1.56}$$

[Tarnovsky et al., 1993] ont mesuré la polarisabilité statique[2] du dimère de césium : $\alpha_{Cs_2}^{stat} = 11,6 \times 10^{-39}$ C m^2/V
Ce qui nous donne une profondeur du potentiel moléculaire (sans tenir compte de la gravité) :

$$U_0^{hor}[\mu K] \simeq \frac{10^5 P[W]}{w_0^2[\mu m^2]} \tag{1.57}$$

et des fréquences d'oscillation radiale et longitudinale :

$$\nu_r[Hz] \simeq \frac{5,64 \times 10^5\sqrt{P[W]}}{w_0^2[\mu m^2]} \tag{1.58}$$

$$\nu_z[Hz] \simeq \frac{1,35 \times 10^6\sqrt{P[W]}}{w_0^3[\mu m^3]} \tag{1.59}$$

Pour $P \approx 100$ W et un waist ≈ 80 μm, nous trouvons les paramètres de piégeage : $U_0^{hor} \approx 1560$ μK, $\nu_r \approx 880$ Hz, et $\nu_z \approx 26$ Hz.

La première observation du piégeage de molécules neutres fut réalisée par le groupe de R. Knize en 1998 [Takekoshi et al., 1998]. Des molécules froides de césium Cs_2, créées "naturellement" dans un piège magnéto-optique sont transférées dans un piège dipolaire au niveau du point de focalisation d'un faisceau laser CO_2. Le nombre de molécules piégées était de l'ordre de six, et la durée typique de piégeage d'environ 0,5 s. Elles étaient détectées directement par photoionisation.

Le laser CO_2 apparaît donc *a priori* comme un outil idéal pour réaliser le piégeage de molécules de césium. Néanmoins, des transitions radiatives au sein des niveaux fondamentaux, provoquées par le laser CO_2 mais également par le rayonnement du corps noir, pourraient réduire la durée de vie du piège moléculaire. Nous allons maintenant présenter succinctement l'origine de ces deux effets.

Absorption des photons du CO_2

Nous avons déjà considéré précédemment le cas de l'absorption de photons du laser CO_2 par les molécules piégées dans un de leurs états fondamentaux. Les transitions vers les potentiels excités corrélés à la limite $6s + 6p$ pouvaient être négligées, ce qui constituait un bon point de départ pour l'élaboration d'un piège conservatif. Pour des molécules dimères homonucléaires, qui n'ont pas de dipôle permanent, les transitions entre niveaux de rotation-vibration sont interdites, ce qui constitue aussi un bon point de départ, mais limite peut-être cette technique au cas de systèmes homonucléaires. Au delà de cette limite, voyons dans quelle mesure des transitions pourraient cependant être induites en régime de champ laser intense, comme c'est le cas dans les expériences que nous avons menées.

[2] C'est une polarisabilité statique moyenne $\overline{\alpha}_{v,J}^{stat}(T)$ mesurée à 480 K dans un jet moléculaire (voir Sec. 1.5.2).

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Des transitions mettant en jeu uniquement les deux états fondamentaux restent en effet possibles et peuvent conduire à la dissociation des molécules piégées.
Trois transitions sont envisageables :

$$a^3\Sigma_u^+ \longrightarrow a^3\Sigma_u^+ \tag{1.60}$$
$$X^1\Sigma_g^+ \longrightarrow X^1\Sigma_g^+ \tag{1.61}$$
$$a^3\Sigma_u^+ \longleftrightarrow X^1\Sigma_g^+ \tag{1.62}$$

Les transitions (1.60) et (1.61) correspondent à des transitions entre niveaux de rotation-vibration sans changement d'état électronique ; elles concernent des molécules piégées dans l'état fondamental triplet (1.60) ou singulet (1.61). Elles ne peuvent pas être de nature dipolaire électrique car, bien que la condition de transition entre termes de même multiplicité soit vérifiée ($\Delta S = 0$ où S est le spin total), la règle de sélection $u \longrightarrow g$ n'est, quant à elle, pas respectée. En tenant compte des termes d'ordre supérieur dans l'hamiltonien d'interaction entre l'onde lumineuse et la molécule, on trouve que ces transitions peuvent être induites par l'interaction quadrupolaire électrique [3].

La transition (1.62) peut être réalisée grâce à l'interaction dipolaire électrique. Ce couplage n'est pas direct mais correspond à une perturbation du second ordre des états fondamentaux moléculaires. En effet, l'atome de césium possède un fort couplage spin-orbite du second ordre [Kotochigova et al., 2000, Mies et al., 1996] qui fournit à l'état fondamental $a^3\Sigma_u^+$ une composante singulet $^1\Pi_u$, autorisant donc les transitions dipolaires électriques vers le deuxième état fondamental $X^1\Sigma_g^+$. Ce problème est traité dans la thèse ([Vanhaecke, 2003] p64) qui décrit l'expérience du piégeage magnétique de molécules froides de césium dans l'état triplet. Ces transitions peuvent induire des transitions vers l'état non piégé singulet. Le véritable état électronique est en réalité un mélange de l'état fondamental $^3\Sigma_u^+$ et des états de caractère u dont les courbes de potentiel sont corrélées aux limites de dissociation supérieures. Parmi ces états, certains sont de caractère singulet, comme l'état $B^1\Pi_u$, depuis lesquels la transition dipolaire électrique vers l'état fondamental $X^1\Sigma_g^+$ est possible [4]. La durée de vie des niveaux vibrationnels de l'état triplet est estimée varier sur trois ordres de grandeurs suivant le niveau de vibration initial (5 s pour le niveau $v \approx 15$ et 10^3 s pour $v \approx 45$) [Vanhaecke, 2003].

Avant de conclure sur l'influence du laser CO_2, nous allons voir un effet également susceptible de perturber le piégeage des molécules.

Absorption du rayonnement du corps noir

La façon la plus commune de représenter la radiation du corps noir est d'utiliser la loi de Planck qui nous permet d'exprimer la densité spectrale d'énergie électromagnétique $\rho(\nu, T)$ du corps noir :

$$\rho(\nu, T) = \frac{8\pi h\nu^3}{c^3} \frac{1}{e^{h\nu/k_B T} - 1} \tag{1.63}$$

où k_B est la constante de Boltzmann, h la constante de Planck, ν la fréquence du rayonnement du corps noir, et T la température.

[3] Ces transitions ne peuvent pas être de nature dipolaire magnétique car cette interaction couple des états de spin différent.

[4] Il faut noter que l'état $X^1\Sigma_g^+$ est également un mélange de l'état fondamental $^1\Sigma_g^+$ et des états de caractère g dont les courbes de potentiel sont corrélées aux limites de dissociation supérieures.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Nous avons représenté sur la Fig. 1.9-a) cette densité d'énergie pour une température de 300 K. Pour calculer les taux des transition liées au rayonnement du corps noir, il est plus pratique d'exprimer la radiation en fonction du nombre de photons dans chaque mode du champ. Le nombre moyen de photons associés à un mode de fréquence ν est donné par :

$$\bar{n} = \frac{1}{e^{h\nu/k_B T} - 1} \tag{1.64}$$

La Fig. 1.9-b) représente la variation de $\bar{n}$ en fonction de la fréquence ν du rayonnement pour une température $T = 300$ K.
La fréquence d'une transition optique, reliant un atome dans son état fondamental à un niveau excité, est typiquement de l'ordre de $\nu = 3 \times 10^{14}$ Hz, ce qui correspond à environ $\lambda^{-1} = 10^4$ cm^{-1}. On voit clairement sur la figure, que l'excitation par le rayonnement du corps noir d'un atome dans son état fondamental est négligeable puisque $\bar{n} \sim 10^{-21} \ll 1$. Dans le cas d'une molécule de césium dans l'état singulet (profondeur du potentiel ~ 3650 cm^{-1}) ou triplet (profondeur du potentiel ~ 290 cm^{-1}), l'énergie typique des transitions peut varier de 1 cm^{-1} $< \lambda^{-1} <$ 3600 cm^{-1} ce qui correspondrait à un nombre moyen de photons par mode de $10^{-8} \lesssim \bar{n} \lesssim 210$.
Le rayonnement du corps noir serait susceptible lui aussi de provoquer des transitions entre niveaux de rotation-vibration des états fondamentaux moléculaires.

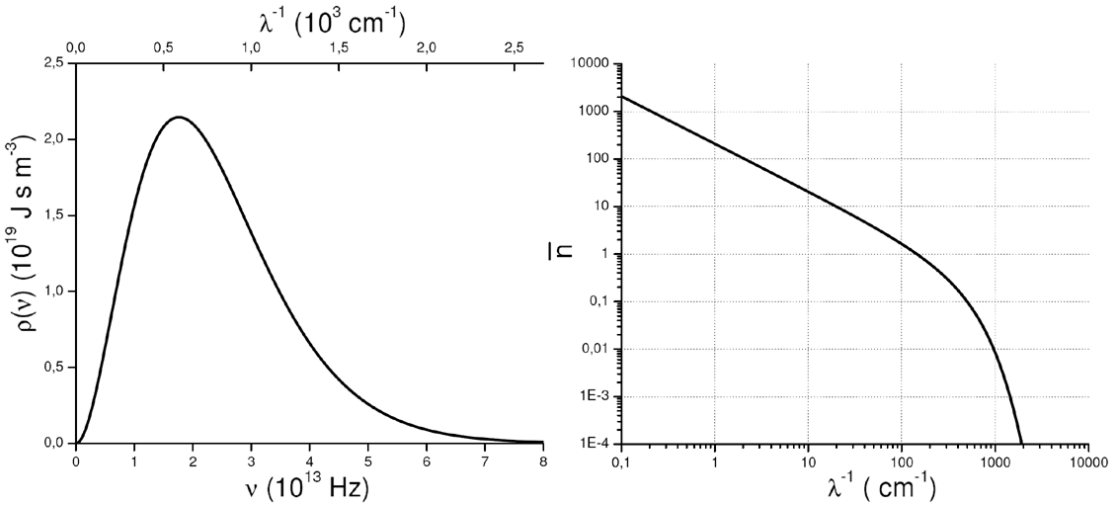

FIG. 1.9 – a) Densité d'énergie du rayonnement du corps noir en fonction de la fréquence des photons. b) Nombre moyen de photons associés à un mode de fréquence du rayonnement.

La détermination théorique des taux de transitions induits par le laser CO_2 et le rayonnement du corps noir est un problème très complexe que nous n'essaierons pas de résoudre dans cette thèse. Nous avons fait néanmoins une étude expérimentale (voir chapitre 3) pour évaluer l'influence du laser CO_2 sur la durée de vie d'un piège moléculaire de césium. Nous n'avons pas observé de limitation sur la durée de vie induite par le rayonnement du laser CO_2 ni d'ailleurs par le rayonnement du corps noir qui doit être du même ordre de grandeur ([Mudrich, 2003] p130), voire plus faible.
On peut simplement noter que ces deux effets peuvent avoir un rôle décisif dans le piégeage

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

de molécules hétéronucléaires, où cette fois les transitions entre niveaux de vibration d'un même potentiel sont permises. Ces processus ont été étudiés dans le cas du piégeage de LiCs dans un laser CO_2 et semblent très compromettants ([Mudrich, 2003] p127).

1.9.3 Conclusion

Nous avons vu l'impossibilité d'utiliser un laser Nd:YAG pour réaliser un piège dipolaire de molécules de césium, formées par photoassociation d'atomes froids. Il induirait des transitions entre les états fondamentaux des molécules et certains potentiels électroniques corrélés sous la limite $6s + 6p$. L'utilisation d'un laser CO_2 s'avère donc plus judicieuse et nous permet de négliger complètement toute transition vers les potentiels excités de la molécule. Néanmoins les photons du laser CO_2 pourraient constituer un facteur limitant à l'obtention d'un piège moléculaire à durée de vie très longue, en induisant des transitions entre les niveaux de rotation-vibration des états fondamentaux triplet et singulet.
Une alternative à l'utilisation de ces deux lasers serait l'utilisation de longueurs d'onde supérieures à environ 2,2 μm ($\lambda^{-1} \sim 4500$ cm^{-1}) pour éviter l'excitation des potentiels excités corrélés sous la limite $6s + 6p$ et inférieures à 2,8 μm ($\lambda^{-1} \sim 3600$ cm^{-1}) pour éviter les transitions peu probables entre les niveaux de rotation-vibration des potentiels fondamentaux. La meilleure solution serait d'utiliser un laser de longueur d'onde d'environ 2,7 μm. L'utilisation d'un laser OPO est un bon moyen pour atteindre ces longueurs d'onde. Toutefois, cette solution ne peut être envisagée pour l'instant puisque la puissance maximale atteinte à ce jour, d'environ 1 W [Yang et al., 1993], n'est pas suffisante pour réaliser un puits de potentiel assez profond. A ma connaissance, aucun laser à 2,7 μm n'est capable de réaliser un piège dipolaire pour molécule. La meilleure solution reste l'utilisation d'un laser CO_2 de forte puissance.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Chapitre 2

Piège atomique optique et magnétique vers la CBE

2.1 Introduction

En 1995, le groupe de E. Cornell et C. Wieman observe le premier condensat de Bose-Einstein sur un gaz d'atomes de ^{87}Rb [Anderson et al., 1995], soixante-dix ans après la prédiction du phénomène par A. Einstein. Le domaine des atomes froids a connu une avancée extraordinaire depuis l'avènement des techniques de refroidissement laser [Chu, 1998, Cohen-Tannoudji, 1998b, Phillips, 1998]. Le succès des premières expériences de condensation résulte de la combinaison des méthodes de confinement magnétique et de refroidissement évaporatif, initialement développées pour des atomes d'hydrogène.
Après la première démonstration expérimentale du phénomène de condensation, des indications claires de la transition ont été obtenues sur les atomes de ^{23}Na [Davis et al., 1995], ^{7}Li [Bradley et al., 1995], ^{1}H [Fried et al., 1998], ^{4}He* [Robert et al., 2001], ^{41}K [Modugno et al., 2001], ^{133}Cs [Weber et al., 2003a], ^{174}Yb [Takasu et al., 2003] et ^{52}Cr [Griesmaier et al., 2005].

L'atome de césium, sur lequel nous avons concentré nos efforts pour atteindre le régime de dégénérescence quantique, a déjoué toutes les tentatives depuis 1996 jusqu'à octobre 2002. Plusieurs équipes, tant expérimentales que théoriques, ont mis en évidence la richesse et la complexité du comportement collisionnel de cet atome. Le taux de collisions inélastiques à deux corps, pendant la phase de refroidissement évaporatif, induit des pertes d'atomes si élevées qu'elles rendent toute tentative de condensation dans un piège magnétique impossible. Pour éviter toute collision inélastique, il suffit de piéger les atomes de césium dans leur état fondamental de plus basse énergie. Cependant les atomes polarisés dans cet état ne sont pas piégeables magnétiquement. En 1999, notre équipe de recherche a fait le choix de piéger ces atomes dans un tout nouveau type de piège conservatif, combinant l'effet d'une force optique dipolaire et d'une force magnétique.

2.1.1 Présentation du chapitre

Dans ce chapitre, nous présentons dans un premier temps quelques généralités concernant le phénomène de condensation de Bose-Einstein, puis décrivons la voie classique permettant d'atteindre le seuil de dégénérescence quantique. Nous nous intéressons ensuite au cas de

l'atome de césium, dont le comportement collisionnel nous impose d'envisager un nouveau type de piège conservatif. Nous décrivons ensuite le principe du piège hybride optique et magnétique que nous avons mis en place. Le régime collisionnel au sein du piège est caractérisé afin d'établir la possiblité d'obtenir un condensat de Bose-Einstein avec un tel dispositif. La dernière partie de ce chapitre est consacrée à une brève description de la réorientation de l'expérience vers un piège tout optique.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

2.2 Vers la Condensation de Bose-Einstein (CBE)

2.2.1 Généralités

C'est en 1924 qu'Einstein (1879-1955), s'inspirant des travaux du jeune physicien bengali S. Bose (1894-1974), démontre un résultat remarquable à propos d'un gaz parfait de particules identiques de densité spatiale n et de température T. Si les particules sont des bosons, une condensation des particules doit se produire dans l'état fondamental de la boîte contenant le gaz si la densité dans l'espace des phases $n\lambda_{DB}^3$ dépasse la valeur critique :

$$n\lambda_{DB}^3 \approx 2,612\,^1 \qquad \text{avec} \quad \lambda_{DB} = \frac{h}{\sqrt{2\pi m k_B T}} \tag{2.1}$$

où λ_{DB} représente la longueur d'onde thermique de de Broglie des particules de masse m. k_B et h sont respectivement les constantes de Boltzmann et de Planck.

La longueur d'onde λ_{DB} donne une estimation de la taille moyenne du paquet d'ondes associé à chaque particule. Plus elle est importante et plus le caractère quantique des atomes se manifeste. Le critère d'Einstein (2.1) indique donc que la condensation se produit lorsque les paquets d'ondes commencent à se recouvrir entre eux, c'est-à-dire lorsque λ_{DB} est de l'ordre de la distance moyenne entre deux atomes $n^{-1/3}$ (voir Fig. 2.1). On assiste alors à un phénomène d'interférences constructives entre les paquets d'ondes qui donne naissance à une onde de matière géante. Avec l'apparition de cette onde macroscopique, les atomes deviennent complètement délocalisés sur le volume de piégeage ; on est alors en présence d'un condensat de Bose-Einstein. Le résultat concret de ce phénomène est qu'une fraction macroscopique du nombre total de particules occupe l'état de plus basse énergie du système ; on atteint un régime dit de *dégénérescence quantique*.

La statistique de Bose-Einstein à laquelle doit se conformer un gaz de N bosons piégés, impose une distribution bien déterminée de la population N_k des états k du système :

$$N = \sum_k N_k \quad avec \quad N_k = \frac{1}{e^{\beta(\epsilon_k - \mu)} - 1} \tag{2.2}$$

où ϵ_k est l'énergie associée à l'état k, μ est le potentiel chimique, et $\beta = 1/k_B T$.

Le potentiel chimique μ peut prendre toutes les valeurs depuis $-\infty$ jusqu'à ϵ_{min}, qui représente l'énergie du niveau fondamental du système. Pour un potentiel chimique au delà de cette valeur, la population de ce niveau fondamental deviendrait négative, ce qui n'a, bien sûr, aucun sens.

– Quand μ tend vers ϵ_{min}, à température fixée, le nombre de particules N_0 dans le niveau fondamental tend vers l'infini :

$$\mu \longrightarrow \epsilon_{min} \quad : \quad N_0 \approx \frac{k_B T}{\epsilon_{min} - \mu} \tag{2.3}$$

– Si le gaz est confiné dans une enceinte de taille finie, ou piégé par un potentiel harmonique, le spectre d'états k est discret. Le nombre de particules N' dans les niveaux excités est borné supérieurement :

[1] L'expression (2.1) n'est valable que dans le cas d'un gaz piégé dans une boîte. Dans le cas d'un système piégé dans un potentiel harmonique, le critère d'Einstein devient $n\lambda_{DB}^3 \approx 1,202$.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

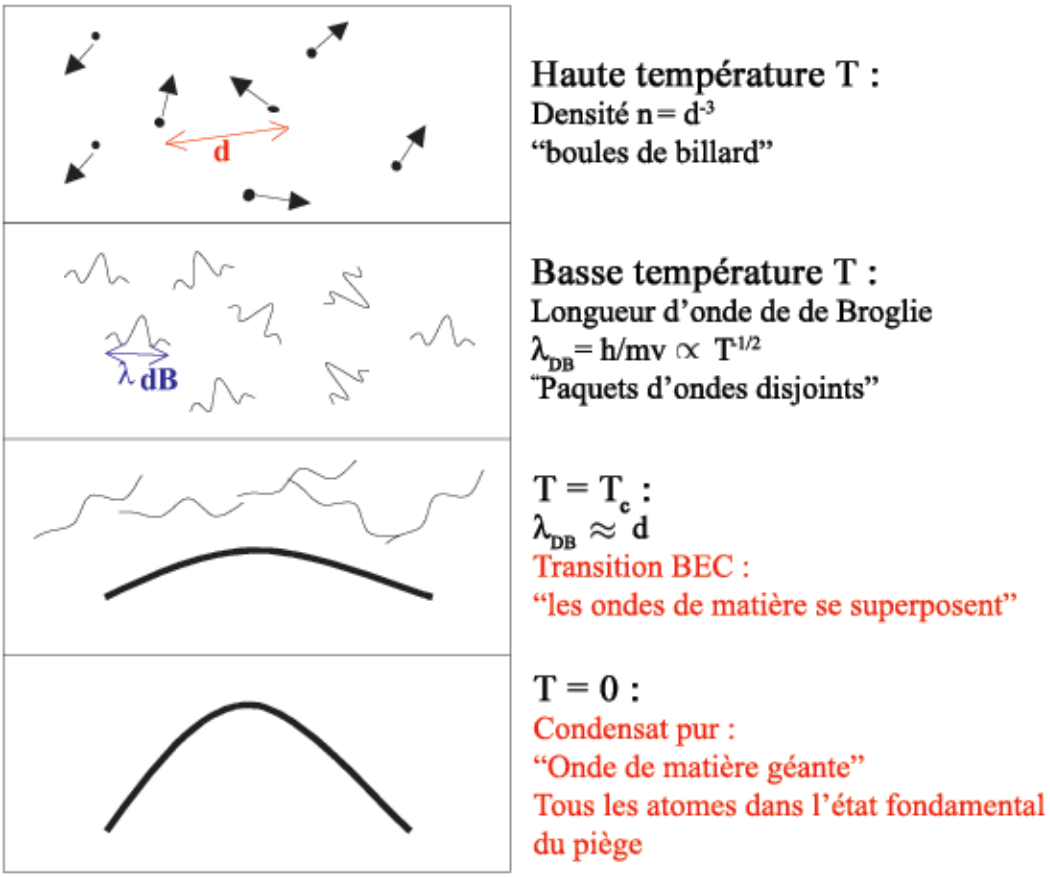

FIG. 2.1 – Représentation intuitive de l'obtention d'un condensat de Bose-Einstein [Ketterle et al., 1998]. A haute température, un gaz d'atomes en faible interaction peut être assimilé à un ensemble de "boules de billard". A basse température, le caractère quantique des atomes se manifeste ; ils se comportent comme des paquets d'ondes d'extension spatiale λ_{DB}. Lors de la transition de phase, la longueur d'onde de de Broglie devient comparable à la distance interatomique et les paquets d'ondes se superposent pour donner naissance à un condensat de Bose-Einstein. Proche d'une température nulle, le nuage thermique disparaît, laissant place à un pur condensat formant une onde de matière géante. La figure est extraite de [Ketterle et al., 1998].

$$N' = \sum_k{}' \frac{1}{e^{\beta(\epsilon_k - \mu)} - 1} \quad < \quad N'_{max} = \sum_k{}' \frac{1}{e^{\beta(\epsilon_k - \epsilon_{min})} - 1} \tag{2.4}$$

où $\sum_k{}'$ représente la somme sur tous les états propres k du système en excluant l'état fondamental.

L'existence du nombre de saturation N'_{max}, qui représente une borne supérieure au nombre de particules que l'on peut disposer dans les états autres que le niveau fondamental, peut être considérée comme une signature de la condensation de Bose-Einstein : si, à température fixée, on place dans un piège un nombre de particules N supérieur à N'_{max}, on est certain qu'au moins $N - N'_{max}$ particules iront se loger sur le niveau fondamental.

Si l'on considère un piège harmonique isotrope de fréquence $\nu = \omega/2\pi$, on trouve, dans la limite où le quantum de vibration est très petit devant l'énergie thermique

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

[Cohen-Tannoudji, 1998a] :

$$N'_{max} \approx 1,202 \left(\frac{k_B T}{\hbar\omega}\right)^3 \tag{2.5}$$

Disposant du nombre de saturation pour un piège harmonique, nous pouvons décrire l'état d'équilibre d'un système de N bosons dans ce piège, quand on fait varier sa température. La température pour laquelle $N'_{max} = N$ se déduit de l'expression (2.5). Elle est donnée par :

$$T_c = 0,94 \frac{\hbar\omega}{k_B} N^{1/3} \tag{2.6}$$

Si la température s'abaisse en dessous de T_c, on assiste à une redistribution des particules depuis les niveaux excités vers le niveau fondamental. L'évolution de la fraction de particules condensées N_0/N est, elle, donnée par :

$$\frac{N_0(T)}{N} = 1 - \left(\frac{T}{T_c}\right)^3 \tag{2.7}$$

2.2.2 Du gaz thermique au gaz quantique dégénéré

L'idée essentielle de toutes les expériences visant à atteindre la condensation de Bose-Einstein consiste à se rapprocher de l'hypothèse de base d'Einstein, c'est-à-dire travailler avec un gaz dilué et non pas un liquide. Le prix à payer pour y arriver se lit immédiatement sur l'expression (2.1) : quand on diminue la densité spatiale du système en jeu, la température de transition s'abaisse également. Cette contrainte en température vient imposer un point commun à toutes ces expériences : le confinement ne peut se faire par des parois matérielles, car la totalité des atomes se collerait immédiatement aux parois pour ne plus en bouger. Le développement des techniques de piégeage et de refroidissement d'atomes par des faisceaux lumineux ou des champs magnétiques statiques a permis de faire une grande percée vers la condensation de Bose-Einstein. Dans une expérience standard visant l'obtention du régime de dégénérescence quantique, plusieurs étapes sont nécessaires. Nous allons tenter de les présenter de façon succincte dans la suite.

Gaz thermique

Le point de départ des expériences est donc un gaz thermique à température ambiante $T = 300$ K qui sera manipulé dans une enceinte à vide où règne une pression de l'ordre de 10^{-11} Torr (1 Torr $\approx$ 133 Pa). Le système est alors caractérisé par une densité spatiale $n \approx 10^5$ cm^{-3} et une longueur d'onde thermique $\lambda_{DB} \approx 10^{-11}$ m. La densité dans l'espace des phases est dans ce cas de l'ordre de 10^{-22}. Il faut donc gagner 22 ordres de grandeurs pour atteindre le seuil de dégénérescence quantique (voir équation (2.1)).

Piège Magnéto-Optique

La première étape vers la condensation de Bose-Einstein consiste à piéger et refroidir les atomes dans un piège magnéto-optique [Metcalf and der Straten, 1994, Cohen-Tannoudji, 1992]. Un tel piège est réalisé à l'aide de trois paires de faisceaux lasers contre-propageants, légèrement décalés vers le rouge d'une transition atomique, et une paire de bobines en position anti-Helmoltz, produisant un champ magnétique nul au centre de l'échantillon atomique (voir Fig. 2.2). Ce dispositif permet d'atteindre des températures Doppler ($T_D = \hbar\Gamma/2k_B$ où Γ est la largeur naturelle du niveau excité intervenant dans

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

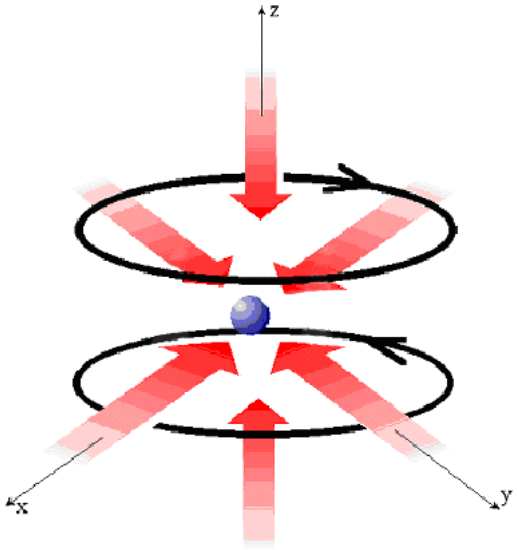

FIG. 2.2 – Représentation d'un piège magnéto-optique.

la transition optique) autour de la centaine de microkelvins et des densités de l'ordre de 10^{10} at/cm^3. La densité dans l'espace des phases, $n\lambda_{DB}^3$, est de l'ordre de 10^{-8}. Le piège magnéto-optique nous fait donc gagner plus de dix ordres de grandeurs.

L'application d'une phase de mélasse optique, pendant laquelle le champ magnétique du piège est éteint, permet d'atteindre des températures inférieures à la température Doppler. Ce refroidissement par gradient de polarisation permet d'augmenter la densité dans l'espace des phases jusqu'à typiquement 10^{-6}.

Les limitations de ce genre de refroidissement laser sont essentiellement dues à la diffusion multiple et au chauffage causés par les photons des lasers utilisés. Il faut donc transférer les atomes dans un piège conservatif dans lequel les atomes sont isolés de toute source de chauffage, et avec lequel on peut augmenter la densité dans l'espace des phases jusqu'à l'obtention du condensat.

Piège conservatif

L'étape suivante consiste à transférer les atomes dans un piège conservatif ou non-dissipatif. Le piège conservatif le plus utilisé pour obtenir un condensat est le piège magnétique. Il est réalisé en polarisant, dans un premier temps, les atomes dans un état de moment magnétique $\boldsymbol{\mu}$ non-nul. Ils peuvent alors interagir avec un champ magnétique $\boldsymbol{B}$ et donner naissance à une énergie d'interaction de la forme :

$$W = -\boldsymbol{\mu} \cdot \boldsymbol{B} \tag{2.8}$$

Si le dipôle est aligné dans le sens du champ, son énergie magnétique diminue lorsque le module du champ magnétique augmente, et il est donc attiré vers les régions de champ fort. Inversement, si $\boldsymbol{\mu}$ est de sens opposé à $\boldsymbol{B}$, l'atome est attiré par les zones de champ faible. Les atomes peuvent donc être localisés au voisinage des extrema du module de champ.
Les équations de Maxwell interdisent l'existence d'un maximum local du module du champ magnétique pour un champ purement statique dans le vide. Ce résultat est connu sous le

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

nom de théorème de Wing [Cohen-Tannoudji, 1997]. Il empêche donc le piégeage d'atomes dans un état attiré par les champs forts. Tous les pièges magnétiques statiques confinent donc les atomes polarisés dans un état anti-parallèle au champ magnétique. Dans le cas d'atome polarisé dans l'état Zeeman $|f, m_f\rangle$, son énergie peut s'écrire sous la forme :

$$W = m_f g_f \mu_B |B| \tag{2.9}$$

où μ_B est le magnéton de Bohr (>0), g_f est le facteur de Landé associé au niveau hyperfin f.

Ainsi les atomes polarisés dans des états tels que $m_f g_f > 0$ vont pouvoir être piégés dans des pièges purement magnétiques.

Le transfert des atomes depuis la mélasse optique vers le piège magnétique se fait généralement en maintenant à peu près constante la densité dans l'espace des phases. Une fois les atomes dans le piège conservatif, il faut les soumettre à une séquence de refroidissement supplémentaire, en utilisant la technique du refroidissement évaporatif.

Refroidissement évaporatif

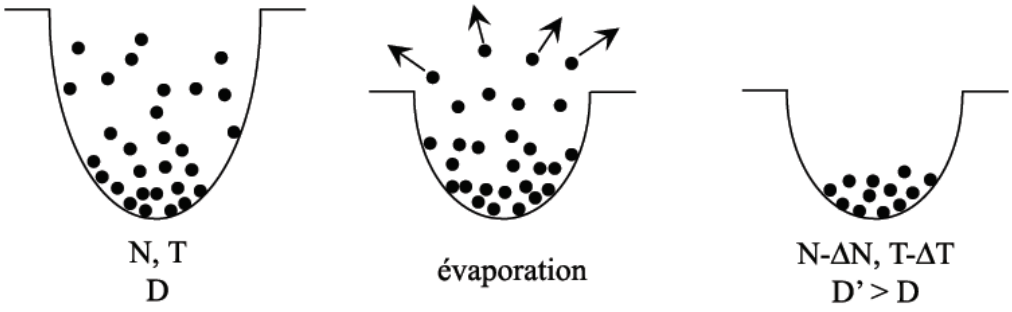

FIG. 2.3 – Principe du refroidissement évaporatif d'un nuage d'atomes piégés à l'équilibre thermodynamique. Les atomes dont l'énergie est plus grande que l'énergie moyenne des atomes confinés sont expulsés du piège. Les collisions élastiques entre ceux restant dans le piège rethermalisent l'échantillon à une température $T - \Delta T$, inférieure à celle de départ. Malgré la perte d'atomes engendrée par ce processus, la densité dans l'espace des phases $D = n\lambda_{DB}^3$ augmente.

Le refroidissement mis en place dans le piège conservatif est basé sur la technique dite de l'évaporation. La méthode consiste à tronquer la profondeur du potentiel confinant les atomes à une hauteur légèrement supérieure à l'énergie cinétique moyenne des atomes piégés. Ainsi, les atomes les plus rapides s'échappent du piège, et les atomes restants se rethermalisent à une température inférieure à la température initiale (voir Fig. 2.3). Au cours de ce processus, on peut également montrer que la densité au centre du piège est augmentée. Par conséquent, en la poursuivant assez longtemps, la phase d'évaporation permet de gagner les ordres de grandeurs manquants pour atteindre le seuil de condensation.

La réalisation pratique de la technique d'évaporation se fait, dans le cas d'un piège magnétique, en utilisant une onde radio de fréquence ν. Elle a pour effet de faire basculer le moment magnétique des atomes qui sont résonants avec une surface de module de champ magnétique fixée par ν. L'inversion du signe de leur moment magnétique conduit les atomes

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

ayant interagi à voir non plus un puits de potentiel mais une colline ; ils sont alors expulsés du piège (voir Fig. 2.4).

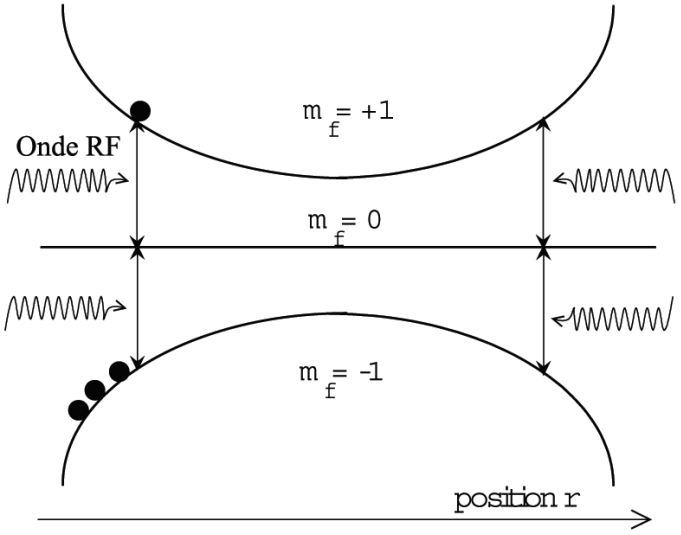

FIG. 2.4 – Principe du refroidissement évaporatif en utilisant une onde radio-fréquence. Un atome polarisé dans l'état $m_f = 1$, situé à la position $\boldsymbol{r}$ satisfaisant à la relation $\hbar\omega_{rf} = g_f\mu_B|\boldsymbol{B}(\boldsymbol{r})|$, où ω_{rf} est la pulsation d'un photon radio-fréquence, est transféré vers les états non piégés $m_f = 0$, -1.

La dynamique de l'évaporation est fixée par le taux de collisions élastiques au sein du nuage atomique $\Gamma_{el} = \bar{n}\sigma\bar{v}$, où $\bar{n}$ est la densité spatiale moyenne, σ est la section efficace de collisions élastiques et $\bar{v}$ est la vitesse moyenne des atomes du piège. Ces collisions élastiques sont primordiales pour atteindre le régime de dégénérescence puisqu'elles assurent la thermalisation du gaz pendant le processus d'évaporation.
Néanmoins, ce type de collisions élastiques n'est pas le seul à intervenir dans l'évolution d'un gaz d'atomes piégés. Il faut également considérer les collisions entre les atomes chauds du gaz résiduel et les atomes piégés, ainsi que les collisions inélastisques entre deux voire trois atomes piégés. Ces deux types de collisions participent à la perte d'atomes du piège tout au long de la phase de refroidissement et donc tendent à réduire la densité dans l'espace des phases. Ils sont, de plus, la cause d'un effet de réchauffement de l'échantillon atomique, puisque les atomes les plus froids peuvent être expulsés du piège après de telles collisions. Il faut donc réduire au maximum la probabilité que ces collisions néfastes se produisent. Les collisions avec le gaz résiduel sont simplement réduites en améliorant la qualité du vide dans l'enceinte. Les collisions inélastiques sont, quant à elles, plus difficiles à contrôler mais la possibilité de les réduire est envisageable en modifiant directement les potentiels d'interaction entre atomes.
Finalement, le paramètre crucial pour atteindre la condensation de Bose-Einstein est donné par le rapport du taux de collisions élastiques sur celui des collisions néfastes. Pour que le refroidissement évaporatif reste efficace, ce rapport doit être suffisamment grand pour permettre une thermalisation beaucoup plus rapide devant le processus de pertes.

Nous allons voir maintenant pourquoi ce chemin classique menant à l'obtention d'un condensat de Bose-Einstein s'est avéré être un échec dans le cas de l'atome de césium.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

2.2.3 Cas du césium

Les seuls processus préoccupants, susceptibles de limiter l'efficacité du refroidissement évaporatif d'un gaz de césium, étaient naturellement les collisions inélastiques. Ces dernières avaient été estimées par les théoriciens spécialistes des collisions froides [Tiesinga et al., 1992, Tiesinga et al., 1993]. Pour les collisions inélastiques à deux corps, le mécanisme dominant semblait être la relaxation due à l'interaction dipolaire magnétique. Les taux de pertes étaient estimés à 10^{-15} cm^3 s^{-1}. Ainsi, pour des densités typiques d'un condensat de l'ordre de 10^{14} cm^{-3}, un tel effet conduit à une durée de vie de l'ordre d'une dizaine de secondes. Par ailleurs, le taux de recombinaison à trois corps avait été évalué à 10^{-29} cm^6 s^{-1}, soit une limitation sur la durée de vie du condensat du même ordre de grandeur que celle liée à la relaxation dipolaire. Ces taux prévus étaient comparables à ceux des autres atomes alcalins : ^{7}Li, ^{23}Na, ^{87}Rb, pour lesquels la condensation avait déjà été observée. Nous allons voir que l'atome de césium déjoue toutes les prédictions théoriques initialement annoncées en exhibant des taux de collisions inélastiques exceptionnellement élevés.
Avant de poursuivre avec le cas du césium et d'exposer les premières observations expérimentales, nous allons décrire brièvement les interactions qui existent entre ces atomes alcalins dans leur état fondamental $6s_{1/2}$ [Heinzen, 1998].

Interactions entre atomes de césium ultrafroids

Avant de décrire les interactions entre des atomes de césium ultrafroids, nous rappelons le diagramme des premiers niveaux d'énergie du césium sur la Fig. 2.5.

Nous allons considérer la collision entre deux atomes de césium (1) et (2) dans leur état fondamental, en présence d'un champ magnétique $\boldsymbol{B}$. Chacun des atomes possède un spin électronique $\boldsymbol{s}$ avec $s = 1/2$ et un spin nucléaire $\boldsymbol{i}$ avec $i = 7/2$. Ces deux spins se couplent pour donner un des états de spin total $\boldsymbol{f} = \boldsymbol{s} + \boldsymbol{i}$, avec $f = i \pm 1/2$. En considérant le système des deux atomes en collision, on est amené à définir le spin total électronique $\boldsymbol{S} = \boldsymbol{s}_1 + \boldsymbol{s}_2$, avec $S = 0, 1$ et le spin total nucléaire $\boldsymbol{I} = \boldsymbol{i}_1 + \boldsymbol{i}_2$ avec $I = 0, 1, ...7$. Le spin total des deux atomes est donné par $\boldsymbol{F} = \boldsymbol{S} + \boldsymbol{I} = \boldsymbol{f}_1 + \boldsymbol{f}_2$.
Pour décrire un tel système, nous allons nous placer dans le référentiel du centre de masse, dans lequel l'hamiltonien s'écrit sous la forme :

$$H = \frac{\boldsymbol{P}_1^2}{2m_1} + \frac{\boldsymbol{P}_2^2}{2m_2} + \sum_{i=1}^{2}(V_i^{hf} + V_i^Z) + V_c + V_d + V_{so} \tag{2.10}$$

On distingue les termes à un corps : les énergies cinétiques de chaque atome, leur terme d'interaction hyperfine $V_k^{hf} = a_{hf}\boldsymbol{s}_k \cdot \boldsymbol{i}_k$ où a_{hf} représente l'écart hyperfin entre les deux niveaux fondamentaux $f = 4$ et $f = 3$, et leur terme d'interaction Zeeman $V_k^Z = \boldsymbol{\mu}_k^e \cdot \boldsymbol{B} + \boldsymbol{\mu}_k^n \cdot \boldsymbol{B}$ où $\boldsymbol{\mu}_k^e$ et $\boldsymbol{\mu}_k^n$ sont respectivement les moments magnétiques dipolaires de l'électron et du noyau.

Les termes suivants caractérisent l'interaction entre les deux atomes :

– $V_c = V_{disp} + V_{ech}$ correspond à la description effective des interactions coulombiennes, où $V_{disp} = -C_6/R^6 - C_8/R^8 - C_{10}/R^{10} - ...$ est l'interaction dispersive entre les deux atomes, R étant la distance interatomique ; V_{ech} représente l'interaction d'échange électronique, correspondant au recouvrement radial des fonctions d'onde électroniques. A courte distance, l'interaction d'échange domine et donne naissance aux potentiels singlet $X^1\Sigma_g^+$ et triplet

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

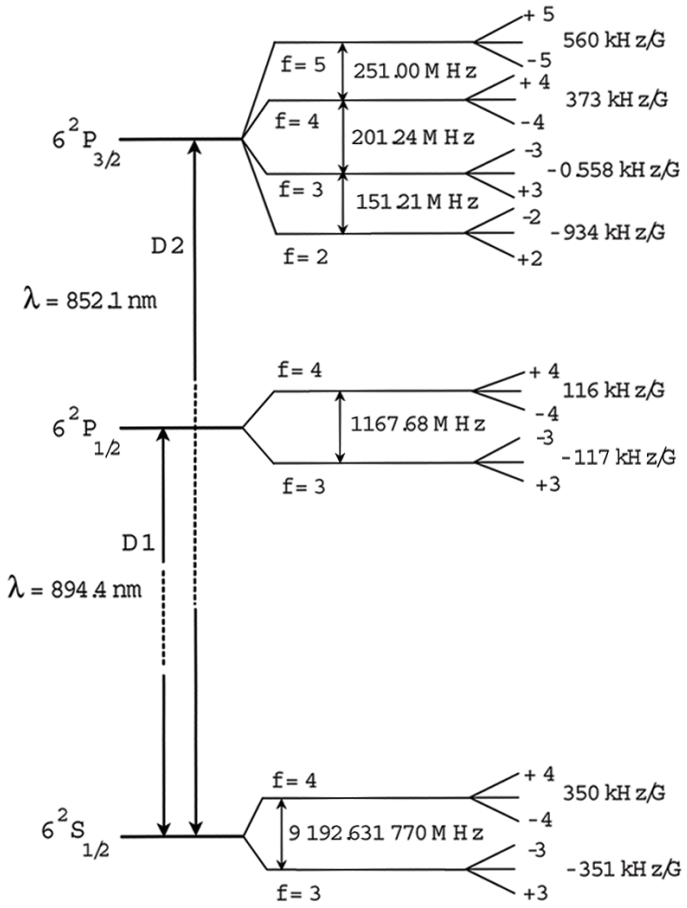

FIG. 2.5 – Diagramme des premiers niveaux d'énergie du ^{133}Cs.

$a^3\Sigma_u^+$ de l'état fondamental moléculaire.

– V_d représente l'interaction dipolaire magnétique, qui tient compte de l'interaction dipolaire électron(1)-électron(2), électron(1)-noyau(2), électron(2)-noyau(1), noyau(2)-noyau(1). Le terme dominant est le couplage électron(1)-électron(2) qui s'écrit :

$$V_d^{e-e} = \frac{1}{4\pi\epsilon_0 R^3}\left[\boldsymbol{\mu}_1^e \cdot \boldsymbol{\mu}_2^e - 3\left(\boldsymbol{\mu}_1^e \cdot \boldsymbol{R}/R\right)\cdot\left(\boldsymbol{\mu}_1^e \cdot \boldsymbol{R}/R\right)\right] \tag{2.11}$$

Les deuxième et troisième termes sont plus petits d'un facteur γ_n/γ_e et le dernier d'un facteur $(\gamma_n/\gamma_e)^2$; γ_n et γ_e désignent les rapports gyromagnétiques du noyau et de l'électron.

– V_{so} est le terme d'interaction spin-orbite. Il est nul au premier ordre pour des atomes alcalins dans leur état fondamental, mais ne l'est plus au deuxième ordre. Cette interaction introduit un couplage spin-spin avec la même dépendance en terme de spin que le potentiel V_d mais avec une dépendance radiale différente [Mies et al., 1996]. Il est *a priori* d'autant plus important que le nombre d'électrons de l'atome étudié est élevé. Il s'est avéré jouer un rôle important dans les processus de perte d'atomes dans les expériences de piégeage magnétique d'atomes de césium dans l'état $(f = 4, m_f = +4)$; nous reviendrons sur ce point dans la suite.

Généralement, les deux derniers termes de l'hamiltonien d'interaction, V_d et V_{so}, sont bien

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

plus faibles que les autres termes et peuvent être négligés en première approximation. Dans le cas du césium, les trois termes d'interaction V_{ech}, V_d et V_{so} sont susceptibles d'induire des collisions inélastiques à deux corps. Ces collisions sont néfastes dans les expériences visant à atteindre la condensation de Bose-Einstein car elles engendrent des pertes d'atomes non désirées et un éventuel chauffage. Nous allons voir qu'en polarisant convenablement les atomes dans un état interne bien défini, nous sommes capables de nous affranchir de certaines de ces collisions.

Collisions inélastiques à deux corps

Transitions d'échange : Indépendamment de la nature des interactions interatomiques, la projection du moment angulaire total $\boldsymbol{J} = \boldsymbol{l} + \boldsymbol{F}$ suivant z est conservée ; $\boldsymbol{l}$ est le moment orbital angulaire relatif. La valeur l définit l'onde partielle de collision des deux atomes et ne peut prendre que des valeurs paires dans le cas de bosons polarisés. Les propriétés de symétrie sur les termes d'interaction renseignent sur les transitions possibles lors d'une collision inélastique. Ainsi, V_{ech} étant un potentiel central, il conserve les nombres quantiques l et m_l. Par conséquent, les transitions entre M_F différents ne sont pas autorisées par ce potentiel. On a donc $\Delta M_F = 0$ pour les transitions induites par l'interaction d'échange. Pour éviter de telles transitions, les atomes doivent être polarisés dans leur état doublement polarisé $|f = i + 1/2, m_f = \pm f\rangle$ (état de spin maximum purement triplet, $S = 1$). La somme des m_f étant dans ce cas maximale ($M_f = \pm f$), l'interaction d'échange ne peut pas induire des transitions vers des états de plus petit m_f.
Les atomes peuvent être également polarisés dans le niveau hyperfin fondamental $|f = i - 1/2, m_f = \pm f\rangle$. Dans ce cas, les transitions d'échange doivent faire intervenir un état du niveau hyperfin supérieur $f = i+1/2$ pour conserver M_F. Un tel processus est énergétiquement interdit si l'énergie cinétique des atomes est très inférieure à l'écart en énergie des deux niveaux hyperfins. Dans le cas du césium, l'énergie cinétique nécessaire pour induire une telle transition est de l'ordre de 400 mK, ce qui est bien plus élevé que la profondeur des pièges conservatifs habituels, de l'ordre du millikelvin. L'énergie cinétique des atomes confinés ne permet donc pas l'existence de telles collisions, induites par interaction d'échange.

Transitions dipolaires : L'interaction dipolaire peut, quant à elle, échanger du moment angulaire de spin F et du moment angulaire orbital l. Les transitions qu'elle autorise vérifient $0 < |\Delta M_F| \leq 2$ et $|\Delta l| \leq 2$ à l'exception des transitions $l = 0 \longrightarrow l = 0$. Si l'onde entrante est une onde s (cas des bosons à basse température), l'onde sortante est forcément une onde d sous l'effet de l'interaction dipolaire.
Pour éviter de telles transitions, on peut polariser l'atome dans l'état de plus basse énergie du niveau hyperfin fondamental. La relaxation dipolaire est alors interdite pour des raisons énergétiques.
Dans le cas du césium, si l'on polarise l'atome dans le niveau Zeeman fondamental $|f = 3, m_f = +3\rangle$, une transition dépolarisante vers l'état $|f = 3, m_f = +2\rangle$ nécessite une énergie supérieure à $\mu_B B/4$, soit environ 170 μK pour un champ de 10 Gauss. Cette énergie n'est pas disponible pour un échantillon d'atomes refroidis à la température de 10 μK, après une phase de mélasse optique.

Tentatives expérimentales de CBE du césium

Les premières tentatives expérimentales visant à obtenir un condensat de Bose-Einstein furent entreprises en France au laboratoire Kastler Brossel dans l'équipe de J. Dalibard

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

[Guery-Odelin, 1998a] et en Angleterre, à Oxford, dans l'équipe de C. Foot [Webster, 2000]. Les deux groupes avaient choisi la technique standard du refroidissement évaporatif d'atomes de césium confinés dans un piège magnétique. La polarisation des atomes dans l'état $|f = 4, m_f = 4\rangle$ et par la suite dans l'état $|f = 3, m_f = -3\rangle$ a révélé les limites de la technique de piégeage magnétique pour atteindre le régime de dégénérescence quantique avec l'atome de césium. Les taux de collisions inélastiques se sont avérés bien plus importants qu'ils n'avaient été prévus initialement [Tiesinga et al., 1992, Tiesinga et al., 1993].
Nous allons rappeler les résultats obtenus expérimentalement par ces deux groupes.

Etat $|f = 4, m_f = 4\rangle$: L'idée initiale, adoptée par les deux équipes, était de piéger les atomes dans l'état doublement polarisé $|f = 4, m_f = 4\rangle$, rendant ainsi impossible toute collision inélastique induite par l'interaction d'échange ; Les autres types de collisions inélastiques étaient jugées négligeables comme cela a été prouvé pour ^{7}Li, ^{23}Na et ^{87}Rb.

Tout d'abord, il a été mis en évidence l'existence d'une résonance à énergie nulle [Arndt et al., 1997], due à l'existence soit d'un niveau "virtuel", soit d'un véritable niveau lié proche du continuum du potentiel triplet. Dans les deux cas, cette résonance donne naissance à une longueur de diffusion (a) exceptionnellement grande en valeur absolue. Une borne inférieure de la valeur absolue de cette longueur de diffusion a été donnée, $|a_T| > 260$ a$_0$, bien plus grande que celle d'atomes alcalins doublement polarisés dont la condensation avait déjà été obtenue : 110 a$_0$ pour ^{87}Rb [Boesten et al., 1997], -27 a$_0$ pour ^{7}Li [Abraham et al., 1995a] et 85 a$_0$ pour ^{23}Na [Tiesinga et al., 1996a].

Deuxièmement, ils ont observé [Söding et al., 1998, Arlt et al., 1998] un taux de collisions inélastiques à deux corps ($\sim 10^{-12}$ cm^3 s^{-1}) près de trois ordres de grandeurs plus grand que celui des autres alcalins et que celui prédit théoriquement pour le césium [Tiesinga et al., 1992, Tiesinga et al., 1993]. Le mécanisme de pertes inélastiques prépondérant semblait correspondre au basculement d'un ou des deux atomes en collision dans l'autre niveau hyperfin $f = 3$. Après une telle collision, les atomes partagent l'énergie libérée par le changement d'état hyperfin, soit $\Delta E = k_B \times 0,44$ mK si un seul atome bascule, ou $2\Delta E$ si les deux basculent. Cette énergie, convertie en énergie cinétique, est bien plus grande que la profondeur du piège magnétique (~ 1 mK) et suffit donc pour que les deux atomes s'en échappent.

Deux raisons ont été avancées pour expliquer ce taux de collisions exceptionnellement élevé :
– Pour une grande longueur de diffusion, la probabilité d'occupation à faible distance de deux atomes de faible énergie entrant en collision est largement augmentée en comparaison de celle correspondant à une plus petite valeur de $|a|$ [Dalibard, 1998]. De manière équivalente, deux atomes entrant en collision dans ce régime passent plus de temps au voisinage l'un de l'autre, et augmentent ainsi sensiblement leur probabilité d'effectuer une collision inélastique.
– D'autre part, en plus de l'interaction dipôle-dipôle, il s'est avéré que le terme spin-spin lié au second ordre du couplage spin-orbite était beaucoup plus important que prévu. Des calculs [Kokkelmans et al., 1998, Leo et al., 1998] menés à la suite de ces travaux et tenant compte de la résonance à énergie nulle et du couplage spin-orbite au second ordre ont confirmé les taux de collisions inélastiques mesurés. Dans le cas du ^{87}Rb, les contributions de l'interaction magnétique dipôle-dipôle et du couplage spin-orbite se compensent (même amplitude mais signe opposé), ce qui explique les taux de relaxation faibles pour l'état triplet de cet atome [Leo et al., 1998].

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Il semblait donc impossible d'atteindre la condensation pour un gaz de césium polarisé dans l'état $|f = 4, m_f = 4\rangle$. La densité dans l'espace des phases maximales obtenues était de l'ordre de 10^{-5}, pour une température finale de 4 μK [Söding et al., 1998].

Etat $|f = 3, m_f = -3\rangle$: La condensation des atomes dans l'état $|f = 4, m_f = 4\rangle$ s'avérant un échec, les deux équipes se sont penchées sur le cas d'atomes polarisés dans l'état $|f = 3, m_f = -3\rangle$ [Guéry-Odelin et al., 1998b, Guéry-Odelin et al., 1998a, Hopkins et al., 2000], piégeables magnétiquement et rendant les transitions d'échange impossibles énergétiquement.

Là encore, les taux de collisions inélastiques mesurés ($\sim 10^{-13}$ cm^3 s^{-1}) sont plus grands par au moins deux ordres de grandeurs que les taux des alcalins plus légers comme le ^{87}Rb ou ^{23}Na. Les processus de collisions rendus responsables des taux observés sont un basculement des atomes de l'état $|f = 3, m_f = -3\rangle$ vers l'état $|f = 3, m_f = -2\rangle$, également confinés par le piège magnétique [Guéry-Odelin et al., 1998a]. L'énergie libérée par ces collisions ne suffit pas à vider le piège, mais contribue à un phénomène de chauffage qui se répartit sur l'ensemble du gaz. L'énergie libérée par collision est de l'ordre de $\mu_B B/4$ lorsqu'un seul atome bascule et de $\mu_B B/2$ lorsque les deux se retrouvent dans l'état $|f = 3, m_f = -2\rangle$.

Comme pour le Cs dans $|f = 4, m_f = 4\rangle$, l'origine de ces grandes valeurs était liée aux grandes longueurs de diffusion dans l'onde s. Une analyse quantitative de l'évaporation les a conduit à déterminer une longueur de diffusion $|a_{3,-3}| \leq 600$ a$_0$, alors qu'elle est de 10 a$_0$ pour le ^{87}Rb et de 6 a$_0$ pour le ^{23}Na. De plus, le terme spin-orbite du second ordre joue, là encore, un rôle important pour expliquer les taux exceptionnellement élevés.
Il est à noter qu'une résonance de Feshbach pour les atomes dans l'état $f = 3$ a été prédite aux alentours de $B = 10$ G par [Kokkelmans et al., 1998], ce qui pourrait expliquer les grandes longueurs de diffusion mesurées et donc des taux de collisions considérables.

L'équipe du laboratoire Kastler Brossel a pu refroidir les atomes polarisés dans $|f = 3, m_f = -3\rangle$ à une température de l'ordre de 80 nK, et atteindre une densité dans l'espace des phases de l'ordre de 3×10^{-2} [Guéry-Odelin et al., 1998b]. Le seuil de dégénérescence quantique n'a jamais pu être franchi.
Au vu de tous ces résultats, l'utilisation de la technique de piègeage magnétique s'avère être un échec pour réaliser la condensation de Bose-Einstein avec des atomes de césium. Pour s'affranchir de ces processus inélastiques, complètement rédhibitoires pour le régime de dégénérescence quantique, la solution consiste à piéger les atomes dans l'état Zeeman de plus basse énergie $|f = 3, m_f = +3\rangle$, sur lequel aucune transition dépolarisante n'est possible à très basse énergie. Cependant, les atomes polarisés dans cet état ($m_f g_f < 0$) ne peuvent être piégés magnétiquement. Il a donc fallu envisager un autre type de piège conservatif qui utilise la force dipolaire optique, avec laquelle nous sommes capables de piéger n'importe quel atome quel que soit l'état interne dans lequel il se trouve.
Nous allons, dans un premier temps, présenter l'expérience avec laquelle R. Grimm a pu obtenir le premier condensat d'atomes de césium [Weber et al., 2003a], en les confinant dans un piège tout optique [2]. Nous décrirons ensuite la solution que nous avions envisagée, de piéger les atomes polarisés dans l'état $|f = 3, m_f = +3\rangle$ à l'aide d'un piège mixte optique (confinement

[2] Une force magnétique est également utilisée pour faire léviter les atomes, sans jouer un rôle de piégeage à proprement parler.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

radial) et magnétique[3] (confinement vertical).

Condensation de Bose-Eintein avec l'état $|f = 3, m_f = +3\rangle$: La longueur de diffusion associée à l'état $|f = 3, m_f = +3\rangle$ s'est révélée, suite au travail théorique de [Kokkelmans et al., 1998], très grande et négative (environ -3000 a_0 à champ nul). Or son signe est d'une grande importance dans le contexte de la condensation, car il détermine la nature des interactions au sein du condensat. Si la longueur de diffusion est positive, les interactions sont répulsives et le condensat est stable. Si au contraire elle est négative, les interactions sont attractives. Le condensat est alors instable dès que le nombre d'atomes excède $0,67\sqrt{\hbar/m\omega}/|a|$, où ω est la pulsation du piège, m la masse de l'atome, et a la longueur de diffusion. A partir de cette valeur, les forces répulsives dues à l'énergie cinétique des atomes deviennent plus faibles que les interactions attractives entre atomes ; le condensat s'effondre alors sur lui-même [Sackett et al., 1998, Roberts et al., 2001].
Les résultats expérimentaux obtenus à Stanford, par l'équipe de S. Chu [Vuletic et al., 1999, Chin et al., 2000], montrent que, par application d'un champ magnétique supérieur à $\approx$ 17 G, la longueur de diffusion de l'état $|f = 3, m_f = +3\rangle$ est rendue positive, ce qui permet l'existence d'un condensat stable dans cette gamme de champ magnétique.

De plus, le niveau $|f = 3, m_f = +3\rangle$ étant stable vis-à-vis des collisions inélastiques, la présence de résonances de Feshbach n'affecte que le taux de collisions élastiques. La possibilité de modifier ce taux de collision à l'aide d'un champ magnétique s'est avérée être cruciale pour réaliser un processus de refroidissement évaporatif optique efficace et atteindre la condensation de Bose-Einstein.

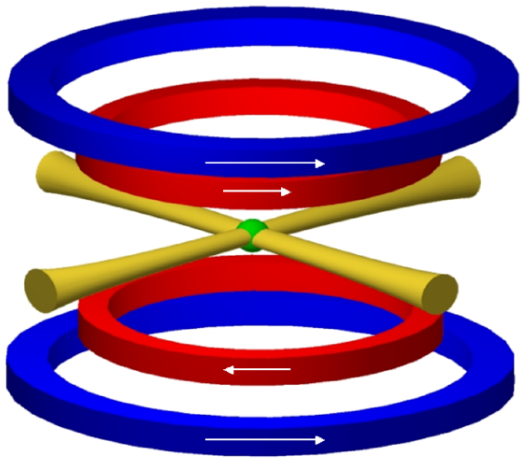

FIG. 2.6 – Schéma décrivant le dispositif utilisé par l'équipe de R. Grimm : en jaune, les deux faisceaux lasers CO_2 ; en rouge, la paire de bobines en configuration anti-Helmoltz, assurant une lévitation magnétique ; en bleu, celle en configuration Helmoltz, produisant un champ magnétique homogène. La figure est extraite de [Weber et al., 2003b].

[3] Dans notre expérience, la force magnétique joue un rôle de piégeage à proprement parler, puisqu'elle exerce une force de rappel vertical vers le centre du piège quelle que soit la position des atomes.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

L'équipe de R. Grimm, à Innsbruck (Autriche), parvint en octobre 2002 à condenser le césium dans l'état $|f = 3, m_f = +3\rangle$ [Weber et al., 2003a]. Le piège conservatif utilisé dans cette expérience est un piège optique tridimensionnel (voir Fig. 2.6) obtenu à l'intersection de deux faisceaux laser CO_2 ($\lambda = 10,6$ μm) de 100 W de puissance chacun. Un tel piège constitue un QUEST (voir chapitre 1) possédant un volume effectif de piégeage de l'ordre d'1 mm^3, ce qui permet d'optimiser le chargement du piège, plutôt que d'obtenir un fort confinement. Afin de s'affranchir de la gravité, une paire de bobines placées en configuration anti-Helmoltz (en rouge sur la Fig. 2.6) crée un gradient de champ magnétique de $\approx 31,3$ G/cm qui compense la force de pesanteur uniquement pour des atomes polarisés dans l'état $|f = 3, m_f = +3\rangle$. Les atomes subissent une lévitation magnétique sur la zone de piégeage et seule la force dipolaire les maintient confinés suivant l'axe vertical. Une paire de bobines en configuration Helmoltz (en bleu sur la Fig. 2.6), produisant un champ magnétique homogène, a été ajoutée au dispositif afin d'ajuster la longueur de diffusion. La variation de la valeur du champ magnétique modifie seulement les propriétés collisionnelles des atomes sans modifier les paramètres de piégeage.

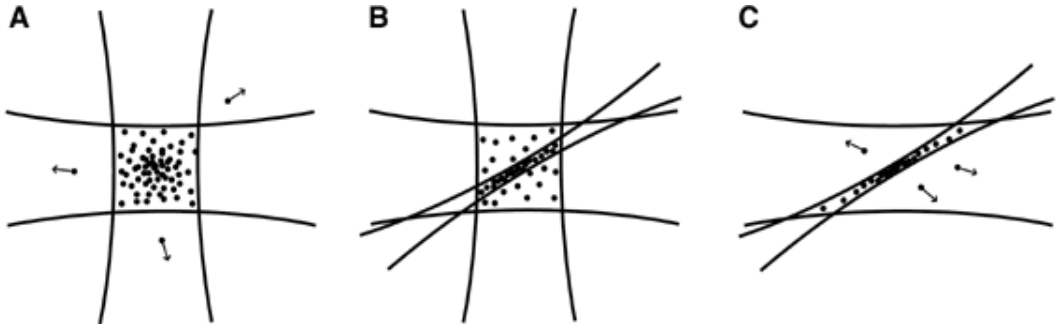

FIG. 2.7 – Illustration du processus de refroidissement évaporatif dans l'expérience de R. Grimm. A) Phase de 10 s : évaporation naturelle dans le piège optique à 75 G ($a = 1200$ a_0). B) Phase de 5 s : mise en place d'un faisceau issu d'un laser fibré Yb (1064 nm), fortement focalisé sur le piège ($B = 23$ G, $a = 300$ a_0). C) Phase de 17 s : évaporation forcée en diminuant la puissance du laser à 1064 nm. La figure est extraite de [Weber et al., 2003a].

La séquence expérimentale adoptée pour atteindre la condensation est illustrée sur la Fig. 2.7[4]. Dans un premier temps, le piège magnéto-optique est chargé par un jet atomique ralenti par un ralentisseur Zeeman.
Une séquence de Refroidissement Raman par bandes latérales [Treutlein et al., 2001] est ensuite réalisée dans un réseau optique 3D, puis les atomes sont transférés dans le piège optique conservatif. Aux alentours de 10^7 atomes sont transférés et une densité dans l'espace des phases de 10^{-4} est obtenue.
Pendant environ une dizaine de secondes, les atomes vont s'évaporer naturellement (voir Fig. 2.7A). Au cours de cette période, la longueur de diffusion est ajustée de façon à maximiser le taux de collisions élastiques au sein du piège ($a = 1200$ a0 à 75 Gauss). Les atomes sont au nombre de 2×10^6 à la température $T \approx 1$ μK.
Au cours des 5 secondes suivantes (voir Fig. 2.7B), un faisceau laser à 1064 nm (laser Yb fibré) est focalisé sur 30 μm au centre du piège. Le but de ce laser est de réaliser un confinement supplémentaire et ainsi d'augmenter fortement la densité atomique au centre du piège. Afin de supprimer les pertes à trois corps[5] [Weber et al., 2003c], la valeur du champ magnétique est diminuée à 23 G ($a = 300$ a_0).

[5]A haute densité atomique et pour des longueurs de diffusion élevées, la perte d'atomes induite par les

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Pendant la phase finale, un des deux faisceaux laser CO_2 est éteint (voir Fig. 2.7C). Le piège est alors réalisé à l'intersection du faisceau laser à 1064 nm et du faisceau laser CO_2 restant. La densité d'atomes, au nombre de $\approx 3 \times 10^5$, est de l'ordre de 10^{12} cm^{-3}, ce qui conduit à une densité dans l'espace des phases d'environ 10^{-2}. Les deux ordres de grandeurs pour atteindre le seuil de condensation sont obtenus par un refroidissement évaporatif optique, en diminuant la puissance du laser à 1064 nm de 90 mW jusqu'à quelques milliwatts en 17 s environ. Un condensat pur composé de 16000 atomes à une densité maximale de 10^{13} cm^{-3} a été observé. Sa durée de vie, d'environ 15 s, était principalement limitée par les pertes dues aux collisions à trois corps.

A ma connaissance deux condensats de césium ont été réalisés à ce jour, les deux obtenus dans l'équipe de R. Grimm à Innsbruck [Weber et al., 2003a, Rychtarik et al., 2004]. Le deuxième est un condensat de Bose-Einstein à deux dimensions, créé et piégé optiquement quelques microns au dessus d'une surface diélectrique. Le seuil de condensation est atteint également par un processus d'évaporation optique.
Nous allons décrire dans la section suivante le principe et le dispositif expérimental que nous avons choisi pour tenter d'atteindre le régime de dégénérescence quantique. Notre dispositif présente des similitudes avec celui de R. Grimm, décrit précédemment. Les deux grandes différences résident, premièrement, dans le type de confinement tout optique des atomes dans l'expérience autrichienne comparé au confinement mixte optique (plan horizontal) et magnétique (l'axe vertical) dans notre expérience. Deuxièmement, le piégeage optique que nous réalisons est effectué à l'aide d'un seul laser Nd:YAG à 1064 nm, alors que le groupe de R. Grimm utilise une combinaison de lasers CO_2 à 10600 nm et un laser Yb à 1064 nm.

collisions à trois corps devient de plus en plus probable. A la suite d'une de ces collisions, deux atomes forment une molécule alors que le troisième assure la conservation de l'énergie en prenant le surplus d'énergie et d'impulsion libéré par la formation de la molécule.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

2.3 Présentation du piège hybride

On pourra trouver une description détaillée du principe de piégeage et du dispositif expérimental dans les thèses de N. Hoang [Hoang, 2003] et de S. Boussen [Boussen, 2002], mais également dans les articles [Boussen et al., 2004, Hoang et al., 2005].

2.3.1 Principe du piège

Le piège hybride repose sur l'utilisation de deux types de forces : la force magnétique et la force optique dipolaire (voir Fig. 2.8).

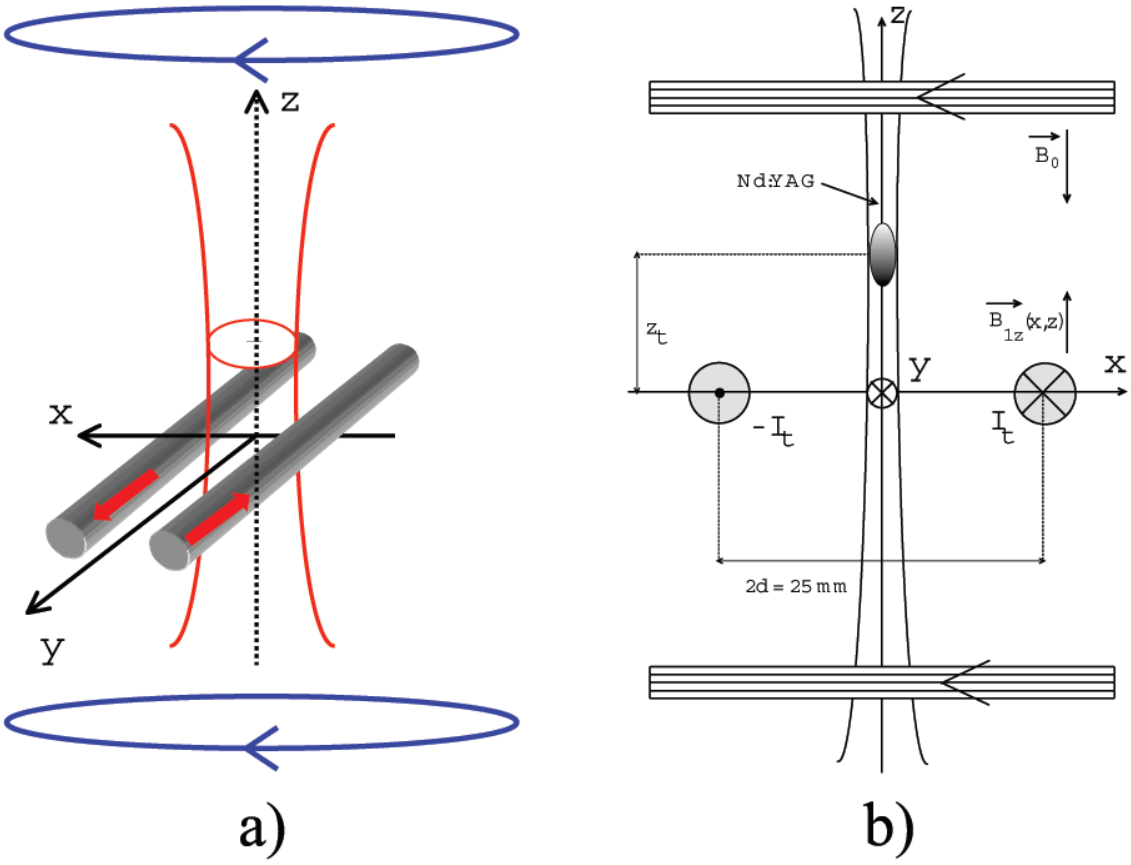

FIG. 2.8 – Schéma représentant le piège hybride. a) En gris, une paire de barres (bobine très allongée), parcourue par un courant I_t, produit une force magnétique responsable du confinement vertical (champ magnétique inhomogène $\boldsymbol{B_1}$). En rouge, un faisceau laser Nd:YAG ($\lambda = 1064$ nm) engendre une force dipolaire radiale, conduisant au confinement dans le plan horizontal. En bleu, une paire de bobines en configuration Helmoltz produit une champ magnétique homogène $\boldsymbol{B_0}$ dont la variation permet de modifier la longueur de diffusion des atomes et donc leurs propriétés collisionnelles et ce sans changer la fréquence ni la position de piégeage (voir Fig. 2.9). b) Schéma en coupe du piège hybride dans le plan (Oxz).

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Piégeage magnétique 1D

Le confinement vertical des atomes, polarisés dans l'état $|f = 3, m_f = +3\rangle$, est obtenu à l'aide d'un champ magnétique inhomogène $\boldsymbol{B_1}$. Ce dernier est créé par une bobine de forme allongée suivant une direction horizontale (Oy) (longueur = 100 mm), située environ 15 mm sous la position de piégeage (voir Fig. 2.8). Une telle bobine peut être vue comme une paire de barres parallèles infinie dans la direction (Oy), de rayon 8 mm, distantes de $2d = 25$ mm suivant l'axe (Ox) et parcourue chacune par un courant $I_t = 300$ A [6] de sens opposé. Ce dispositif simple nous permettrait de confiner verticalement les atomes dans une région proche du centre de la bobine. Ce champ magnétique inhomogène est combiné à un autre champ magnétique, cette fois homogène, $\boldsymbol{B_0}$, produit par une paire de bobines en position Helmoltz. L'intérêt de ce champ est double. Il permet, d'une part, de déplacer la position de piégeage 15 mm au dessus de la bobine et, d'autre part, la variation de ce champ permet de modifier la longueur de diffusion des atomes par le biais des résonances de Feshbach, sans changer la fréquence, ni la position du piège magnétique (voir la Fig. 2.9). La profondeur du potentiel magnétique est assez grande en atteignant aux alentours de $k_B \times 700$ μK, alors que le confinement reste assez faible puisque la fréquence d'oscillation est d'environ 4,6 Hz.

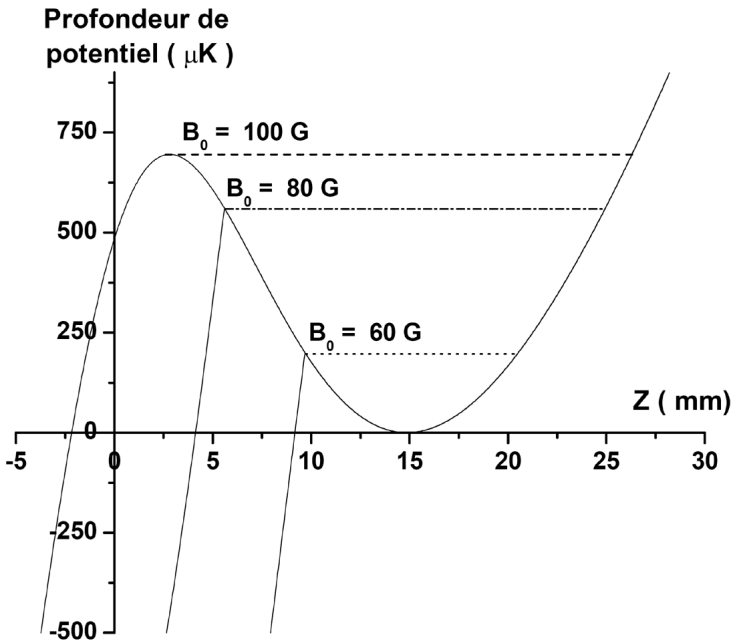

FIG. 2.9 – Potentiel de piégeage vertical (en tenant compte de la gravité) produit par les deux barres, calculé pour différentes valeurs du champ magnétique homogène B_0. On peut remarquer que la position et la fréquence de piégeage ne sont pas affectées par les variations de B_0. Seule la profondeur du potentiel est modifiée par la valeur de ce champ magnétique.

Piégeage optique 2D

Le confinement des atomes dans le plan horizontal (Oxy) est réalisé à l'aide d'un faisceau lumineux vertical issu d'un laser Nd:YAG émettant à 1064 nm (voir Fig. 2.8). Sa fréquence étant très inférieure aux transitions dipolaires électriques de l'atome de césium dans l'état

[6] I_t est le produit du nombre de spires $N_s = 50$ par le courant traversant chaque spire $I = 6$ A.

$6s_{1/2}$, les atomes, dans leur état fondamental, sont attirés vers les régions de forte intensité lumineuse[7]. Le laser, d'une puissance d'environ 15 W, est focalisé sur un waist d'environ 260 μm de façon à maximiser le nombre d'atomes capturés tout en gardant une profondeur de potentiel assez élevée de l'ordre de 33 μK. La fréquence radiale du piège dipolaire est d'environ 56 Hz.

Piégeage optique et magnétique 3D

Le potentiel total ressenti par un atome dans l'état $|f = 3, m_f = +3\rangle$ et résultant de l'action combinée de la force magnétique verticale et de la force dipolaire radiale est représenté sur la Fig. 2.10). On peut remarquer que le faisceau laser permet un confinement radial bien plus fort que la force magnétique qui produit un potentiel vertical assez lâche. Cette caractéristique de notre piège hybride nous mène à l'obtention d'un échantillon atomique piégé en forme de cigare, très allongé suivant la direction verticale. Pour une température de 10 μK et dans les conditions d'un équilibre thermique, la dimension verticale du nuage doit être d'environ 900 μm, pour un rayon de 70 μm.

2.3.2 Dispositif expérimental

Présentation globale

Le schéma global du dispositif expérimental est donné sur la Fig. 2.11. C'est un montage ultravide à deux enceintes, l'une placée au-dessus de l'autre. Dans l'enceinte supérieure (cellule 1), un piège magnéto-optique (MOT1) est réalisé et chargé à partir d'une vapeur atomique de césium, dont la source, non représentée, se trouve dans un quesot en verre, à proximité du MOT1. Le flux d'atomes pénétrant dans l'enceinte est régulé grâce à une vanne. L'enceinte du haut est constituée d'un bloc en acier inoxydable, de forme octaédrique, comportant huit hublots de 64 mm dont six servent à faire passer les faisceaux de piégeage, tandis que les deux derniers servent, pour l'un, à recueillir le signal de fluorescence et, pour l'autre, à faire passer le laser Nd :YAG. Il existe également deux autres hublots permettant le passage d'un faisceau sonde servant à réaliser des mesures de temps de vol sur le MOT1.

Une fois refroidis dans le MOT1, les atomes sont transférés par gravité dans la cellule inférieure (cellule 2), où ils sont préparés en vue de la condensation. Cette cellule est une simple cellule en verre, de 5 cm de longueur et terminée par un hublot pour laisser passer le laser Nd:YAG et le faisceau laser chargé de polariser les atomes dans l'état $|f = 3, m_f = +3\rangle$. La cellule présente une section carrée de 1 cm de côté. C'est dans cette cellule que débutent les différentes étapes devant mener à la condensation. Les atomes, ayant acquis de l'énergie au cours de leur chute, sont recapturés par un deuxième piège-magnéto optique (MOT2), avant d'être transférés dans le piège hybride, situé à la même position.

Système de vide

Les deux enceintes, placées l'une au-dessus de l'autre, sont séparées par un tube métallique de 10 cm de longueur et de diamètre légèrement inférieur à 7 mm, dont le rôle est de maintenir un vide différentiel entre les deux chambres. De plus, une vanne intercalée entre les deux enceintes permet d'isoler les deux enceintes l'une de l'autre.

[7] La description du confinement dipolaire des atomes de césium est faite en détail dans le chapitre 1.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

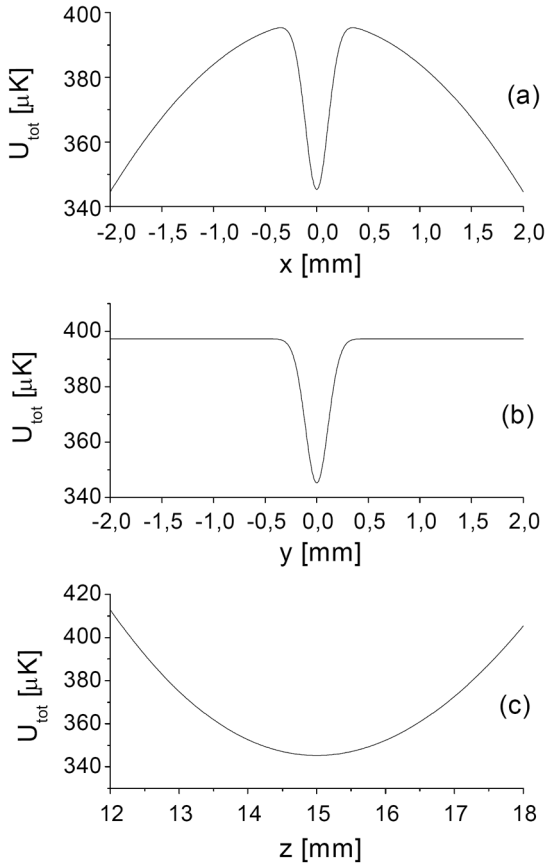

FIG. 2.10 – Potentiel total calculé $U_{tot}(x, y, z)$. a) $U_{tot}(x, 0, z_t)$ en fonction de x à la position de piégeage $z = z_t$. La partie répulsive du potentiel est due à l'existence d'une force magnétique expulsante suivant (Ox). b) $U_{tot}(0, y, z_t)$ en fonction de y à la position de piégeage. La profondeur de potentiel dans les directions x et y vaut environ $k_B \times 50$ μK et la fréquence du piège $\omega_r/2\pi \approx 56$ Hz. c) $U_{tot}(0, 0, z)$ en fonction de z. La position de piégeage est à $z_t = 15$ mm et la fréquence vaut $\omega_z/2\pi \approx 4,5$ Hz.

L'enceinte du haut est pompée par une pompe ionique Varian StarCell de 45 l/s. Dans des conditions optimales, c'est-à-dire en l'absence de vapeur de césium, on peut obtenir une pression de l'ordre de 10^{-10} Torr, qui se détériore pour atteindre 10^{-9} Torr une fois l'enceinte saturée de césium.
L'enceinte du bas est pompée par une pompe ionique Riber de 140 l/s, à laquelle on peut adjoindre un système de sublimation titane, qui augmente la capacité de pompage à une valeur de 1000 l/s. En l'absence complète de césium, le vide est censé être inférieur à 10^{-10} Torr. Pour avoir une estimation réaliste du vide qui règne dans la cellule, on effectue une mesure de durée de vie du MOT2 qui, dans le meilleur des cas, atteint 30 s.

Montage optique

Sur la Fig. 2.12 sont représentées les différentes transitions optiques utilisées dans le montage expérimental. Nous allons décrire dans la suite les différents lasers utilisés dans l'expérience.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

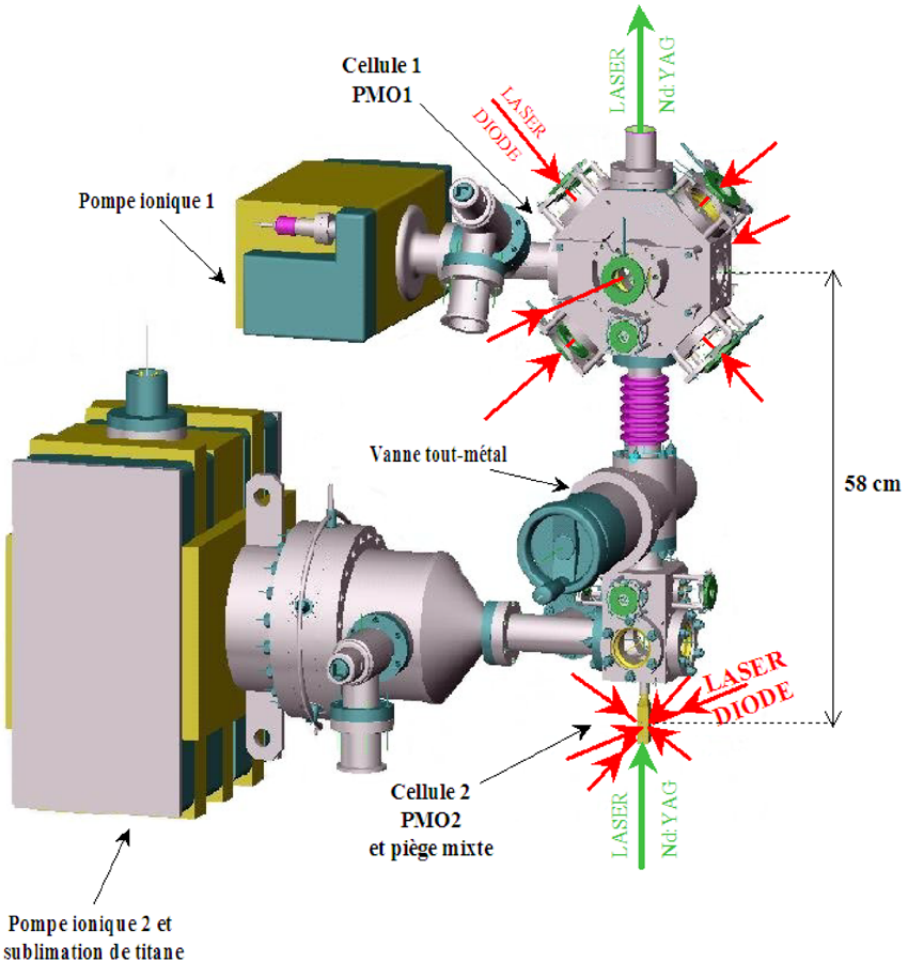

FIG. 2.11 – Montage ultra-vide à deux enceintes utilisé dans l'expérience.

Lasers du MOT : Le refroidissement et le piégeage des atomes dans les deux pièges magnéto-optiques sont effectués à l'aide de trois diodes laser montées dans une configuration maître-esclave : une diode laser DBR (SDL 5712-H1), dite maître, de largeur spectrale $\approx$ 3 MHz, est asservie sur la raie de croisement $6s_{1/2}(f = 4) \longrightarrow 6p_{3/2}(f' = 4) \times 6s_{1/2}(f = 4) \longrightarrow 6p_{3/2}(f' = 5)$ grâce à un montage d'absorption saturée couplé à une détection synchrone. Cette diode injecte deux diodes laser (SDL 5422-H1) de puissance 150 mW environ, dites esclaves. Chaque diode génère les faisceaux pièges d'un MOT. La lumière laser issue de chacune de ces diodes esclaves est partagée en six faisceaux qui ont chacun une intensité et une fréquence que l'on peut faire varier, par exemple au cours d'une phase de mélasse optique. Au cours de l'expérience, l'intensité et la fréquence des lasers des deux MOT varient respectivement entre 7 et 3 mW/cm^2 et entre -3Γ et -10Γ ; $\Gamma/2\pi \approx 5$ MHz est la largeur naturelle de la transition $6s_{1/2}(f = 4) \longrightarrow 6p_{3/2}(f' = 5)$. Le contrôle de la fréquence et de l'intensité des faisceaux piégeants est assuré par un modulateur acousto-optique dont le générateur de fréquence est de type VCO.

Les deux faisceaux repompeurs sont issus d'une diode laser DBR (SDL 5702-H1) de puissance 70 mW environ, et asservie directement sur la transition $6s_{1/2}(f = 3) \longrightarrow 6p_{3/2}(f' = 4)$.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

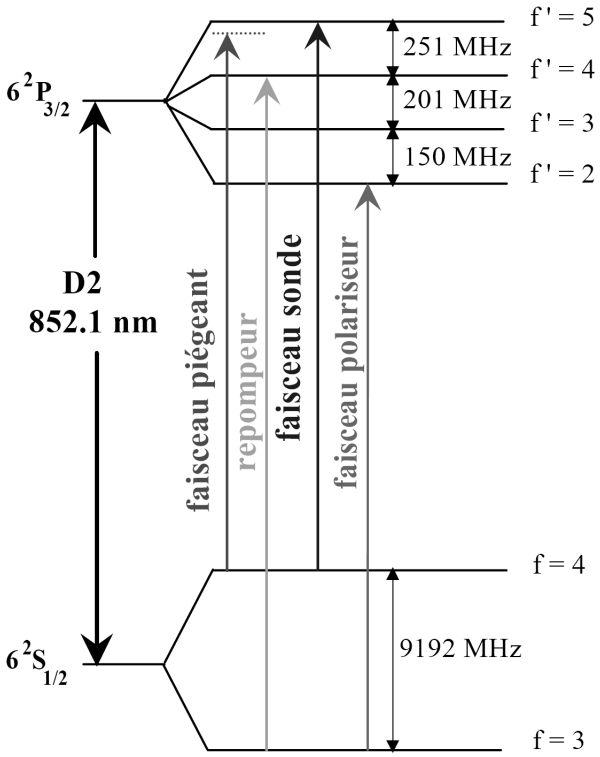

FIG. 2.12 – Faisceaux laser utilisés pour le piège magnéto-optique. Les faisceaux sondes et d'imagerie servent à détecter et à caractériser l'échantillon d'atomes froids. Le faisceau polariseur sert au pompage optique des atomes dans le sous-état Zeeman $|f = 3, m_f = +3\rangle$.

Le piégeage des atomes dans les pièges magnéto-optiques fait donc appel à deux fréquences optiques (voir Fig. 2.12) : une légèrement désaccordée par rapport à la transition $6s_{1/2}(f = 4) \longrightarrow 6p_{3/2}(f' = 5)$ (transition des faisceaux pièges) et l'autre en résonance avec la transition $6s_{1/2}(f = 3) \longrightarrow 6p_{3/2}(f' = 4)$ (transition du faisceau repompeur) permettant de recycler les atomes excités par les lasers de piégeage vers le niveau $f' = 4$ et se désexcitant vers le niveau $f = 3$.

Laser de polarisation : Deux faisceaux laser, résonant avec la transition $6s_{1/2}(f = 3) \longrightarrow 6p_{3/2}(f' = 2)$, permettent de polariser les atomes dans le sous-niveau Zeeman de l'état fondamental $f = 3, m_f = +3\rangle$.

La Fig. 2.13 présente la séquence temporelle utilisée pour polariser les atomes avant leur transfert dans le piège hybride. Pour ce faire, les atomes doivent se trouver préalablement dans le niveau hyperfin du fondamental $f = 3$. Pour réaliser une telle situation, on éteint le faisceau repompeur environ 500 μs avant l'extinction des faisceaux de piégeage du MOT2, ce qui a pour effet de dépomper tous les atomes du niveau hyperfin $|6s_{1/2}, f = 4\rangle$ vers l'autre niveau hyperfin $|6s_{1/2}, f = 3\rangle$. Les atomes sont ensuite pompés optiquement dans l'état Zeeman $|f = 3, m_f = +3\rangle$ en présence d'un champ magnétique homogène de quelques Gauss, produit par la paire de bobines en configuration Helmoltz.
Un faisceau laser est prélevé du faisceau asservi sur la transition $6s_{1/2}(f = 3) \longrightarrow 6p_{3/2}(f' = 4)$ (transition du repompeur), puis traverse un modulateur acousto-optique. Un double passage dans ce dernier permet de générer un faisceau laser en résonance avec la transition

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

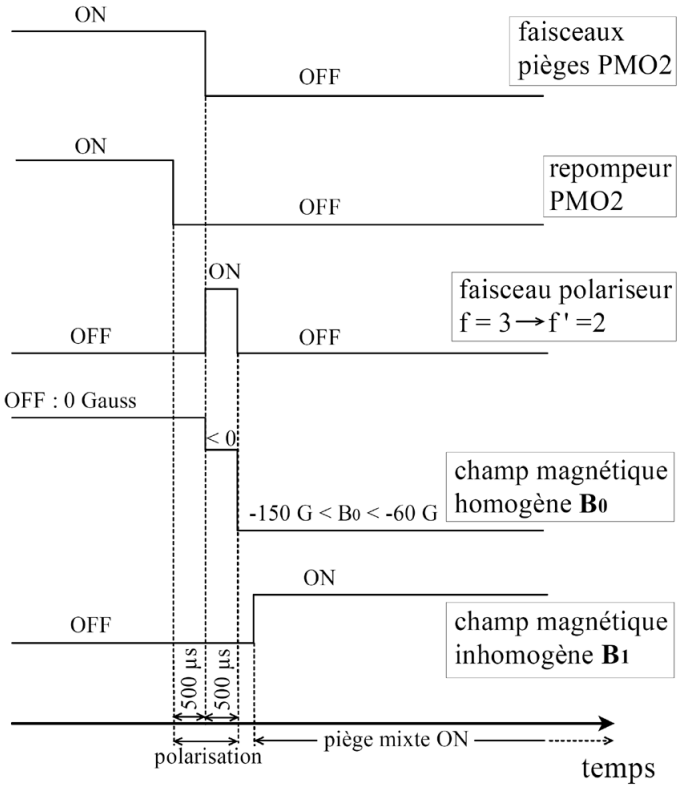

FIG. 2.13 – Séquence temporelle de polarisation des atomes dans l'état $|f = 3, m_f = +3\rangle$.

$6s_{1/2}(f = 3) \longrightarrow 6p_{3/2}(f' = 2)$. Le faisceau est ensuite séparé en deux : on impose à l'un une polarisation σ^+, qui permet l'accumulation des atomes dans les états $|f = 3, m_f = +2\rangle$ et $|f = 3, m_f = +3\rangle$ (voir Fig. 2.14), et à l'autre une polarisation π, qui permet de pomper les atomes de l'état $|f = 3, m_f = +2\rangle$ vers l'état $|f = 3, m_f = +3\rangle$ (voir Fig. 2.14). Une fois polarisés dans l'état $|f = 3, m_f = +3\rangle$, les atomes ne sont plus excités par le faisceau polariseur : ils sont dans un état noir.

FIG. 2.14 – Processus de pompage optique vers l'état $|f = 3, m_f = +3\rangle$. La lumière polarisée σ^+ permet d'accumuler les atomes dans les états $|f = 3, m_f = +2, +3\rangle$. Un second faisceau laser polarisé π permet de ramener les atomes de l'état $|f = 3, m_f = +2\rangle$ vers $|f = 3, m_f = +3\rangle$.

Laser de confinement dipolaire : Le laser permettant le confinement horizontal des atomes dans le piège conservatif hybride est un laser Nd:YAG Spectron Laser System pompé par lampe flash et d'une puissance maximum de 20 W.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Système d'imagerie

Imagerie par fluorescence : La technique principale d'imagerie que l'on a adoptée consiste à recueillir sur un photodétecteur le signal de fluorescence émis par le nuage atomique, au moyen d'une lentille ou d'un objectif. Cette méthode convient parfaitement à l'observation d'un nuage confiné dans un piège magnéto-optique, car les atomes piégés sont toujours éclairés et émettent en permanence un signal d'émission spontanée. Ceci nous permet d'avoir accès aux caractéristiques principales du nuage atomique, comme le nombre d'atomes, sa taille et sa densité.

Dans le cas où l'on veut caractériser le nuage atomique confiné dans notre piège conservatif, les atomes, initialement polarisés dans le sous-niveau Zeeman $|6s_{1/2}, f = 3, m_f = +3\rangle$, sont pompés dans l'état $|6s_{1/2}, f = 4\rangle$ en allumant le laser repompeur 1 ms avant de faire l'image. L'échantillon est ensuite éclairé par un flash de lumière très proche de la résonance $6s_{1/2}(f = 4) \longrightarrow 6p_{3/2}(f' = 5)$. Ce flash lumineux de 2 ms est obtenu par les six faisceaux de piégeage du MOT, dont on fixe le désaccord à -1Γ pour récolter un maximum de fluorescence. L'irradiation du nuage atomique engendre un chauffage non négligeable au sein de l'échantillon. Avec un tel chauffage, les mesures concernant la taille du nuage ne peuvent pas être exploitées de manière quantitative. L'imagerie par absorption que nous avons mise en place permet de résoudre ce problème.

Nous disposons de types de photodétecteurs pour récolter la fluorescence émise par les atomes : une photodiode et une caméra CCD.
La photodiode est destinée à mesurer la fluorescence émise par le MOT1 et ainsi à déterminer le nombre d'atomes en mesure d'être transférés vers le MOT2.
La caméra CCD est une caméra SONY (série XC-8500CE) de matrice 782 $\times$ 582 pixels, présentant un rapport signal sur bruit de 58 dB et une sensibilité de 400 lux. Elle est destinée à la détection des atomes du MOT2 et du piège hybride.

Imagerie par absorption : Un dispositif d'imagerie par absorption a également été mis en place. L'ombre du nuage illuminé par une impulsion lumineuse de 50 μs est imagée sur une caméra ANDOR Technology de très grande sensibilité, possédant un capteur CCD de type MARCONI CCD57-10. Le faisceau d'imagerie, prélevé en partie de la diode maître, est résonant avec la transition $6s_{1/2}(f = 4) \longrightarrow 6p_{3/2}(f' = 5)$. Il est envoyé sur le nuage atomique par l'intermédiaire d'une fibre optique monomode.

Cette technique d'imagerie, mise en place au cours de cette thèse, permet une durée d'irradiation du nuage bien plus courte que dans le cas de l'imagerie par fluorescence. On s'affranchit ainsi de tout effet de chauffage pouvant nuire à la détermination de la taille de l'échantillon atomique confiné dans le piège hybride.
Les résultats que nous présentons dans la suite du manuscrit sont issus de la technique d'imagerie par fluorescence.

2.4 Caractérisation du piège : régime collisionnel

La phase de préparation des atomes avant leur transfert dans le piège hybride est détaillée dans la thèse de [Hoang, 2003] ; nous n'en faisons ici qu'une brève description avant de présenter les caractéristiques du piège hybride issues de l'observation de la durée de vie, de l'oscillation du centre de masse et de la taille du nuage atomique confiné. Nous exposerons également l'influence du champ magnétique homogène sur les propriétés du piège conservatif. Cette étude permet de caractériser le régime collisionnel au sein du piège hybride.

2.4.1 Transfert des atomes vers le piège hybride

Une séquence expérimentale typique est décrite sur la Fig. 2.16. Le premier piège magnéto-optique est chargé en l'espace d'environ une seconde. 15 ms avant de couper le MOT1, une phase de mélasse optique est appliquée de façon à réduire la température des atomes à environ 10 μK. Cette phase de mélasse est nécessaire pour réduire l'expansion du nuage atomique lors de leur chute libre vers le MOT2 ; elle nous permet donc de maximiser le transfert des atomes. Environ 5 % des atomes sont transférés vers le MOT2, qui est chargé après typiquement six lâchers d'atomes.

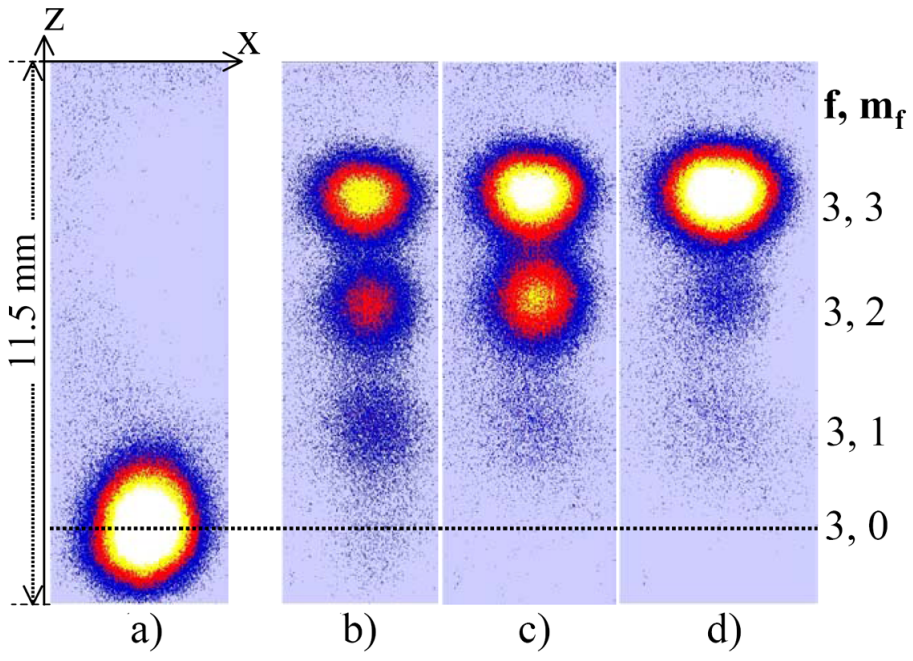

FIG. 2.15 – Efficacité du dispositif de polarisation. En appliquant un fort gradient de champ magnétique (> 70 G/cm) pendant 30 ms, les atomes dans des états Zeeman différents peuvent être séparés spatialement. a) Image du nuage atomique 30 ms après l'extinction du MOT2, en l'absence de gradient de champ magnétique et de faisceau polariseur. b) Sans faisceau polariseur, on observe les atomes dans les états $|f = 3, m_f = +3, +2, +1, 0\rangle$. c) En présence du faisceau σ^+, les atomes sont majoritairement dans les états $|f = 3, m_f = +3, +2\rangle$. d) En présence du faisceau σ^+ et du faisceau π, les atomes sont pompés dans l'état $|f = 3, m_f = +3\rangle$ avec une efficacité d'environ 90 %.

Après cette période de chargement, le nuage est compressé en augmentant le gradient de champ magnétique et le désaccord des faisceaux de piégeage du MOT2. Le champ magnétique

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

est ensuite coupé, puis une courte phase de mélasse optique est appliquée pour réduire la température des atomes en dessous de 7 μK. Les phases de compression et de mélasse ont été ajustées de façon à maximiser le transfert des atomes vers le piège hybride. Après la coupure du MOT2, un champ magnétique homogène vertical d'environ 5 G est appliqué, permettant ainsi de définir un axe de quantification lors du pompage optique des atomes vers l'état $|6s_{1/2}, f = 3, m_f = +3\rangle$. Les faisceaux de polarisation σ^+ (propagation verticale) et π (propagation horizontale) permettent de porter environ 90 % des atomes du MOT2 dans l'état $|6s_{1/2}, f = 3, m_f = +3\rangle$ (voir 2.15). Une fois la phase de pompage optique terminée (durée 500 μs), le champ magnétique de piégeage est appliqué. Pendant toute la séquence de chargement du piège hybride le laser Nd:YAG est allumé en permanence. La présence du laser pendant la phase de chute libre des atomes entre les deux pièges magnéto-optique permet de guider dipolairement les atomes et augmente sensiblement le taux de transfert. Après un temps de piégeage hybride arbitraire, les atomes sont libérés puis imagés.
L'analyse des images prises suite aux séquences de piégeage hybride permet de déterminer les caractéristiques du piège conservatif. La suite du chapitre est consacrée aux résultats expérimentaux obtenus.

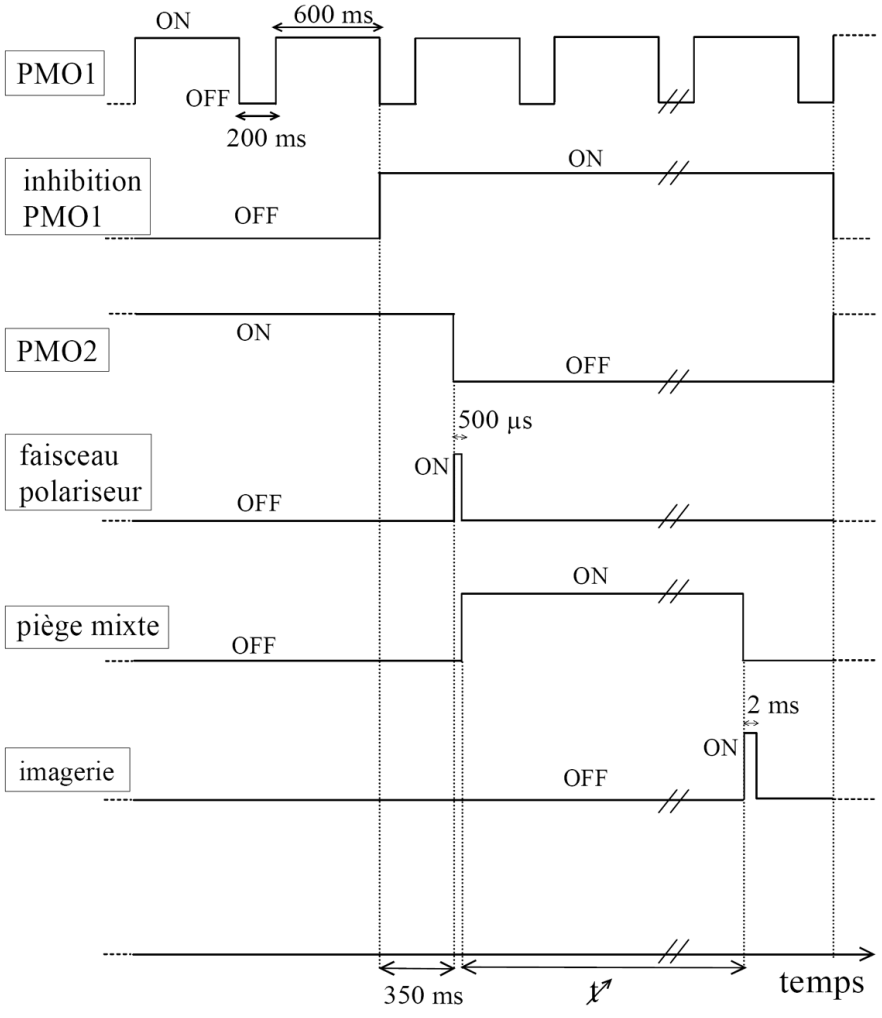

FIG. 2.16 – Séquence temporelle utilisée pour transférer les atomes dans le piège hybride. On prend une image des atomes piégés à l'instant t, compté à partir de l'allumage du piège hybride.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

2.4.2 Durée de vie

Pour étudier la durée de vie du piège hybride, nous avons étudié l'évolution temporelle du nombre d'atomes piégés. La fig. (2.17) représente une courbe de durée de vie du piège hybride à partir de l'instant $t = 0$ qui coïncide au moment à partir duquel le champ magnétique de piégeage est appliqué.

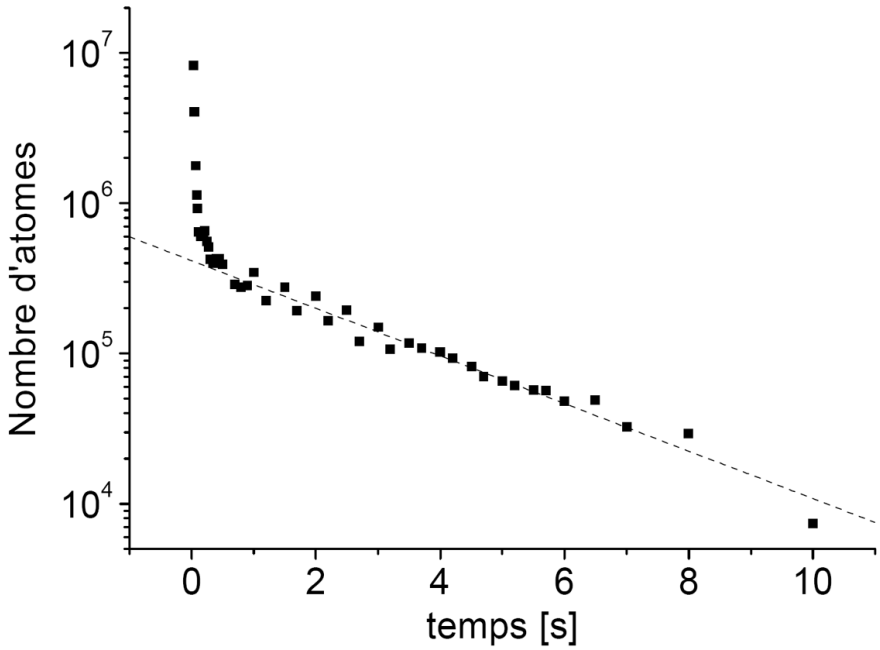

FIG. 2.17 – Evolution temporelle du nombre d'atomes piégés (axe des ordonnées en échelle logarithmique). La droite en pointillés résulte d'un ajustement linéaire réalisé à partir de 2 s environ. La durée de vie obtenue de cet ajustement est d'environ 3,5 s.

Entre 0 et 80 ms, une partie du signal détecté provient d'atomes mal polarisés, se trouvant dans l'état $|6s_{1/2}, f = 3, m_f = +2\rangle$ et d'atomes non piégés par le faisceau Nd:YAG. Au delà de 80 ms, le signal observé témoigne uniquement d'atomes dans l'état $|6s_{1/2}, f = 3, m_f = +3\rangle$ efficacement transférés dans le piège hybride. Ce taux de transfert du MOT2 vers le piège hybride est estimé entre 10 % et 15 %. Le nombre d'atomes efficacement chargés dans le piège hybride avoisine 10^6.

A partir de 300 ms environ, le nombre d'atomes décroît de manière exponentielle suivant la loi $dN/dt = -N/\tau$, où $\tau = 3{,}5$ s représente la durée de vie du piège. Dans ce cas, les pertes d'atomes sont dues à des mécanismes impliquant un seul atome du piège, qui peut être perdu à la suite d'une interaction avec une particule extérieure, ou à cause d'un phénomène de chauffage pouvant provenir des fluctuations des champs magnétiques ou du laser Nd:YAG. Des mesures de températures effectuées par temps de vol, pour des temps de piégeage allant jusqu'à 1 s, n'ont toutefois pas mis en évidence de chauffage sur cette échelle de temps (voir Fig. 2.18).

Parmi les interactions avec une particule non piégée, figurent les collisions entre atomes confinés et atomes du gaz résiduel, et les processus radiatifs dépolarisants (diffusion Raman, voir chapitre 1) au cours desquels un atome du piège absorbe un photon du faisceau Nd:YAG

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

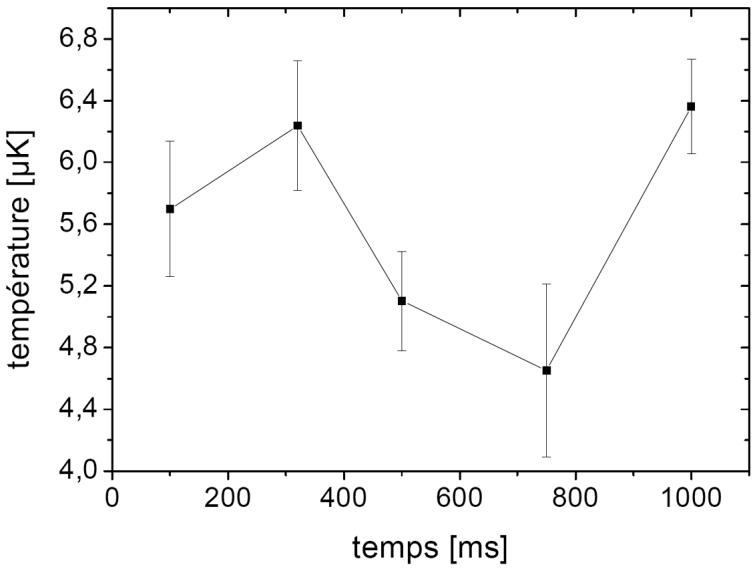

FIG. 2.18 – Evolution temporelle de la température suivant la direction (Ox) entre 100 ms et 1 s.

et en émet un de fréquence différente. A l'issue d'un tel processus, l'atome se retrouve sur un niveau différent de celui de départ, et n'est, par conséquent, plus piégé. Une estimation du taux de diffusion Raman a été obtenue dans la thèse de N. Hoang [Hoang, 2003] pour différentes polarisations du laser Nd:YAG ; les conclusions de ce travail montrent que les processus de dépolarisation Raman ne peuvent pas constituer une limitation aux durées de vie observées.

Au cours d'une collision entre un atome du piège et un atome du gaz résiduel, le transfert d'énergie est très important et la probabilité pour un atome de rester confiné après une telle collision est très faible (profondeur du piège insuffisante). La durée de vie qui en résulte dépend seulement du vide résiduel dans la cellule. Dans un piège magnéto-optique où la profondeur mise en jeu est de l'ordre du kelvin, les collisions avec les atomes du gaz résiduel n'ont pas les mêmes effets : la probabilité pour un atome de rester piégé après une collision avec un atome du gaz résiduel est plus grande dans un MOT que dans un piège conservatif. De plus, un phénomène de recapture de l'atome perdu peut intervenir dans un MOT. Tout ceci pourrait expliquer la différence entre les durées de vie mesurées du MOT2 (≈ 20 s) et du piège hybride ($\approx 3,5$ s).
Nous avons également réalisé des expériences dans lesquelles des atomes dans l'état $|6s_{1/2}, f = 3, m_f = -3\rangle$ sont piégés dans un piège purement magnétique. La durée de vie de ce piège coïncide parfaitement avec celle du piège hybride. La durée de vie du piège purement magnétique en présence ou en l'absence du faisceau laser Nd:YAG (qui ne joue aucun rôle de piégeage) n'est pas modifiée. Ces mesures de durée de vie entreprises dans le piège purement magnétique nous permettent d'écarter le rôle du laser Nd:YAG dans la durée de vie du piège hybride et met en avant celui des collisions avec le gaz résiduel.

2.4.3 Régime collisionnel : oscillations du nuage

En général, tout phénomène d'oscillation observé dans un piège harmonique correspond à l'excitation d'un mode particulier. Les oscillations du centre de masse concernent l'excitation du mode dipolaire, tandis que celles de la taille sont liées à l'excitation du mode monopolaire,

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

encore appelé "mode de respiration". Les interactions entre particules jouent un rôle important dans la dynamique du système, car elles sont responsables de l'amortissement éventuel de ces modes. Dans le cas d'un gaz classique confiné dans un potentiel harmonique, les interactions mises en jeu sont les collisions élastiques.
Nous nous intéressons dans la suite aux oscillations du centre de masse et aux oscillations de la taille du nuage atomique suivant la direction verticale, puisque leur amplitude est bien plus grande que dans les directions horizontales. La résolution de notre système de détection ne nous permet pas d'effectuer une étude quantitative du mouvement horizontal.
Dans la suite, nous noterons la fréquence d'oscillation verticale du piège $\nu_z = \omega_z/2\pi$ et la fréquence horizontale $\nu_h = \omega_r/2\pi$.

Oscillations du centre de masse

Après le transfert des atomes vers le piège, un phénomène d'oscillations peut être observé lorsque le centre de masse du nuage ne coïncide pas parfaitement avec le centre du piège hybride ou lorsque l'échantillon possède une vitesse initiale non nulle. Dans les deux cas, le centre de masse effectue des oscillations **non amorties** au cours du temps, comme l'illustre la Fig. 2.19a). S'il existe néanmoins un mécanisme dissipant l'énergie du système, comme l'évaporation, alors on peut s'attendre à ce que l'amplitude des oscillations diminue ; ce n'est pas le cas dans notre expérience. L'étude des oscillations du centre de masse est réalisée en mesurant l'évolution de la position verticale du centre de masse Z_c du nuage. La position est ajustée par la fonction sinusoïdale : $Z_c(t) = A + B\sin(2\pi\nu_z t + \varphi)$, à partir de laquelle il est possible d'extraire la fréquence du piège magnétique $\nu_z \approx 4,6$ Hz.

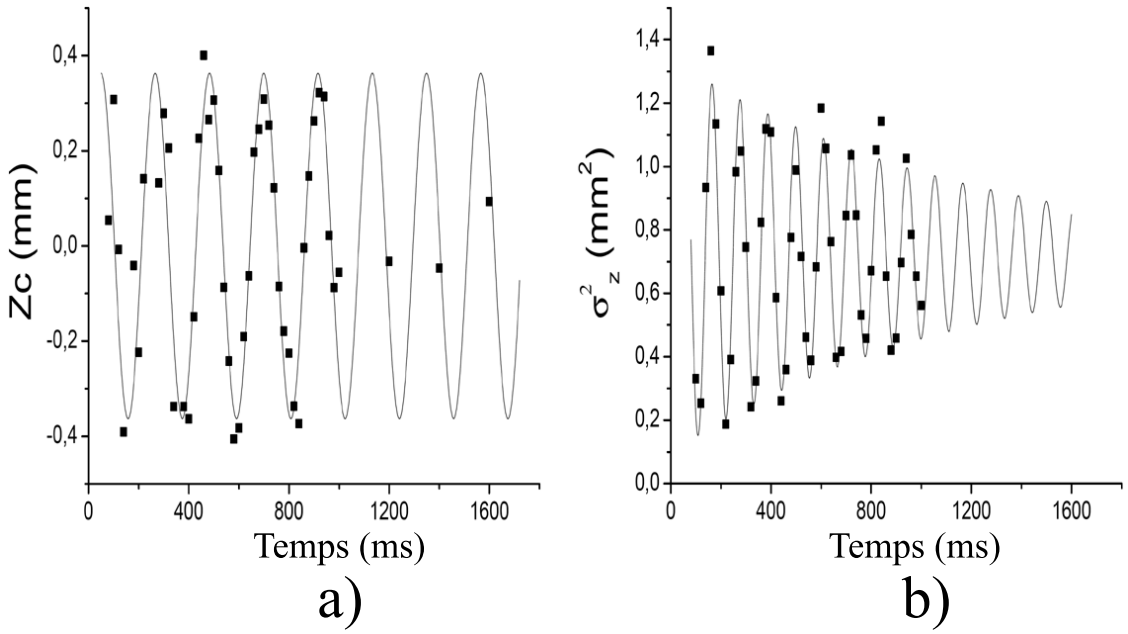

FIG. 2.19 – Oscillations du centre de masse Z_c (a)) et de la taille rms σ_z (b))du nuage suivant la direction (Oz). Un ajustement de Z_c par une fonction sinusoïdale (ligne continue sur a)) permet de déterminer la fréquence d'oscillation dans le potentiel vertical $\omega_z/2\pi \simeq 4,6$ Hz. La taille σ_z a, elle, été ajustée par une fonction sinusoïdale exponentiellement amortie (ligne continue sur b)) avec laquelle on obtient une fréquence d'oscillation $\omega_{\sigma_z}/2\pi \simeq 9,11$ Hz et un coefficient d'amortissement $\Gamma/2\pi \simeq 0,21$ Hz.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Oscillations de la taille du nuage

Contrairement au cas où, dans un piège harmonique, les oscillations du centre de masse ne sont pas amorties sous l'effet des collisions élastiques, celles de la taille du nuage le sont [Guéry-Odelin et al., 1999, Al Khawaja et al., 2000, Dalfovo et al., 1999]. La description des modes d'oscillations d'un gaz confiné dans un potentiel se fait à partir de l'équation cinétique de Boltzmann. Cette équation décrit l'évolution de la fonction de distribution dans l'espace des phases du gaz $f(\boldsymbol{r}, \boldsymbol{p}, t)$ sous l'effet des forces de piégeage ($\boldsymbol{F} = -\boldsymbol{\nabla} U(\boldsymbol{r})$ où $U(\boldsymbol{r})$ est le potentiel de piégeage) et des collisions élastiques :

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \boldsymbol{v} \cdot \boldsymbol{\nabla}_{\boldsymbol{r}} f + \frac{\boldsymbol{F}}{M} \cdot \boldsymbol{\nabla}_{\boldsymbol{v}} f = I_{coll}(\boldsymbol{r}, \boldsymbol{p}, t) \tag{2.12}$$

où I_{coll}, appelée intégrale de collision, contient l'influence des collisions élastiques sur l'évolution de la densité dans l'espace des phases.

La référence [Guéry-Odelin et al., 1999] montre que dans un piège harmonique isotrope de pulsation $\omega = \omega_z = \omega_r$, la composante monopolaire n'est jamais amortie sous l'effet des collisions élastiques. Dans le cas d'un gaz classique porté hors d'équilibre, le rayon du nuage oscille sans amortissement avec une pulsation égale à deux fois celle du piège harmonique [8].
Si maintenant on brise l'isotropie du piège, il n'existe plus d'autres modes non-amortis en dehors de l'oscillation du centre de masse (mode dipolaire). L'anisotropie est responsable du couplage entre le mode monopolaire et le mode quadrupolaire, qui donne naissance au mode monopole-quadrupole qui, lui, s'amortit sous l'effet des collisions élastiques.
En étudiant l'amortissement de l'oscillation de la taille du nuage, nous sommes donc capables de caractériser le régime collisionnel d'un piège anisotrope.

Dans notre expérience, le piège hybride possède une symétrie d'axe (Oz) et a une forme très allongée suivant cette direction. Son rapport d'anisotropie est estimé à $\omega_z/\omega_r \approx 0,08$. Notre piège étant anisotrope, les oscillations de la taille du nuage atomique sont censées s'amortir avec le temps. Effectivement c'est ce que l'on observe sur la Fig. 2.19b), où l'on a représenté la variation de la largeur rms du nuage suivant l'axe vertical, σ_z^2. Ces oscillations sont ajustées par la fonction $\sigma_z^2(t) = C + D\exp(-\Gamma t)\sin(\omega_z t + \varphi)$, à partir de laquelle on peut extraire la pulsation ω_{σ_z} associée aux oscillations et le coefficient d'amortissement Γ.

De manière générale, on peut associer au mode d'excitation monopole-quadrupole la pulsation complexe $\tilde{\omega}$ telle que $\tilde{\omega} = \omega + i\Gamma$ où Γ est le coefficient d'amortissement. Cette pulsation obéit à la relation de dispersion [Kavoulakis et al., 1998] :

$$\tilde{\omega} = \omega_{CL}^2 + \frac{\omega_{HD}^2 - \omega_{CL}^2}{1 + i\tilde{\omega}\tau} \tag{2.13}$$

où ω_{CL} et ω_{HD} sont les pulsations obtenues respectivement dans un régime sans collision et dans un régime hydrodynamique. La grandeur τ est le temps caractéristique de thermalisation, proportionnel au temps qui sépare deux collisions élastiques t_{el} ($\tau = 6t_{el}/5$ pour un piège en forme de cigare, comme c'est le cas du piège hybride).

[8] Dans le cas d'un condensat de Bose-Einstein à $T = 0$, piégé dans un piège harmonique isotrope, l'oscillation monopolaire reste toujours non amortie mais elle se fait non pas à 2ω mais $\sqrt{5}\omega$.

Dans le cas d'un *régime sans collision* ($\omega\tau \longrightarrow \infty$), le mouvement des atomes peut être décrit par l'hamiltonien de l'oscillateur harmonique pour une particule. La fréquence d'oscillation de la taille du nuage est alors égale à deux fois celle du piège et leur amplitude ne s'amortit pas :

$$\omega\tau \longrightarrow \infty \quad \Longrightarrow \quad \omega = \omega_{CL} = 2\omega_z \text{ et } \Gamma = 0 \tag{2.14}$$

Dans le cas où le système se trouve dans le *régime hydrodynamique* ($\omega\tau \longrightarrow 0$), le libre parcourt moyen est petit comparé aux dimensions du nuage atomique piégé. Dans le cas d'un piège en forme de cigare, la pulsation des oscillations de la taille du nuage vaut $\sqrt{12/5}\,\omega_z$ et leur amplitude ne s'amortit pas :

$$\omega\tau \longrightarrow 0 \quad \Longrightarrow \quad \omega = \omega_{HD} = \sqrt{12/5}\,\omega_z \text{ et } \Gamma = 0 \tag{2.15}$$

Dans le cas d'un piège en forme de cigare ($(\omega_z/\omega_r)^2 \ll 1$), les couples de solutions $(\omega/\omega_z, \Gamma/\omega_z)$ issus de la résolution de l'équation (2.13) ont été tracés sur la Fig. 2.20 en fonction du terme $\omega_z\tau$ [Guéry-Odelin et al., 1999]. Comme prévu, le rapport ω/ω_z décroît de la valeur 2 dans un régime sans collision à la valeur 1,55 dans le régime hydrodynamique ; le rapport Γ/ω_z est nul dans les deux régimes et atteint son maximum au voisinage de $\omega_z\tau \approx 0,5$. Les résultats de la Fig. 2.20 peuvent également être représentés dans le plan $(\Gamma/\omega_z, \omega/\omega_z)$ comme le montre la Fig. 2.22.

Nous avons vu que le coefficient d'amortissement des oscillations de la taille du nuage est directement lié aux taux de collisions élastiques dans le piège. Nous allons étudier dans la suite la variation de ce taux de collisions en fonction du champ magnétique homogène, dont la valeur détermine celle de la longueur de diffusion. Le taux de collisions élastiques au sein du piège hybride est un paramètre important à déterminer puisqu'il conditionne la réalisation d'un refroidissement évaporatif efficace.

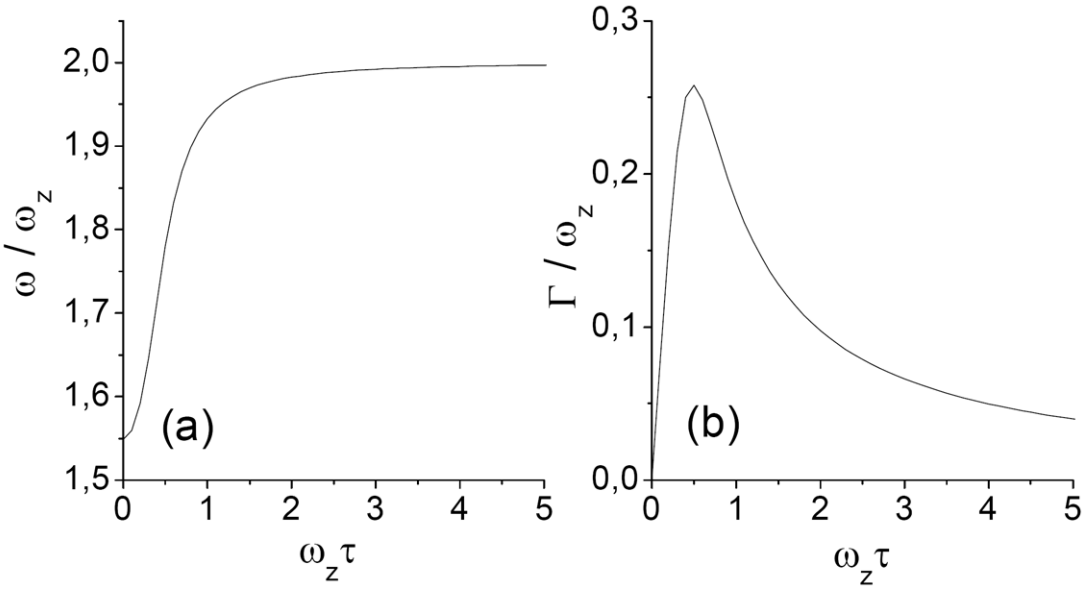

FIG. 2.20 – Prévisions théoriques issues de l'expression 2.13 pour le mode d'excitation monopole-quadrupole dans le cas d'un piège harmonique en forme de cigare ($\omega_z \ll \omega_r$, en fonction du produit $\omega_z\tau$. Sur la partie a), est représentée la pulsation des oscillations, et sur la partie b), le taux d'amortissement Γ, les deux grandeurs étant exprimées par rapport à la pulsation ω_z du piège.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Influence du champ magnétique sur le régime collisionnel

Section efficace et taux de collisions élastiques : A très basse énergie, l'expression de la section efficace de collision pour des bosons polarisés interagissant en onde s est donnée par :

$$\sigma(k) = \frac{8\pi a^2}{1 + k^2 a^2} \tag{2.16}$$

où a est la longueur de diffusion et k est le vecteur d'onde de la particule fictive dans le référentiel du centre de masse. La grandeur k est reliée à la vitesse relative v_r des deux atomes en collision suivant $v_r = 2\hbar k/M$, où M est la masse de l'atome impliqué dans la collision.

Dans les deux cas limites $ka \ll 1$ (limite à énergie nulle) et $ka \gg 1$ (limite unitaire), les expressions asymptotiques de σ sont :

$$ka \ll 1 \quad \Longrightarrow \quad \sigma(k) \longrightarrow 8\pi a^2 \tag{2.17}$$

$$ka \gg 1 \quad \Longrightarrow \quad \sigma(k) \longrightarrow 8\pi/k^2 \tag{2.18}$$

En utilisant l'expression (2.16), nous avons représenté sur la Fig. 2.21 la variation de la section efficace $\sigma(k)$ en fonction de la longueur de diffusion, pour des températures $T = 10$ μK, 5 μK et 1 μK. Les expressions asymptotiques de $\sigma(k)$ ont également été représentées avec $k = M\bar{v}_r/2\hbar$ où $\bar{v}_r = 4\sqrt{k_B T/\pi M}$ est la vitesse relative moyenne.
Premièrement, on peut remarquer que la section efficace de collision augmente lorsque la température diminue. Deuxièmement, pour une température fixée, la section efficace croît avec la longueur de diffusion et ce d'autant plus vite que la température est basse. Elle passe de la valeur asymptotique à énergie nulle ($ka \ll 1$) $\sigma = 8\pi a^2$ à la limite unitaire ($ka \gg 1$) $\sigma = 8\pi/k^2$. La limite unitaire est atteinte pour une valeur de la longueur de diffusion d'autant plus petite que la température est grande. Une fois la limite unitaire atteinte, l'augmentation de la longueur de diffusion ne permet plus d'augmenter le taux de collisions élastiques :

$$\gamma_{el} = 1/t_{el} \simeq \bar{n} \frac{8\pi a^2}{1 + (ka)^2} \bar{v}_r \tag{2.19}$$

Nous allons étudier maintenant le comportement collisionnel des atomes au sein du piège hybride pour différentes valeurs de la longueur de diffusion.

Détermination du régime collisionnel du piège hybride : Dans l'expérience que nous présentons, le confinement des atomes dans le piège hybride est réalisé pour différentes valeurs du champ magnétique homogène $|B_0| = 60$ G, 70 G, 85 G, 100 G, 115 G et 130 G. Le champ magnétique total que voient les atomes est la somme des champs magnétiques $\boldsymbol{B}_0 + \boldsymbol{B}_{1z}(0, z_t)$ (voir Fig. 2.8b)), sachant que $B_{1z}(0, z_t) \simeq 40$ G et que les deux champs magnétiques pointent dans des directions opposées. En modifiant la valeur du champ magnétique homogène, nous modifions la longueur de diffusion atomique a grâce à la présence de résonances de Feshbach et obtenons, pour les valeurs de $|B_0|$ imposées, $a = 300$ a_0, 500 a_0, 700 a_0, 1000 a_0, 1200 a_0 et 1400 a_0.

Pour chacune des valeurs du champ magnétique, nous mesurons les rapports $\omega_{\sigma_z}/\omega_z$ et Γ/ω_z. Nous avons mesuré une pulsation $\omega_z \simeq 2\pi \times 4,6$ Hz et un rapport $\omega_{\sigma_z}/\omega_z$ voisin de la valeur 2 pour tous les champs magnétiques appliqués. Le taux d'amortissement Γ tend, lui, à croître lorsque $|B_0|$ augmente ; on mesure par exemple, pour $|B_0| = 60$ G, $\Gamma \simeq 0,6$ s^{-1} et pour

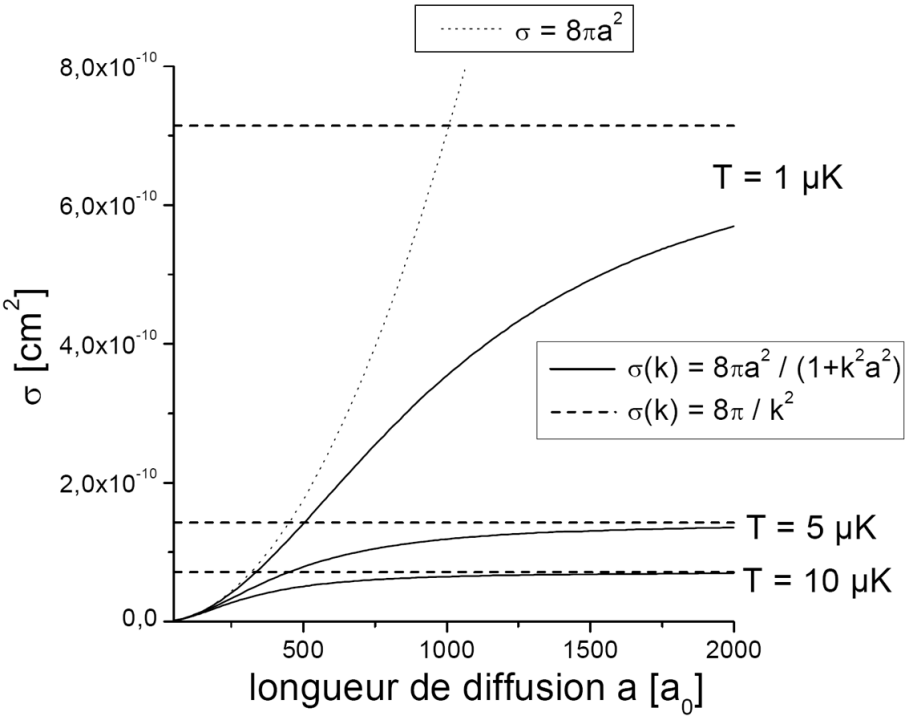

FIG. 2.21 – Variation de la section efficace de collisions élastiques $\sigma(k)$ (voir Eq. (2.16) en fonction de la longueur de diffusion pour les températures $T = 10$ μK, 5 μK et 1 μK (lignes continues). Les lignes discontinues correspondent aux expressions asymptotiques $\sigma = 8\pi a^2$ et $\sigma = 8\pi/k^2$, valables respectivement pour $ka \ll 1$ et $ka \gg 1$.

$|B_0| = 115$ G, $\Gamma \simeq 1,4$ s^{-1}. En d'autres termes, le temps d'amortissement passe de 11 s pour $|B_0| = 60$ G à 4 s pour $|B_0| = 115$ G, ce qui est lié à une augmentation du taux de collisions élastiques lorsque la longueur de diffusion augmente. Pour comparer ces résultats avec les prédictions théoriques de la référence [Guéry-Odelin et al., 1999], nous avons reporté toutes ces mesures sur la Fig. 2.22, sur laquelle les résultats théoriques des Fig. 2.20 sont combinés dans le plan $(\Gamma/\omega_z, \omega_{\sigma_z}/\omega_z)$ (courbe en trait plein). Sur la figure, les mesures, symbolisées par des carrés, sont associées, chacune, à une valeur de la longueur de diffusion exprimée en unité de a_0.

On peut constater d'une part que toutes nos mesures sont situées près du régime sans collision ; elles témoignent d'un taux de collisions très faible, ce qui correspond à une valeur élevée du produit $\omega_z\tau \propto \omega_z t_{el}$. Ce résultat suggère que le nuage atomique est peu dense. La densité étant proportionnelle au produit $NT^{-3/2}$, soit la température atomique est trop élevée soit le nombre d'atomes est trop faible.
D'autre part, on peut remarquer que l'augmentation de la longueur de diffusion ne suffit pas à accroître significativement le taux de collisions élastiques. La température au sein du piège hybride semble trop élevée pour que la section efficace de collisions élastiques soit très sensible à la valeur de la longueur de diffusion (voir Fig. 2.21). Cette observation suggère que la section efficace de collisions est proche de la limite unitaire ($ka \gg 1$), où $\sigma = 8\pi/k^2$. Ainsi, dans ce régime, $\gamma_{el} \simeq \bar{n}\sigma\bar{v}_r \propto (NT^{-3/2})T^{-1}T^{1/2} = N/T^2$.

A titre de comparaison, nous avons également reporté sur la Fig. 2.22 le résultat du calcul du couple $(\Gamma/\omega_z, \omega_{\sigma_z}/\omega_z)$ pour un nombre d'atomes constant égal à $N = 10^6$ (proche du

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

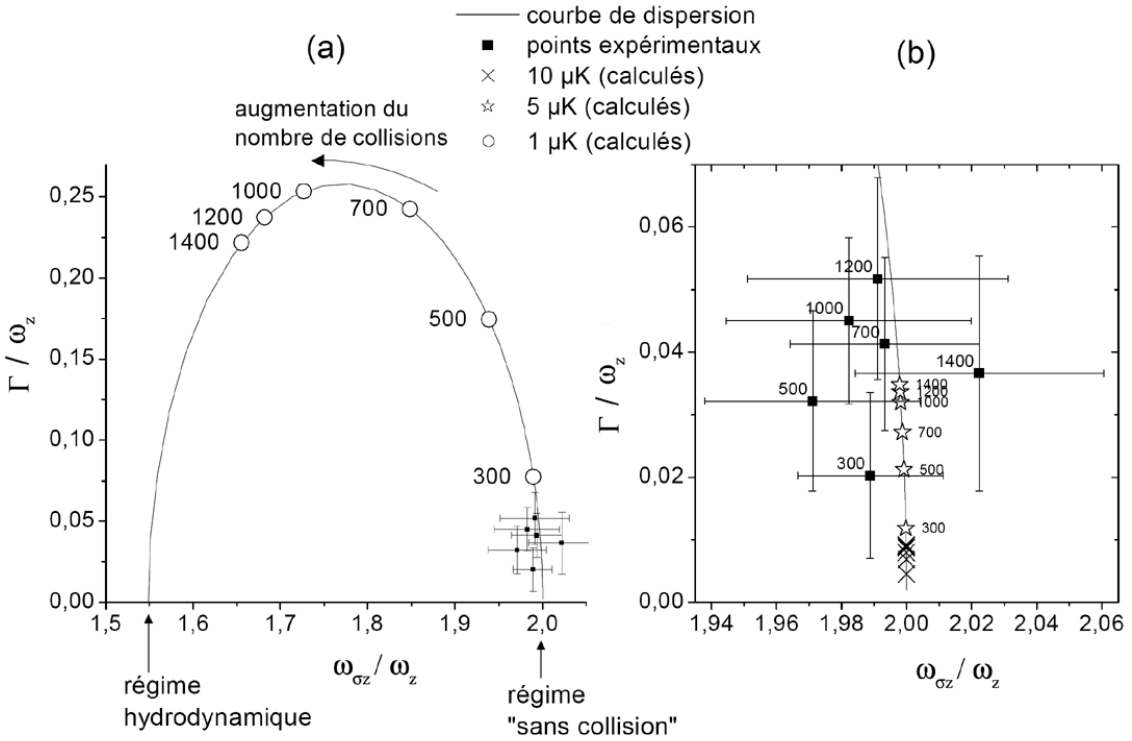

FIG. 2.22 – a) Pulsation ω_{σ_z} et coefficient d'amortissement Γ des oscillations du rayon du nuage données par l'expression (2.13) (ligne continue), entre les limites $\omega_z\tau \longrightarrow \infty$ (régime sans collision) et $\omega_z\tau \longrightarrow \infty$ (régime hydrodynamique). Lorsque l'on évolue sur la courbe dans le sens indiqué par la flèche, le taux de collisions élastiques augmente. Les mesures de Γ/ω_z et de $\omega_{\sigma_z}/\omega_z$ (carrés noirs) sont obtenues pour des valeurs de longueurs de diffusion a = 300 a_0, 500 a_0, 700 a_0, 1000 a_0, 1200 a_0 et 1400 a_0. Les autres points ont été calculés pour un nombre d'atomes de $N = 10^6$, des températures de 10 μK (croix), 5 μK (étoiles) et 1 μK (cercles) et pour des longueurs de diffusion correspondant à celles des points expérimentaux. b) Grandissement de la région contenant les points expérimentaux.

nombre d'atomes que l'on transfère dans le piège), pour différentes températures $T = 10$ μK, 5 μK et 1 μK et pour différentes longueurs de diffusion a = 300 a_0, 500 a_0, 700 a_0, 1000 a_0, 1200 a_0 et 1400 a_0. Pour chaque point calculé, nous avons évalué le produit $\omega_z\tau$ que l'on injecte dans l'équation de dispersion (2.13).

Les résultats expérimentaux s'avèrent être très similaires à ceux des points calculés pour des températures de 10 μK et 5 μK qui, dans les deux cas, présentent un régime collisionnel proche du régime sans collision, ne changeant que très peu en fonction de la longueur de diffusion.

Par contre, un nuage de 10^6 atomes à la température de 1 μK présente un comportement du régime collisionnel très différent. La température est suffisamment basse pour permettre, en modifiant la longueur de diffusion, de contrôler sur une grande plage le taux de collisions élastiques. En effet, la Fig. 2.22 nous montre que l'augmentation de la longueur de diffusion de 300 a_0 à 1400 a_0 nous permet d'atteindre un régime collisionnel intermédiaire entre le régime hydrodynamique et celui sans collision. Un tel régime collisionnel serait d'un très grand intérêt dans la perspective de réaliser un processus de refroidissement évaporatif efficace. Dans ce régime, le taux de collisions élastiques est relativement élevé sans pour autant se

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

trouver dans le régime hydrodynamique, qu'il faut éviter pendant le processus d'évaporation.

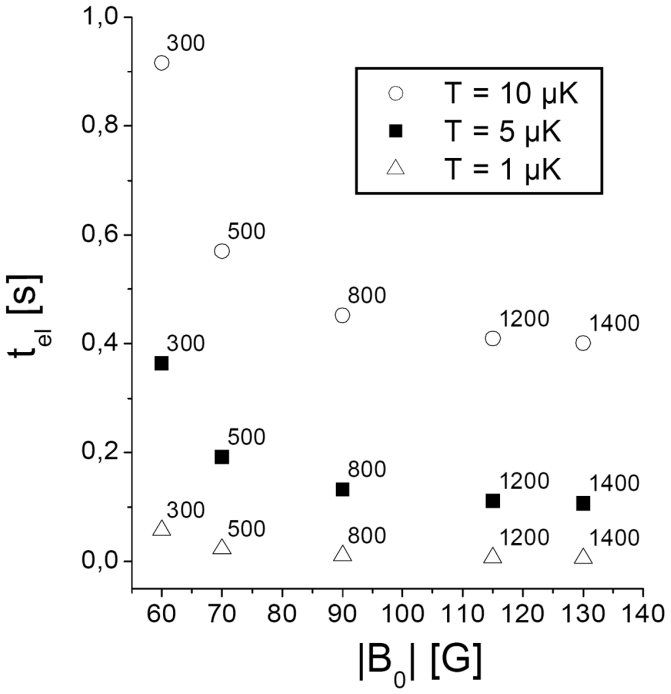

FIG. 2.23 – Temps t_{el} entre deux collisions calculé (voir formule (2.19)) dans les conditions expérimentales pour différentes valeurs du champ magnétique homogène $|B_0|$ et des températures de 10 μK, 5 μK et 1 μK. Chaque point est associé à une valeur de longueur de diffusion (en unité de a_0) correspondant à la valeur de $|B_0|$.

Pour donner un ordre d'idée, nous avons calculé, à partir de la formule (2.19), dans des conditions proches de l'expérience, la période temporelle entre deux collisions élastiques t_{el} en fonction de la longueur de diffusion, pour les trois températures $T = 10$ μK, 5 μK, et 1 μK (voir Fig. 2.23). Nous avons considéré $N = 10^6$ atomes, confinés dans un piège de pulsations $\omega_z = 2\pi \times 4,6$ Hz et $\omega_r = 2\pi \times 56$ Hz (obtenue pour un faisceau laser Nd:YAG focalisé sur un waist de 260 μm). Ces paramètres nous permettent d'estimer une densité pic $n(0) = N\omega_z\omega_r^2 \, (M/2\pi k_B T)^{3/2} \simeq 1,5 \times 10^{10}$ at/cm^3.
Pour une température donnée, lorsque la limite unitaire est atteinte, c'est-à-dire pour de grandes valeurs de longueur de diffusion ($a \geq 900$ a$_0$), nous avons regroupé dans le tableau ci-dessous les valeurs de t_{el} et du taux de collisions γ_{el} :

Température	t_{el}	γ_{el}
10 μK	380 ms	2,6 s^{-1}
5 μK	95 ms	10,5 s^{-1}
1 μK	4 ms	250 s^{-1}

Sur la Fig. 2.22, les points expérimentaux sont assez proches de ceux calculés pour un nombre d'atomes $N = 10^6$ et une température $T = 5$ μK. On s'attend donc à ce que le taux de collisions dans le piège hybride soit assez proche de celui calculé dans le tableau pour $T = 5$ μK.
Pour atteindre le régime intermédiaire où Γ est maximal ($\omega_z\tau = 0,5$), nous avons évalué que

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

le terme $\omega_z \tau$ doit être diminué d'un facteur 8, ce qui peut être réalisé dans la limite unitaire par une augmentation de la quantité $N/T^2 \propto \gamma_{el}$ du même facteur.

2.4.4 Conclusion

Les études effectuées en vue de caractériser le piège conservatif hybride ont permis de mettre en évidence deux points fondamentaux empêchant l'obtention d'un condensat de Bose-Einstein avec un tel dispositif.
D'une part, la durée de vie du piège, de l'ordre de 3,5 s, semble bien trop courte pour envisager une phase de refroidissement évaporatif, d'une durée d'environ 30 s dans l'expérience autrichienne de R. Grimm. Cette limitation de la durée de vie proviendrait non pas de processus dépolarisants induits par le laser Nd:YAG, mais de collisions entre les atomes du piège et le gaz résiduel. Cette limitation demande simplement une amélioration du vide dans l'enceinte.
D'autre part, l'étude des oscillations de la taille du nuage en fonction de la valeur du champ magnétique homogène nous a permis d'estimer un taux de collisions élastiques trop faible au sein du piège hybride. Cette observation suggère que l'échantillon atomique ne présente pas une densité suffisante, la température atteinte n'étant pas assez faible et/ou le nombre d'atomes piégés n'étant pas assez élevé. Ce résultat ne permet pas d'envisager une phase de refroidissement évaporatif, dont l'efficacité dépend directement du taux de collisions élastiques.

Ces conclusions ne condamnent pas l'expérience mais montrent les difficultés à surmonter. Compte tenu de la mise en évidence par l'équipe de R. Grimm de la condensation de Bose-Einstein du césium et de l'état des forces disponibles sur l'expérience à l'époque, il a été décidé un arrêt momentané de celle-ci. Depuis un an, l'expérience a repris et l'équipe expérimentale actuelle envisage une voie différente et innovante pour atteindre le seuil de condensation. Dans la section suivante, nous présentons très brièvement la solution choisie.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

2.5 Orientation vers un piège tout optique

La direction empruntée par l'équipe expérimentale actuelle a été guidée par la volonté de mener en un temps d'évaporation très court un échantillon important d'atomes vers la condensation de Bose-Einstein.
L'idée originale du chargement d'un piège hybride optique et magnétique par le MOT2 a été abandonnée. Jusqu'à présent, parmi les expériences menées de part le monde, trois possibilités étaient communément envisagées pour mener à la condensation un gaz d'atomes piégés optiquement : transférer un petit nombre d'atomes dans un piège très confinant (expérience sur l'atome Yb avec deux faisceaux laser Nd :YAG très focalisés , sur ≈ 15 μm [Takasu et al., 2003]), transférer un grand nombre d'atomes dans un piège très lâche (expérience réalisée sur l'atome de Cs avec deux faisceaux lasers CO_2 peu focalisés, sur ≈ 650 μm [Kraemer et al., 2004]). La troisième possibilité, mise en application sur le Rb dans le groupe de Chapman en Géorgie (USA) est une combinaison de ces 2 méthodes et présente vraisemblablement le meilleur des choix [Barrett et al., 2001]. L'idée adoptée par notre équipe est inspirée de cette dernière expérience que nous allons maintenant décrire.

L'équipe de Chapman a réalisé un piège dipolaire croisé obtenu à l'aide de deux lasers CO_2, qui a permis d'atteindre la condensation de Bose-Einstein du rubidium en 2 s [Barrett et al., 2001]. A l'intersection des deux faisceaux, un trou dans le potentiel de piégeage est creusé ("dimple") dans lequel les atomes s'entassent pour atteindre des densités très élevées. C'est dans ce dimple que la transition de phase est ensuite obtenue par évaporation. Des études réalisées sur le piégeage de Yb ont montré que la force de rappel, exercée en dehors du dimple suivant les axes de propagation des faisceaux, permet de recapturer dans le dimple les atomes alentour. L'effet de cette force de rappel se traduit par le chargement d'un nombre important d'atomes dans le dimple, ce qui favorise l'obtention rapide d'un condensat. Ce processus n'est réalisable aisément qu'en utilisant des lasers de grande longueur d'onde, comme les lasers CO_2 ($\lambda = 10,6$ μm) qui présentent, par nature, une divergence de faisceau importante ; la force de rappel en dehors du dimple devenant de plus en plus forte en augmentant la divergence des faisceaux, ce type de laser présente une grande efficacité pour charger les atomes dans le dimple.

Nous ne disposons pas d'un laser CO_2 dans notre expérience, mais d'un laser Nd :YAG ($\lambda = 1064$ nm). Ce laser présente une trop faible divergence pour exercer une force de rappel efficace sur les atomes se trouvant en dehors du dimple. L'idée, pour recréer cette force de rappel manquante, est de superposer au piège optique un piège magnétique. Ce piège, réalisé à l'aide d'une paire de bobines en configuration anti-Helmoltz, agit comme un réservoir d'atomes pour charger le dimple, obtenu au croisement de deux faisceaux laser Nd :YAG d'une puissance de ≈ 7 W chacun.
Un résumé de la séquence envisagée pour atteindre la condensation serait le suivant : les atomes, polarisés dans l'état $|f = 3, m_f = -3\rangle$, sont transférés après une phase de mélasse optique dans le piège magnétique. Le piège dipolaire est ensuite allumé, puis le dimple se charge. Afin d'augmenter la vitesse de chargement du dimple, la longueur de diffusion est ajustée à ≈ 3000 a_0 à l'aide d'un champ magnétique homogène. Le champ magnétique de piégeage est ensuite coupé, puis les atomes sont polarisés dans l'état fondamental $|f = 3, m_f = 3\rangle$ pour éviter toute collision inélastique au sein du piège. Une fois le dimple chargé en atomes $|f = 3, m_f = 3\rangle$, la phase d'évaporation peut débuter ; on doit préalablement ajuster la longueur de diffusion à environ 100 a_0 pour éviter d'entrer dans le régime hydrodynamique, dans lequel le phénomène d'évaporation devient inefficace.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

En fin d'évaporation, le confinement optique devenant trop faible suivant l'axe vertical pour compenser la gravitation, un gradient de champ magnétique d'environ 31 G/cm doit être ajouté (lévitation magnétique des atomes). Des calculs théoriques menés par l'équipe actuelle de recherche prévoient une phase d'évaporation qui devrait durer moins d'une seconde.

Actuellement, l'équipe travaille à l'optimisation du signal dans le piège dipolaire croisé, et envisage prochainement d'y superposer le piège magnétique, dont l'efficacité de confinement a déjà été démontrée.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Chapitre 3

Piège dipolaire QUEST de molécules ultrafroides

3.1 Introduction

Depuis quelques années, le domaine des molécules froides a connu un essort important avec, comme principal résultat, l'observation, à la fin de l'année 2003, des premiers condensats moléculaires à partir d'atomes fermioniques [Greiner et al., 2003, Jochim et al., 2003b, Zwierlein et al., 2003, Bourdel et al., 2004]. Ce champ de recherche connaît actuellement un développement exceptionnellement rapide. On recense à ce jour au moins neuf techniques différentes pour produire des molécules froides, alors que la première démonstration fut rapportée, il y a seulement huit ans, au laboratoire Aimé Cotton [Fioretti et al., 1998].
Un des principaux objectifs, que de nombreux groupes de recherche se sont fixés, réside dans la production d'un système dense de molécules polaires ultrafroides [Doyle et al., 2004]. En effet, elles offrent des propriétés exceptionnelles qui ne peuvent être obtenues avec des atomes, puisqu'elles possèdent un moment dipolaire électrique permanent. L'utilisation de tels systèmes offrirait de nombreuses perspectives dans la chimie ultrafroide, et permettrait éventuellement la réalisation d'un ordinateur quantique. La spectroscopie très précise de molécules dipolaires lourdes permettrait également de déterminer le moment dipolaire électrique de l'électron [Hinds, 1997], qui a une importance capitale pour la validation du modèle standard.

Avant de présenter le travail que nous avons réalisé, nous allons donner un bref aperçu des différentes techniques permettant d'obtenir un échantillon de molécules froides.

3.1.1 Les différentes techniques de formation de molécules froides

Avant de commencer la description des différentes techniques de formation de molécules froides, il convient de préciser qu'en toute rigueur, le terme de molécules *froides* désigne des molécules dont l'énergie translationnelle est comprise entre 1 et 1000 mK. Le terme de molécules *ultrafroides* est réservé à des molécules dont l'énergie translationnelle est inférieure au mK.

Le refroidissement de molécules n'est pas aussi simple que pour les atomes. En effet, la structure complexe des niveaux d'énergie moléculaires ne permet pas d'étendre de façon

simple le refroidissement laser aux molécules. Il existe néanmoins des propositions qui permettent d'envisager ce genre de refroidissement [Bahns et al., 1996].
Il existe deux types de méthodes pour créer des molécules froides. La première, indirecte, consiste à former les molécules à partir d'atomes préalablement refroidis. Les molécules sont alors produites après photoassociation des atomes froids, ou alors en traversant, à l'aide d'un champ magnétique, une résonance de Feshbach. Il existe au moins une vingtaine de groupes dans le monde qui utilisent ces méthodes indirectes. Nous discuterons les avantages et les inconvénients de ces méthodes dans la suite. La deuxième méthode, cette fois directe, consiste à refroidir des molécules déjà formées. Il existe aux alentours d'une quinzaine de groupes dans le monde qui ont choisi de ralentir les molécules directement. Les principales techniques utilisées sont celles du refroidissement par gaz tampon [Weinstein et al., 1998] et du ralentissement d'un jet moléculaire à l'aide de champs électriques pulsés [Bethlem et al., 1999].
Les principaux avantages de ces approches directes résident dans la possibilité de les réaliser sur un éventail très large de molécules. Cependant, la majorité de ces approches ne permet pas d'atteindre des températures translationnelles dans le domaine du microkelvin. Il existe néanmoins de nombreuses propositions pour y arriver, en utilisant par exemple des techniques de refroidissement évaporatif, de refroidissement sympathique avec des atomes froids ou alors directement par refroidissement laser.

Nous allons maintenant décrire brièvement quelques techniques qui permettent d'obtenir des molécules froides ou ultrafroides.

Méthodes de refroidissement indirect

Photoassociation : Cette technique a été utilisée pour réaliser la première démonstration de production de molécules froides [Fioretti et al., 1998]. L'idée est de partir d'un échantillon d'atomes froids, et d'exciter un état moléculaire en photoassociant une paire d'atomes en collision à l'aide d'un laser [Thorsheim et al., 1987, Masnou-Seeus and Pillet, 2001]. Les molécules excitées obtenues ont une courte durée de vie et peuvent se désexciter, dans certains cas, vers des états liés des potentiels fondamentaux singulet ou triplet. L'avantage de cette technique est la possibilité de former des molécules à des températures identiques à celles des atomes de départ. En revanche, après désexcitation spontanée, les molécules sont formées dans des états vibrationnellement excités des potentiels électroniques fondamentaux et ne sont donc froides que translationnellement. Généralement ces molécules stables sont formées dans l'état fondamental triplet plutôt que dans le véritable état fondamental.
Concernant la production de molécules froides hétéronucléaires ([Kerman et al., 2004a] pour RbCs et [Wang et al., 2004, Mancini et al., 2004] pour KRb), l'étape de photoassociation a été prédite moins efficace que dans le cas de dimères homonucléaires [Wang and Stwalley, 1998]. Les potentiels moléculaires hétéronuclaires dans leur premier état électronique excité varient asymptotiquement en R^{-6} alors que dans le cas de molécules homonucléaires, ils varient en R^{-3}. La photoassociation étant plus probable à longue distance, les potentiels en R^{-3} qui possèdent des états liés de grande élongation, permettent d'obtenir des taux de photoassociation bien plus importants. Par contre, l'efficacité de formation de molécules froides après désexcitation spontanée est plus grande dans le cas des molécules hétéronucléaires, puisque les potentiels fondamental et excité ont le même comportement asymptotique, en R^{-6}. Globalement le taux de formation de molécules froides hétéronucléaires par photoassociation ne devrait être inférieur que d'un ordre de grandeur par rapport à la formation de molécules froides homonucléaires [Azizi et al., 2004].

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Nous reviendrons plus en détail sur le processus de photoassociation en décrivant le cas qui nous intéresse plus particulièrement : la formation des molécules ultrafroides de césium.

Résonance de Feshbach : La possiblité de créer des condensats de Bose-Einstein moléculaires devint réalité à la fin de l'année 2003 en formant des molécules ultrafroides par résonance de Feshbach [Stwalley, 1976, Julienne et al., 2004, Tiesinga et al., 1993, Inouye et al., 1998]. La réalisation d'un condensat moléculaire nécessite l'obtention préalable d'un échantillon atomique à une densité très élevée, proche ou dans le régime de dégénérescence quantique.
Pour obtenir une description détaillée du processus permettant de former des molécules par résonance de Feshbach, on pourra se référer à [Kleppner, 2004]. Nous n'en donnerons ici qu'une vision simple. Pour des températures ultrafroides, la collision entre deux atomes est décrite par la longueur de diffusion, qui est très sensible au potentiel d'interaction moléculaire. Si les atomes ou la molécule sont paramagnétiques, ce potentiel peut être déplacé à l'aide d'un champ magnétique. Une résonance de Feshbach apparaît lorsque l'énergie de la paire d'atomes en collision correspond à celle d'un état lié moléculaire. La longueur de diffusion peut être rendue positive ou négative de part et d'autre de la résonance de Feshbach. En traversant la résonance à l'aide d'un champ magnétique, l'état non lié (atomes en collision) peut être converti en un état lié moléculaire, très proche de la limite de dissociation (voir Fig. 3.1).
Jusqu'à présent, la formation de molécules ultrafroides hétéronuclaires n'a jamais été réalisée par résonance de Feshbach. Deux groupes ont cependant trouvé des résonances de Feshbach dans des systèmes hétéronucléaires [Stan et al., 2004, Inouye et al., 2004], ce qui laisse envisager un bel avenir à la production de molécules ultrafroides hétéronucléaires par résonance de Feshbach.

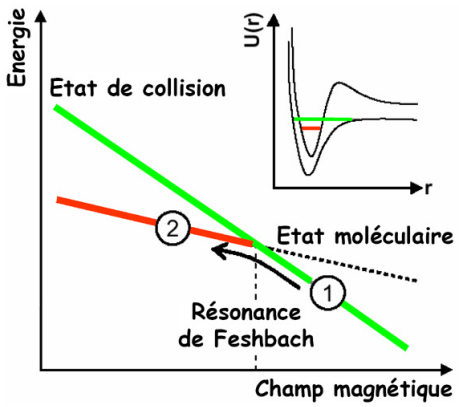

FIG. 3.1 – Diagramme énergétique de l'état de collision atomique et de l'état moléculaire lié. Une résonance de Feshbach apparaît lorsque l'énergie de l'état de collision devient égale à celle de l'état moléculaire lié. Expérimentalement, elle peut être induite par un champ magnétique extérieur lorsque les deux états présentent des déplacements Zeeman différents (moments magnétiques différents). Les molécules (2) sont créées à partir des atomes (1) en réalisant un balayage décroissant du champ magnétique à travers la résonance. Dans l'encart sont représentés le potentiel moléculaire correspondant à l'état de collision (courbe du bas) et le potentiel moléculaire possédant l'état lié (courbe du haut).

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Méthodes de refroidissement direct

Refroidissement par Gaz tampon : Cette technique de refroidissement permet de refroidir n'importe quel type de molécules ou d'atomes à des températures aux alentours de quelques centaines de millikelvin. Cette température est déterminée par la pression du gaz tampon d'helium qui thermalise le système par collisions élastiques. Cette technique de refroidissement a été, pour la première fois, mise en pratique par le groupe de Doyle en 1997 [Kim et al., 1997] pour refroidir des molécules et des atomes paramagnétiques afin de les transférer dans un piège magnétique. Un sérieux problème avec cette technique a été l'introduction des molécules à refroidir dans le gaz d'hélium refroidi cryogéniquement.

Ralentisseur Stark : Proposée il y a un peu plus d'un demi siècle, cette technique ne fut appliquée que très récemment, en 1999, par le groupe de Meijer [Bethlem et al., 1999]. L'idée est d'utiliser des champs électriques inhomogènes modulés temporellement, générés à différents endroits (étages) le long du parcours des molécules. Ces champs électriques modifient l'énergie potentielle des molécules et, par conséquent, leur énergie cinétique. L'énergie potentielle est augmentée à chaque étage, et ainsi l'énergie cinétique des molécules est de plus en plus faible. Le premier ralentisseur Stark fut réalisé avec 63 étages de décélération pour refroidir des molécules CO.
En 1999, le ralentisseur Stark connut plusieurs améliorations et fut couplé à d'autres systèmes tels qu'un piège électrostatique [Bethlem et al., 2000] ou un anneau de stockage. [Crompvoets et al., 2001].

3.1.2 Présentation du chapitre

Nous avons mis en place, pendant cette thèse, un dispositif permettant le confinement de molécules ultrafroides de césium dans un piège dipolaire conservatif. La détection directe de molécules ultrafroides piégées optiquement a déjà été réalisée par deux fois dans le passé, en 1998 par le groupe de Knize [Takekoshi et al., 1998] et en 2004 par le groupe de Gabbanini [Fioretti et al., 2004]. Cependant le nombre de molécules piégées et la durée de vie des pièges étaient tellement faibles qu'aucune étude n'a pu être réalisée.
Dans un premier temps, nous décrivons dans ce chapitre la technique de formation des molécules ultrafroides que nous avons employée, c'est-à-dire par photoassociation d'atomes froids. Nous décrivons ensuite le dispositif expérimental et les différentes étapes qui nous permettent, d'abord, d'obtenir un piège dipolaire atomique, puis de confiner les molécules.
Ce dispositif rend possible le piégeage simultané d'atomes et de molécules. Nous avons pu ainsi étudier les collisions molécule-atome et molécule-molécule dans le piège dipolaire, ce qui est d'une importance capitale pour évaluer la possiblité d'atteindre le régime de dégénérescence quantique moléculaire. Cette étude a également été complétée en essayant de déterminer l'influence de l'état interne des molécules piégées sur les taux de collisions.
Nous avons aussi tenté de comprendre pourquoi la durée de vie d'un piège purement moléculaire se trouve diminuée d'un facteur 4 par rapport à la durée de vie d'un piège atomique.
Le bilan des résultats obtenus lors de ces études est rapporté dans la référence [Zahzam et al., 2006].

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

3.2 Formation de molécules ultrafroides par photoassociation

3.2.1 Principe de la photoassociation (PA)

La photoassociation est le processus pendant lequel une paire d'atomes, dans leur état fondamental, entre en collision et absorbe de façon résonante un photon issu d'un faisceau laser. Le système se transforme alors en une molécule électroniquement excitée dans un niveau de rotation-vibration bien défini, caractérisé par le couple (v, J) et appartenant à un potentiel attractif. Cette réaction peut s'écrire dans le cas de la photoassociation d'atomes de césium :

$$Cs(6s_{1/2}) + Cs(6s_{1/2}) + h\nu_{PA} \longrightarrow Cs_2^*(6s_{1/2} + 6p_j; v, J) \tag{3.1}$$

On peut aussi se représenter cette réaction d'un point de vue totalement moléculaire. Le photon de fréquence ν_{PA} permettrait l'excitation d'un état du continuum du potentiel fondamental moléculaire vers un état lié d'un potentiel excité. On a illustré ce processus sur la Fig. 3.2. Les deux atomes de césium sont donc initialement dans un état du continuum du potentiel fondamental de la molécule, corrélé à la limite asymptotique $6s_{1/2} + 6s_{1/2}$. La largeur de cette bande d'états peuplés du continuum est, dans notre cas, typiquement de l'ordre du MHz [1], ce qui peut nous permettre d'effectuer une spectroscopie haute résolution des niveaux moléculaires des potentiels excités.

Le potentiel d'interaction de la molécule excitée est corrélé à la limite asymptotique $6s_{1/2} + 6p_{3/2}$ et varie à longue distance en C_3/R^3. En effet, pour de grandes distances internucléaires, le potentiel de molécules excitées homonucléaires est déterminé principalement par l'interaction dipôle-dipôle, en C_3/R^3. Les niveaux vibrationnels élevés de ces potentiels peuvent donc avoir des points tournants externes situés à des distances internucléaires jusqu'à plusieurs centaines d'unités atomiques. L'état moléculaire électroniquement excité est noté $\Omega_{(g,u)}^{(-,+)}$ et correspond à un état propre du cas c) de Hund dont les bons nombres quantiques sont $\Omega = |\Sigma + \Lambda|$, somme respectivement de la projection sur l'axe interatomique du spin et du moment orbital électronique total de la molécule. L'état est également décrit par la parité u/g et (lorsque $\Omega = 0$) la parité de Krönig $-/+$.

Les niveaux moléculaires des potentiels fondamentaux sont, quant à eux, situés à plus courte distance car cette fois-ci l'interaction dominante est de type Van der Waals (interaction dipôle-induit dipôle-induit). Le comportement à longue distance du potentiel moléculaire est alors en C_6/R^6, et converge donc rapidement vers la limite asymptotique $6s_{1/2} + 6s_{1/2}$. Ces états sont décrits par le cas a) de Hund et sont notés ${}^{2S+1}\Lambda_{(u,g)}^{(+,-)}$, où S est le spin électronique total.

L'excitation de cette paire d'atomes a lieu pour la distance internucléaire où le recouvrement des fonctions d'ondes radiales initiale et finale est le plus important (principe de Franck-Condon). Cette transition se produit au niveau de ce que l'on appelle le point de Condon, qui correspond approximativement au point tournant classique externe $R = R_c^{ext}$ du niveau moléculaire excité.
On peut remarquer sur la Fig. 3.2, qu'à longue distance, la fonction d'onde de collision peut recouvrir efficacement la fonction d'onde du niveau excité et, par conséquent, favoriser la photoassociation. De plus, la densité de paires d'atomes variant approximativement comme

[1] L'énergie de collision des atomes dans un piège magnéto-optique est d'environ $E = k_B \times 150\ \mu\text{K} \approx h \times 3$ MHz.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

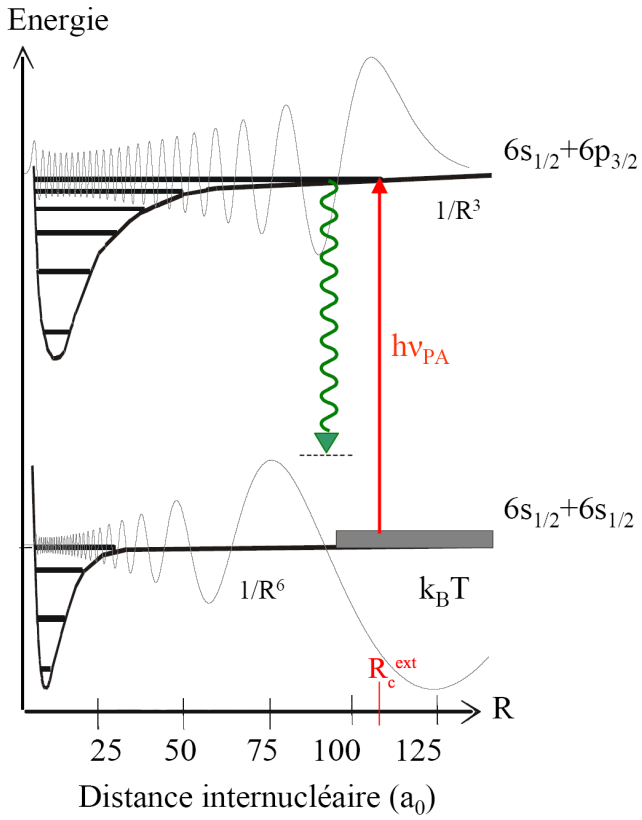

FIG. 3.2 – Principe de la photoassociation. Nous avons représenté la fonction d'onde radiale initiale des atomes en collision ainsi que celle de l'état excité du niveau de rotation-vibration atteint par photoassociation. L'excitation a lieu au point tournant classique externe R_c^{ext} où le recouvrement des fonctions d'ondes radiales initiale et finale est important. La probabilité d'émission spontanée se produit elle aussi essentiellement à grande distance internucléaire.

le carré de la distance interatomique, la réaction de photoassociation est encore plus probable quand cette distance augmente. On forme donc, par photoassociation, des molécules de très grande élongation (typiquement ≈ 100 a_0).

Ces molécules de grande élongation ont une très faible probabilité de se désexciter spontanément vers un état lié de l'état fondamental. En effet, de telles molécules excitées, en raison de leur mouvement très localisé sur le bord externe du potentiel, se désexcitent de manière privilégiée à grande distance. A ces distances, la densité d'états vibrationnels des potentiels corrélés à la limite $6s_{1/2}+6s_{1/2}$, dont la forme du potentiel varie asymptotiquement en C_6/R^6, est très faible. Les molécules se désexcitent donc vers le continuum de l'état fondamental en se dissociant en deux atomes libres chauds. La durée de vie des états moléculaires excités est de l'ordre de celle des atomes excités, c'est-à-dire environ 30 ns.

3.2.2 Taux de photoassociation

Différentes théories de la photoassociation [Bohn and Julienne, 1999, Pillet et al., 1997, Napolitano, 1997, Javanainen and Mackie, 1998] ont été élaborées, s'accordant toutes sur l'expression du taux de photoassociation. On peut en trouver un résumé dans ([Vanhaecke, 2003]

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

p34). L'ensemble de ces théories permet de comprendre les formes [2] et les intensités des raies de photoassociation.
Le taux de photoassociation, qui n'est autre que le nombre de molécules formées dans l'état excité par atome et par seconde, peut s'écrire sous la forme :

$$\mathcal{R}_{PA} = \frac{(2\pi\hbar)^2}{(\mu k_B T)^{3/2}} \sum_{l=0}^{+\infty} (2l+1) \int d^3r \int_0^{\infty} dE \frac{n_{at}(\boldsymbol{r}) \quad e^{-E/k_B T} \quad 2\pi\,\hbar\gamma\,(\hbar\Omega_l(\boldsymbol{r}))^2}{[E + h\nu_{PA} - E_{v,J}]^2 + [\hbar\gamma/2 + (\hbar\Omega_l(\boldsymbol{r}))^2]^2} \quad (3.2)$$

où $(\hbar\Omega_l(\boldsymbol{r}))^2 = |\langle\psi_f^{mol}(R)|\,\boldsymbol{D}\cdot\boldsymbol{\mathcal{E}}_{PA}(\boldsymbol{r})\,|\psi_i^{coll}(R)\rangle|^2$ *décrit le couplage dipolaire électrique entre l'état initial collisionnel, d'énergie* E*, et l'état final moléculaire, d'énergie* $E_{v,J}$*.* R *représente la distance internucléaire et* $\boldsymbol{D}$*, le moment dipolaire électronique moléculaire.* $\boldsymbol{\mathcal{E}}_{PA}$ *est le vecteur champ électrique associé au laser de photoassociation et* $h\nu_{PA}$ *est l'énergie du photon de photoasociation.* γ*, appelé taux de perte, rend compte généralement du taux de désexcitation spontanée depuis le niveau moléculaire excité.* $n_{at}(\boldsymbol{r})$ *représente la densité d'atomes du piège au point* $\boldsymbol{r}$*.* μ *est la masse réduite des atomes en collision, et* T *leur température.* l *est le moment cinétique orbital de la particule relative décrivant la collision, il permet de prendre en compte la contribution des différentes ondes partielles au processus.*

L'expression de ce taux de photoassociation fait intervenir deux intégrales : l'intégrale sur les variables d'espace traduit la variation de la densité atomique au sein du piège mais également la distribution en intensité du laser de photoassociation. L'intégrale sur l'énergie de collision E prend en compte la distribution des états de collisions dans le continuum d'énergie. Elle est pondérée par une statistique de Maxwell-Boltzmann, supposant l'échantillon atomique à la température T. Le profil lorentzien témoigne du caractère résonant de la réaction de photoassociation et permet de considérer le phénomène d'émission spontanée en introduisant le taux de désexcitation γ. La sommation sur l fait intervenir la contribution des différentes ondes partielles (s, p, d, ...) au processus collisionnel.

Pour estimer ce taux de photoassociation (Eq. (3.2)), il faut donc calculer le terme du couplage radiatif entre l'état du continuum et l'état final lié ([Drag, 2000] p71, [Laburthe-Tolra, 2001] p251, [Comparat, 1999] p190) :

$$\hbar\Omega = \langle\psi_f^{mol}(R)|\,\boldsymbol{D}\cdot\boldsymbol{\mathcal{E}}_{PA}(\boldsymbol{r})\,|\psi_i^{coll}(R)\rangle$$

L'état initial $|\psi_i^{coll}(R)\rangle$ est considéré comme une superposition d'ondes partielles évoluant dans un potentiel singulet ou triplet. On peut l'écrire comme une combinaison linéaire des fonctions propres :

$$\underbrace{Y_l^{M_l}(\theta,\phi)}_{angulaire}\ \underbrace{|^{2S+1}\Sigma^+_{(-1)^S}(R)\rangle}_{electronique}\ \underbrace{\frac{G_{E,l}(R)}{R}}_{radiale} \quad (3.3)$$

L'état final $|\psi_f^{mol}(R)\rangle$ peut, lui, être écrit comme un combinaison linéaire des fonctions propres :

$$\underbrace{\psi^{Rot}(\theta,\phi)}_{angulaire}\ \underbrace{|\Omega_{g,u}^{(+,-)}(R)\rangle}_{electronique}\ \underbrace{\frac{\psi^{Vib}(R)}{R}}_{radiale} \quad (3.4)$$

[2] L'étude de la forme des raies de PA est traitée en détail dans la Sec. 3.4.3.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

On a alors :

$$\hbar\Omega = \mathcal{E}_{PA} \int \psi^{Vib}(R)\, D_q(R)\, G_{E,l}(R)\, dR \tag{3.5}$$

où $D_q(R) \propto \langle \Omega_{g,u}^{(+,-)}(R)|\, D_q\, |^{2S+1}\Sigma^+_{(-1)^S}(R)\rangle$ *est le dipôle de la transition moléculaire, suivant l'axe* q*. Les termes angulaires sont compris dans le facteur de proportionnalité.*

Le terme purement électronique $\langle \Omega_{g,u}^{(+,-)}(R)|\, D_q\, |^{2S+1}\Sigma^+_{(-1)^S}(R)\rangle$ est le moment dipolaire de la transition, relié au moment dipolaire atomique. Nous allons faire, dans un premier temps, l'hypothèse que celui-ci ne varie que peu en fonction de la distance interatomique [Vatasescu, 1999]. Nous obtenons alors :

$$\hbar\Omega \propto \int_0^{+\infty} \psi^{Vib}(R)\, G_{E,l}(R)\, dR \tag{3.6}$$

Nous allons maintenant simplifier l'expression du recouvrement de ces fonctions d'ondes radiales dans l'approximation delta.
Les fonctions d'ondes associées aux niveaux vibrationnels du potentiel de la molécule excitée sont très localisées sur le bord externe du puits, c'est-à-dire au point tournant classique externe R_C^{ext}. On peut ainsi considérer que toute la contribution au terme de recouvrement se fait au niveau du point tournant externe de la fonction d'onde excitée. Cette approximation, dite delta[3], nous permet d'écrire dans le cas d'un potentiel excité variant asymptotiquement en C_n/R^n :

$$(\hbar\Omega)^2 \propto |G_{E,l}(R_C^{ext})|^2 (R_C^{ext})^{n/2} \tag{3.7}$$

Le taux de photoassociation est donc proportionnel au module carré de la fonction d'onde radiale initiale évaluée au point tournant externe du potentiel moléculaire excité. Le processus de photoassociation permet ainsi de sonder la fonction d'onde radiale de l'état fondamental.

On peut faire une seconde approximation concernant ce terme de couplage entre le continuum et l'état moléculaire excité. En effet, en dessous d'une certaine énergie, dépendante de l'atome considéré, le régime de loi de seuil de Wigner [Wigner, 1948] est valable[4] et la dépendance en énergie du carré de la fonction d'onde de collision est donnée par :

$$|G_{E,l}(R_C^{ext})|^2 \propto E^{(l+1/2)} \tag{3.8}$$

d'où

$$(\hbar\Omega)^2 \propto E^{(l+1/2)} \tag{3.9}$$

Le spectre de photoassociation, obtenu sous l'asymptote $6s_{1/2} + 6p_{3/2}$, est présenté sur la Fig. 3.3. Les raies de photoassociation sont détectées en perte de fluorescence du MOT et en signal d'ions moléculaires (voir Sec. 3.3.4). L'expression du taux de photoassociation (3.2) ainsi que les approximations successives que l'on a effectuées nous permettent de comprendre certaines caractéristiques de ce spectre. L'intensité de chaque raie reflète le recouvrement entre la fonction d'onde de collision et la fonction d'onde de la molécule excitée. La modulation de l'intensité des raies permet d'extraire la position des noeuds de la fonction d'onde de collision (Eq. 3.7) et d'en déduire la longueur de diffusion des atomes de césium

[3] Cela revient à remplacer la fonction d'onde de l'état excité par une fonction proportionnelle à $\delta(R - R_C^{ext})$.
[4] Nous verrons dans la section 3.4.3 que cette loi de seuil n'est valable, pour l'atome de césium collisionnant en onde s, que pour des températures inférieures à ≈ 10 nK.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

[Drag et al., 2000].
L'utilisation d'une résonance de Feshbach peut permettre de contrôler le taux de photoassociation, et ceci en ayant préalablement polarisé les atomes dans l'état hyperfin de plus basse énergie [Laburthe Tolra et al., 2003]. La fonction d'onde de collision peut, en effet, être modifiée grâce à un champ magnétique. Sur la Fig. 3.3, on voit que le niveau $v = 37$ du potentiel 0_g^- est inaccessible par photoassociation, puisque son point tournant externe correspond à un zéro de la fonction d'onde de collision. En appliquant simplement un champ magnétique, on peut déphaser cette fonction d'onde et rendre possible la photoassociation vers ce niveau, permettant par la même occasion la production de molécules froides.

Les expressions (3.2) et (3.9) nous permettent aussi de reproduire la forme des raies de photoassociation et d'en extraire la température de l'échantillon atomique photoassocié. Ce point sera étudié en détail dans la Sec. 3.4.3.

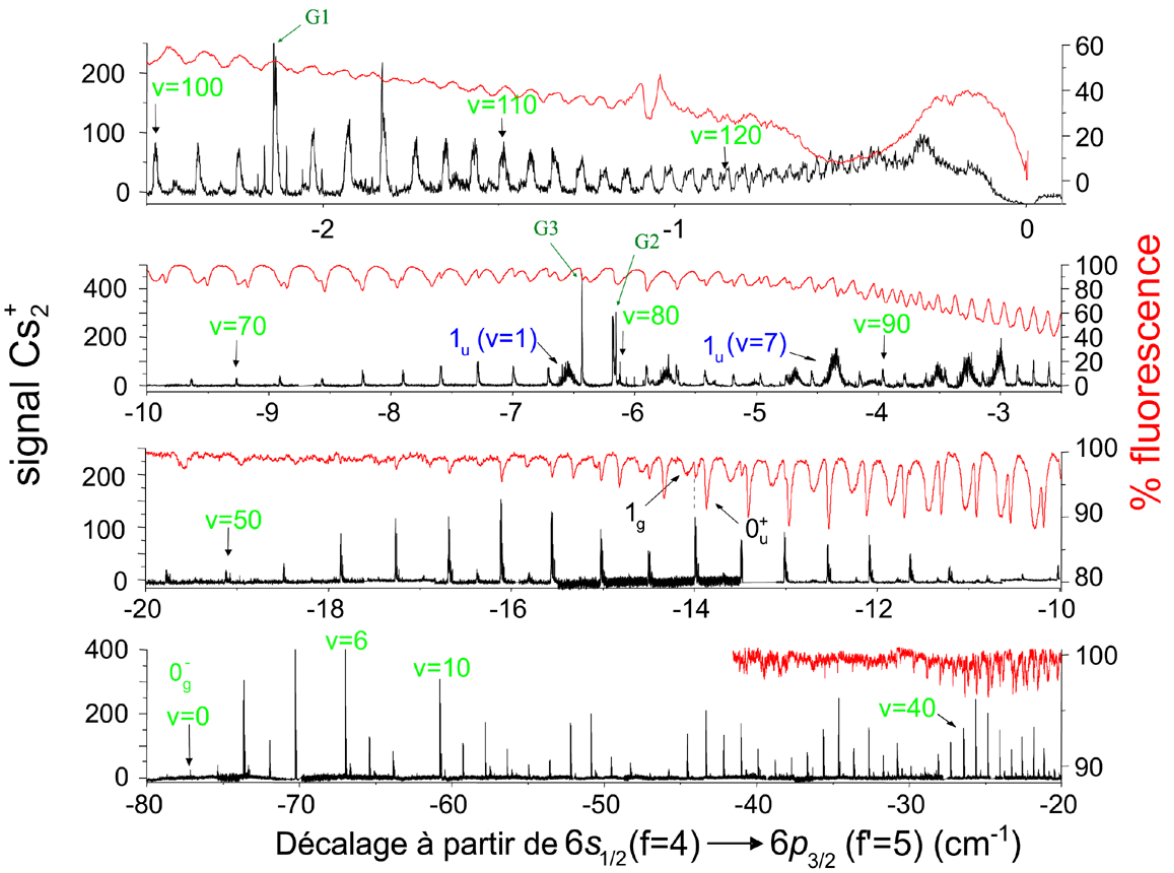

FIG. 3.3 – Spectre de photoassociation réalisé sous l'asymptote $6s_{1/2} + 6p_{3/2}$. Les raies de photoassociation sont détectées soit en perte de fluorescence (échelle verticale de droite) soit en signal d'ions moléculaires (échelle verticale de gauche). Le signal ionique détecté pour un décalage inférieur à -7 cm^{-1} correspond à la formation de molécules froides après photoassociation vers le potentiel 0_g^-. Cette figure est extraite de [Fioretti et al., 1999a].

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

3.2.3 Bref historique et intérêt de la photoassociation

La photoassociation fut pour la première fois suggérée en 1987 par [Thorsheim et al., 1987], avec le développement des premiers échantillons d'atomes froids. Il fallut attendre 1993 pour voir les premières réalisations expérimentales de la photoassociation, sur des atomes froids de sodium [Lett et al., 1993] et de rubidium [Cline and Heinzen, 1993]. Suivit ensuite la démonstration du processus sur le reste des alcalins, Li [Abraham et al., 1995b], K [Wang et al., 1996], Cs [Fioretti et al., 1998] qui permit d'ailleurs l'observation des premières molécules froides, et H [Mosk et al., 1999]. La photoassociation fut également réalisée sur des atomes d'hélium métastable, permettant l'observation de molécules excitées "géantes" (150 $a_0 \leq R \leq 1150\ a_0$) [Léonard et al., 2003], ainsi que sur quelques éléments alcalino-terreux Ca [Zinner et al., 2000], Sr [Nagel et al., 2005].
Désormais, le domaine des molécules froides s'oriente vers l'étude de la formation de molécules hétéronucléaires au moment dipolaire électrique permanent. Les premières mises en évidence de la photoassociation de ce type de molécules ont été réalisées récemment en 2004 sur RbCs [Kerman et al., 2004a, Kerman et al., 2004b] et KRb [Mancini et al., 2004].

Nous allons maintenant évoquer les différents intérêts qu'apporte la photoassociation d'atomes froids :

– Le premier que l'on peut citer réside dans la possibilité de réaliser une spectroscopie haute résolution (de l'ordre du MHz) des états moléculaires excités. Les principaux avantages qu'elle fournit par rapport à une spectroscopie moléculaire classique (excitation d'un état lié profond d'un potentiel électronique fondamental vers un état lié de la molécule excitée) viennent de la possibilité d'accéder aux niveaux vibrationnels les plus élevés du potentiel excité, mais aussi de sonder n'importe quel potentiel excité, quelle que soit sa symétrie.

– Le caractère à longue distance des états moléculaires $6s + 6p$ suggère que les interactions atomiques doivent dominer les effets moléculaires. La détermination de la variation à longue distance de ces potentiels (en R^{-3}) fait intervenir, comme on l'a déjà vu (voir explication de l'expression (3.5)), le moment dipolaire de transition entre les états atomiques $6s$ et $6p$ [Julienne and Vigué, 1991, Dulieu et al., 2003], qui nous donne la durée de vie atomique de l'état excité. La spectroscopie des états moléculaires à longue distance ouvre ainsi une nouvelle voie pour la détermination des durées de vie atomiques, dont les valeurs les plus précises sont désormais obtenues grâce à la photoassociation.

– L'intensité des raies de photoassociation reproduit, comme on l'a mentionné auparavant, l'amplitude de la fonction d'onde collisionnelle des deux atomes dans leur état fondamental. On peut alors extraire une valeur du paramètre crucial qu'est la longueur de diffusion des atomes photoassociés. Cette grandeur joue en effet un rôle fondamental dans la réalisation de condensats de Bose-Einstein.

– Un autre intérêt de la photoassociation et qui n'est pas des moindres, est la possibilité de former des molécules froides stables, c'est-à-dire des molécules dans un de leurs deux états fondamentaux électroniques. Ce résultat fut pour la première fois observé au laboratoire Aimé Cotton en 1998 [Fioretti et al., 1998].
Nous allons maintenant expliquer le processus de formation de molécules froides de césium.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

3.2.4 Formation de molécules ultrafroides : cas du césium

Avant de décrire le processus de formation de molécules froides, nous tenons à préciser ce que l'on entend par molécules froides. On attribuera cette notion de température en référence à des énergies de translation du centre de masse des molécules. Les températures associées aux degrés de liberté de vibration, déterminées par une statistique de Maxwell-Boltzman ne sont, elles, pas nécessairement froides. Dans la suite du manuscrit, nous ne ferons pas de différence entre les termes "froid" et "ultrafroid" ; les molécules que nous étudions sont uniquement des molécules ultrafroides.

Pour décrire la formation des molécules froides, nous allons nous restreindre au cas du césium qui a été étudié en détail par mes prédécesseurs ([Comparat, 1999] p203, [Drag, 2000] p82, [Laburthe-Tolra, 2001] p163).
La molécule de césium présente sept potentiels électroniques à longue distance pouvant être peuplés par photoassociation, quatre sous la limite $6s_{1/2} + 6p_{3/2}$ (1_g, 0_u^+, 0_g^-, 1_u) (voir Fig. 3.4) et trois sous la limite $6s_{1/2} + 6p_{1/2}$ (0_u^+, 1_g, 0_g^-). Lorsque ces molécules excitées sont obtenues à partir d'un échantillon d'atomes froids, leur température est alors celle des atomes photoassociés (à l'énergie de photon de recul près). La désexcitation spontanée de ces molécules apparaît donc comme un moyen évident d'obtenir des molécules froides stables (ou métastables) dans un de leurs états électroniques fondamentaux. Cependant, comme on l'a vu précédemment, la photoassociation est un processus qui se produit à longue distance, et la probabilité d'obtenir par émission spontanée des molécules stables est alors très faible. *Dans la plupart des cas, les molécules froides excitées se dissocient en deux atomes libres.* C'est le cas des potentiels excités 0_u^+ et 1_g sous la limite $6s_{1/2} + 6p_{3/2}$ et 1_g sous $6s_{1/2} + 6p_{1/2}$.
Nous allons maintenant expliquer les différents mécanismes conduisant à la formation de molécules froides après photoassociation d'atomes froids :

- La première observation de molécules froides dans les états fondamentaux électroniques a été réalisée au laboratoire Aimé Cotton en 1997, après photoassociation des états 0_g^- et 1_u sous la limite de dissociation $6s_{1/2} + 6p_{3/2}$ [Fioretti et al., 1998]. Elle fait intervenir un mécanisme qui permet un taux important de production de molécules froides. Ces états sont caractérisés par une structure de leur potentiel électronique en double puits (voir Fig. 3.4), résultat de croisements évités dûs à l'interaction spin-orbite avec des états de même symétrie, reliés à l'asymptote $6s_{1/2} + 6p_{1/2}$. Cette structure particulière permet l'existence d'une barrière de potentiel assez douce à des distances interatomiques moyennes. La fonction d'onde d'un niveau moléculaire lié possède alors une amplitude importante au voisinage du point tournant interne du second puits. Ainsi, la probabilité de désexcitation vers les niveaux liés des états fondamentaux devient non négligeable.

Le point tournant interne de l'état 0_g^- [Fioretti et al., 1999a] est situé entre 22.75 a_0 ($v = 0$) et 16.5 a_0 ($v \leq 130$). Dans le cas de la photoassociation de l'état 0_g^-, la désexcitation ((iii) sur la Fig. 3.4) se produit vers un état de symétrie *ungerade*, en l'occurrence vers des niveaux vibrationnels généralement élevés de l'état triplet $a^3\Sigma_u^+$.
On peut remarquer sur le spectre de photoassociation de l'état 0_g^- (voir Fig. 3.3) trois raies (G1, G2, G3) qui mènent à une formation de molécules froides très efficace. L'amplitude importante des raies G1 et G2 s'explique par l'existence d'un mécanisme d'effet tunnel entre les deux puits du potentiel 0_g^- [Vatasescu et al., 2000]. Les molécules excitées formées présentent alors une grande probabilité de présence à courte distance (environ 13 a_0) et se

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

désexcitent vers les niveaux les plus profonds du potentiel triplet $a^3\Sigma_u^+$. La raie G3 n'a, quant à elle, pas encore reçu d'interprétation.

Le point tournant interne de l'état 1_u [Comparat et al., 2000] est, lui, situé à des distances interatomiques plus grandes que celles de l'état 0_g^-, entre 32 a_0 ($v = 0$) et 27 a_0 ($v = 14$). Dans le cas du césium, la symétrie gerade/ungerade des molécules, assurée par l'interaction d'échange, est brisée par la structure hyperfine atomique très importante. En effet, au-delà d'environ 23 a_0, l'interaction d'échange devient moins importante que l'interaction hyperfine, et la symétrie g/u n'est plus bonne. Les molécules froides produites à partir de l'état 1_u ((ii) sur la Fig. 3.4) sont par conséquent dans des états de symétrie mélangée, peuplant les derniers niveaux sous la limite de dissociation.

La structure en double puits impose aux atomes liés de ce genre de molécules excitées d'avoir un mouvement toujours confiné à de grandes ou moyennes distances (entre 17 à 200 a_0) ; on qualifie alors ces systèmes de *molécules purement longue distance* [Stwalley et al., 1978]. Ces systèmes présentent des caractéristiques très intéressantes puisqu'ils s'inscrivent à la frontière de la physique atomique et de la physique moléculaire. Le terme d'interaction d'échange devient par exemple complètement négligeable devant les termes d'interaction multipolaires.
De tels potentiels en double puits sont présents pour tous les dimères d'alcalins, et sont situés à des distances de plus en plus grandes pour des atomes de plus en plus légers. La formation de molécules froides stables s'avère donc plus favorable à partir d'un échantillon d'atomes de césium.

- Un autre mécanisme favorable à la formation de molécules froides a déjà été mis en évidence après photoassociation dans l'état 0_u^+, corrélé à la limite $6s_{1/2} + 6p_{1/2}$. Cette observation s'explique par l'existence d'un couplage résonant de niveaux de l'état 0_u^+, corrélé à la limite $6s_{1/2} + 6p_{1/2}$, avec un niveau vibrationnel de l'état de même symétrie 0_u^+, corrélé à la limite $6s_{1/2} + 6p_{3/2}$ [Dion et al., 2001]. Du fait de ce couplage, la molécule excitée oscille dans chacun des potentiels électroniques, ce qui augmente la probabilité de présence à courte distance de la molécule (voir Fig. 3.5). Des calculs montrent qu'il existe un niveau lié dans le potentiel 0_u^+ sous $6p_{3/2}$, situé environ 7 cm^{-1} sous la limite de dissociation $6p_{1/2}$. Ce niveau vibrationnel est situé à courte distance interatomique. La proximité en énergie de ce niveau avec les niveaux de l'état 0_u^+ sous $6p_{1/2}$ entraîne un couplage résonant, qui est formellement équivalent au couplage proche d'une résonance de Feshbach. Les calculs entrepris ont montré, grâce à ce couplage, la probabilité accrue d'une désexcitation vers les états liés du potentiel fondamental singulet $X^1\Sigma_g^+$. Le mécanisme mis en évidence pour 0_u^+ dans le cas du césium, est particulièrement intéressant car les couplages résonants sont des phénomènes courants en physique moléculaire ; il peut donc être généralisable à de nombreux autres systèmes.

- La formation de molécules froides de césium a aussi été observée après photoassociation de l'état 0_g^- sous la limite de dissociation $6s_{1/2} + 6p_{1/2}$. Cet état possède une structure particulière, différente de celle des autres états excités, puisque le potentiel se comporte asymptotiquement en C_6/R^6. Ceci n'est pas favorable à la réaction de photoassociation elle-même, car il s'agit alors de photoassociation à plus courte portée que dans le cas d'un potentiel en C_3/R^3. Cependant, comme on l'a vu précédemment, le taux de photoassociation dépend de la forme du potentiel excité, et ce taux est plus important dans le cas d'un comportement asymptotique en C_6/R^6 (terme en $(R_C^{ext})^{n/2}$ dans Eq. (3.7)). De plus, comme

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

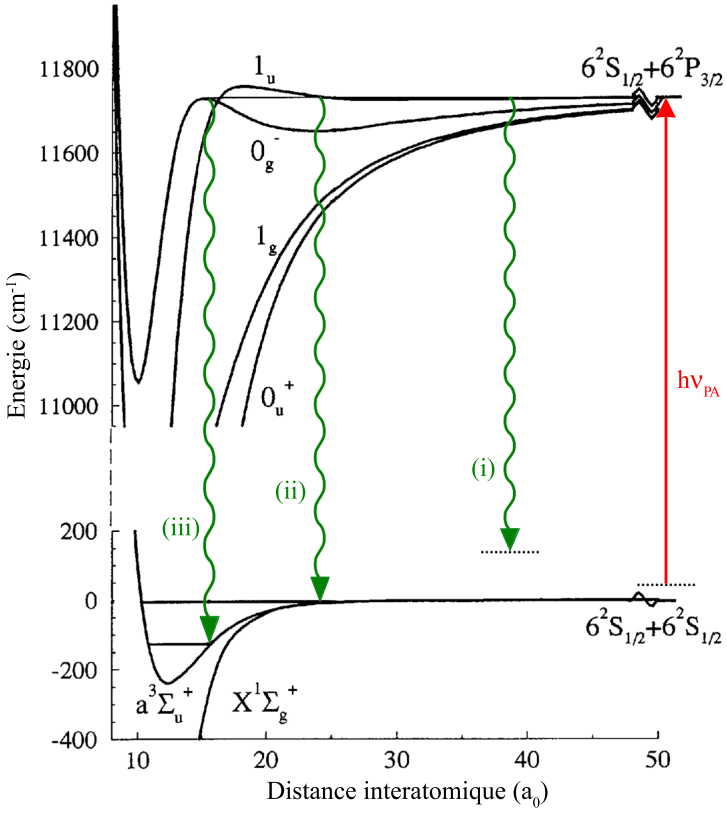

FIG. 3.4 – Principe de la formation de molécules froides après photoassociation vers les potentiels excités 0_g^- et 1_u sous la limite de dissociation $6s_{1/2} + 6p_{3/2}$ du césium. On remarque la structure en double puits des potentiels excités. Les branches répulsives à distance intermédiaire sont suffisamment peu raides pour favoriser la désexcitation radiative au point tournant interne des puits de potentiels externes (cas (ii) pour le potentiel 1_u et cas (iii) pour le potentiel 0_g^-). Cette désexcitation est une transition lié-lié menant à la production d'une molécule froide stable ($X^1\Sigma_g^+$) ou métastable ($a^3\Sigma_u^+$).

il s'agit de molécules excitées de faible élongation, la probabilité de désexcitation vers l'état fondamental triplet est accrue. Ces deux arguments expliquent pourquoi on peut, dans ce cas, détecter des molécules froides.
Ce mécanisme présente un intérêt important et encourageant concernant la possibilité de former des molécules froides hétéronucléaires. En effet, de telles molécules diffèrent des molécules homonucléaires en ce que les potentiels excités se comportent asymptotiquement en C_6/R^6.

En ce qui concerne le taux de formation de molécules froides, une fois le taux de photoassociation connu, il est principalement donné par le facteur de Franck-Condon entre le niveau vibrationnel v excité et le niveau vibrationnel v' de l'état fondamental :

$$\mathcal{R}_{mol} \approx \sum_{v'} |\langle v|v'\rangle|^2 \mathcal{R}_{PA} \tag{3.10}$$

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

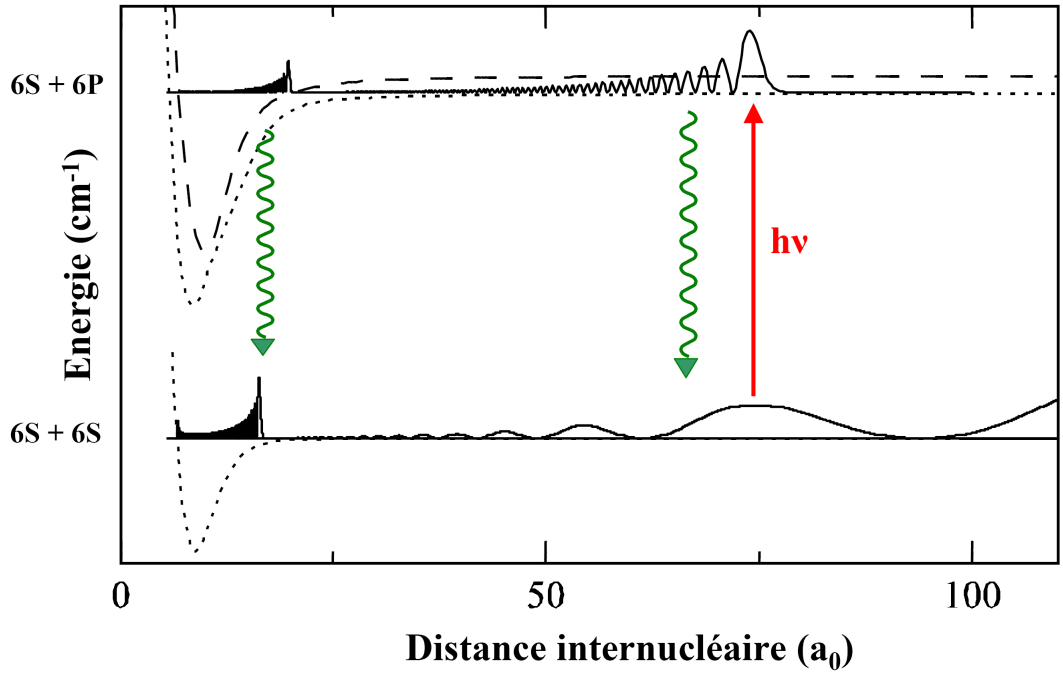

FIG. 3.5 – Principe de la formation de molécules froides après photoassociation vers le potentiel excité 0_u^+ sous la limite asymptotique $6s_{1/2} + 6p_{1/2}$. L'existence d'un couplage résonant en zone interne du potentiel modifie la fonction d'onde de l'état excité et rend favorable la formation de molécules froides.

Les valeurs que l'on obtient typiquement dans nos expériences, en photoassociant l'état 0_g^- $(6s_{1/2} + 6p_{3/2})$ de l'atome de césium, sont de l'ordre de $\mathcal{R}_{PA} \approx 0,1 - 5$ s^{-1} par atome et $\mathcal{R}_{mol} \approx 0,05 - 0,2$ s^{-1} par atome. On produit alors quelques millions de molécules froides par seconde dans notre piège magnéto-optique.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

3.3 Description du dispositif expérimental

Le dispositif que nous allons présenter est celui grâce auquel ont été réalisées les premières expériences de photoassociation au laboratoire Aimé Cotton. Il a fait l'objet, au cours du temps, de nombreuses modifications, mais conserve globalement le même principe de fonctionnement. A mon arrivée, l'enceinte à vide venait juste d'être modifiée, fournissant de nouveaux accès optiques pour des lasers tels que le laser CO_2. Les vannes à vide contenant du Viton, une sorte de caoutchouc susceptible de dégazer à basse pression, ont été délaissées au profit de vannes entièrement métalliques. Deux pompes ioniques Varian assurant le vide dynamique et une sublimation titane, permettant de renouveler le pouvoir d'adsorption des parois en les tapissant de titane, ont été installées. Ce dispositif a permis un gain d'environ un ordre de grandeur sur la pression à l'intérieur de l'enceinte, par rapport au dispositif précédent. On mesure, à l'aide d'une jauge, des pressions de l'ordre de 2×10^{-10} mbar. Les expériences sont réalisées à partir d'un gaz d'atomes froids, issu d'un piège magnéto-optique chargé par une vapeur de césium. Les molécules froides sont formées à l'aide d'un laser Ti:Sa ; leur piégeage est rendu possible en utilisant un laser CO_2. La particularité essentielle de ce dispositif réside dans le système de détection des molécules froides. Nous pouvons, en effet, détecter directement ces molécules. Elles sont d'abord ionisées grâce à un laser pulsé, puis les ions moléculaires et atomiques sont accélérés à travers deux grilles vers des galettes micro-canaux.
Nous allons décrire maintenant les différentes parties du dispositif expérimental (voir Fig. 3.6) qui nous a permis le piégeage dipolaire de molécules froides de césium. On pourra trouver dans les thèses de mes prédécesseurs de plus amples détails concernant ce montage ([Comparat, 1999] p121, [Drag, 2000] p91, [Laburthe-Tolra, 2001] p11, [Vanhaecke, 2003] p44).

3.3.1 Le Piège Magnéto-Optique (MOT)

Notre piège magnéto-optique peut être chargé de deux façons différentes à partir d'une vapeur d'atomes de césium. La première consiste à charger le piège grâce à une ampoule de césium liquide à 300 K, qui dégaze dans l'enceinte à vide. Le flux de vapeur est régulé à l'aide d'une vanne qui sépare l'enceinte du compartiment où se trouve l'ampoule. La deuxième alternative qui s'offre à nous consiste à charger le piège à partir de trois "dispensers" de césium répartis judicieusement dans l'enceinte. En faisant passer un courant dans chacun d'entre eux, ils libèrent une quantité de césium dirigée vers le MOT, permettant un chargement efficace et réduisant la pression de vapeur de césium résiduelle. Ce dernier dispositif n'a, jusqu'à présent, jamais été utilisé lors de la réalisation de pièges dipolaires, mais il pourra se révéler utile lorsque l'on voudra optimiser leur durée de vie.
Le gradient de champ magnétique du MOT est réalisé grâce à deux bobines d'axe vertical, de rayon 7,5 cm et séparées d'une distance d'environ 7 cm. Parcourues par un courant avoisinant 12 A [5], elles créent un gradient de champ d'environ 13 G cm^{-1} suivant l'axe vertical.
Les six faisceaux du MOT sont issus d'une diode de puissance, dite esclave, injectée par une diode fine spectralement, dite maître. La diode esclave est une diode de type SDL 5422-H1, d'une puissance maximale de 150 mW. La diode maître est une diode DBR de type SDL 5712-H1, de puissance 100 mW et de largeur spectrale d'environ 3 MHz. Elle est asservie par détection synchrone sur une transition hyperfine [6] de la raie D_2 en utilisant un signal d'absorption saturée sur une vapeur de césium. Le signal d'erreur rétroagit sur l'alimentation en courant de la diode. Le faisceau de la diode maître traverse un modulateur acousto-optique

[5] Chaque bobine est constituée de 115 tours de fils de cuivre.
[6] Croisement ($6s_{1/2}$ f=4 $\longrightarrow$ $6p_{3/2}$ f'=4) $\times$ ($6s_{1/2}$ f=4 $\longrightarrow$ $6p_{3/2}$ f'=5).

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

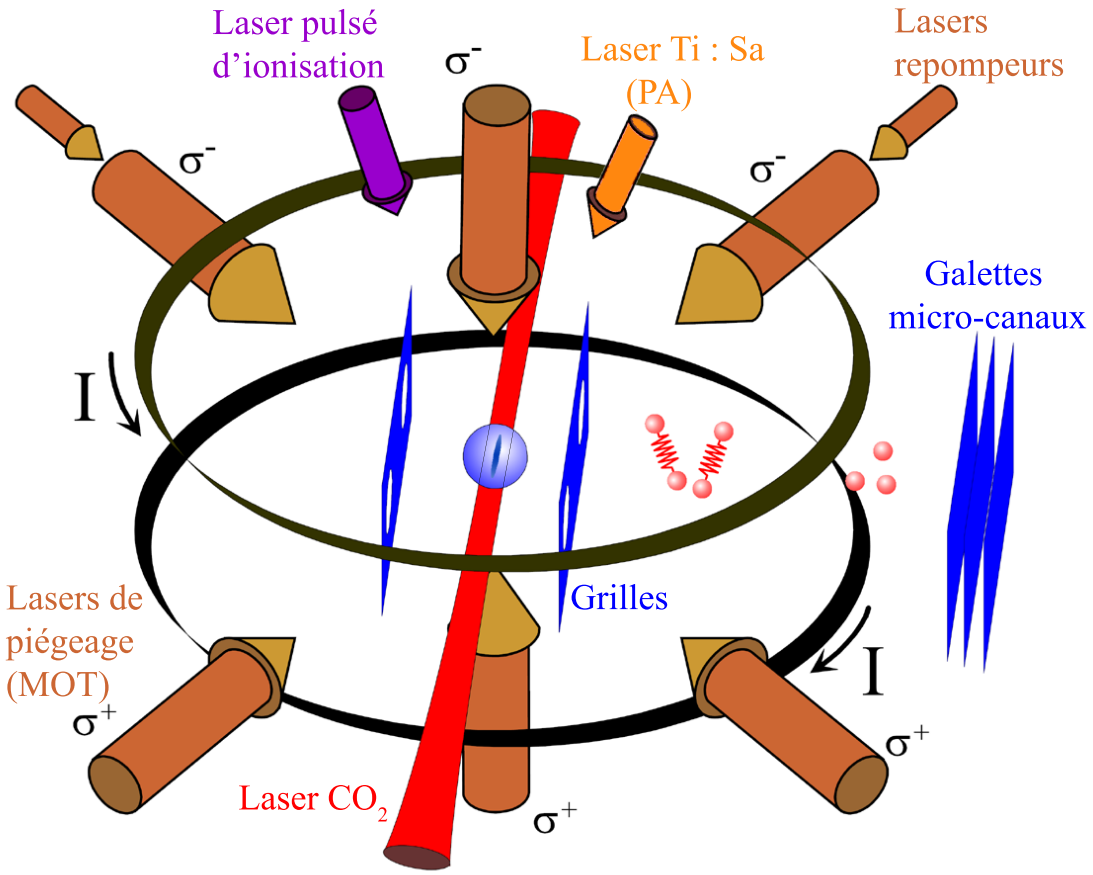

FIG. 3.6 – Représentation globale du dispositif expérimental. Nous avons représenté les éléments du piège magnéto-optique (lasers du MOT, lasers repompeur, et bobines de champ magnétique), le laser de piégeage dipolaire (CO_2) de direction horizontale et focalisé sur le MOT, le laser de photoassociation (Ti:Sa), et le laser pulsé d'ionisation. Le MOT est entouré de deux grilles accélératrices, percées de trous pour laisser passer les faisceaux horizontaux du piège magnéto-optique. Les ions atomiques et moléculaires sont séparés durant leur phase d'accélération et sont dirigés vers des galettes micro-canaux.

en double passage, ce qui permet de faire varier sa fréquence sans changer sa direction de propagation et donc sans modifier les conditions d'injection de la diode esclave. La fréquence des lasers de piégeage a été optimisée de façon à maximiser le nombre d'atomes dans le piège. Elle correspond à un décalage d'environ -2,5 Γ [7] vers le rouge de la transition hyperfine $6s_{1/2}$ f=4 $\longrightarrow$ $6p_{3/2}$ f'=5.
Le laser de repompage, ramenant vers le niveau excité $f' = 4$ les atomes qui se sont désexcités vers le niveau fondamental $f = 3$ est, lui aussi, une diode DBR de type SDL 5412-H1. Il est asservi sur la transition ($6s_{1/2}$ f=3 $\longrightarrow$ $6p_{3/2}$ f'=4) en utilisant un signal d'absorption simple.

Le MOT contient environ 10^7 atomes et la densité au centre du piège est de l'ordre de 2×10^{10} cm^{-3}. Le piège, de forme sphérique, a un rayon d'environ 300 μm. La température des atomes y est typiquement de l'ordre de la température Doppler, c'est-à-dire environ 125 μK.

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

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

3.3.2 Le piège dipolaire : laser CO_2

La réalisation du piège dipolaire est effectuée en focalisant un laser CO_2 au sein du piège magnéto-optique. Le principe de piégeage est décrit au chapitre 1.

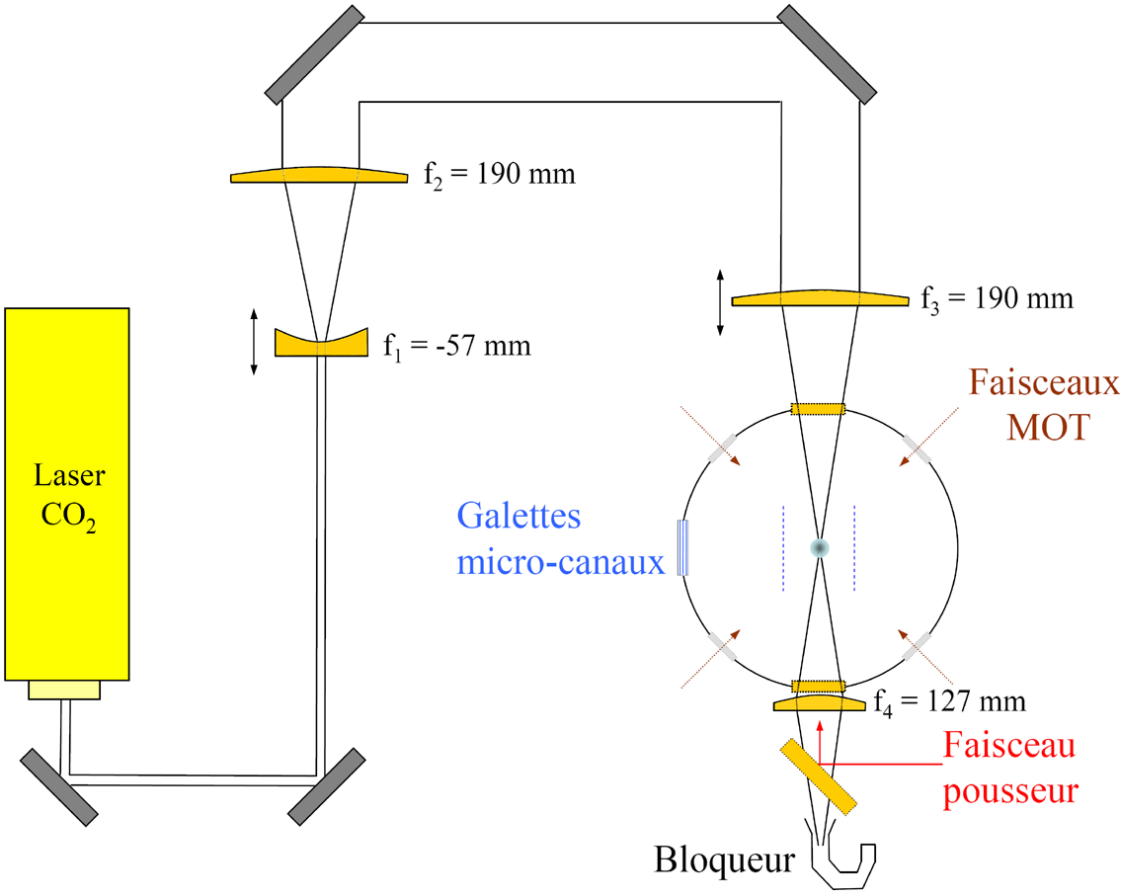

FIG. 3.7 – Système optique du piège dipolaire. Les distances usuelles intervenant dans le dispositif sont : $f_1 \rightarrow f_2 = 123$ mm, $f_2 \rightarrow f_3 = 663$ mm, $f_3 \rightarrow$ hublot ZnSe $= 80$ mm, hublot ZnSe $\rightarrow$ MOT $= 125$ mm. Les lentilles f_1 et f_2 sont montées sur platine micrométrique de façon à pouvoir modifier la taille du faisceau au niveau du MOT. Un faisceau laser "pousseur" peut être envoyé dans la même direction que le laser CO_2 pour chasser les atomes du piège dipolaire et ne garder que les molécules froides.

Laser CO_2

La partie centrale de l'expérience est constituée du laser de piégeage CO_2 et des optiques qui lui sont associées pour créer le confinement dipolaire.
Nous utilisons un laser industriel CO_2 d'une puissance continue effective d'environ 110 W (modèle Firestar f100 de Synrad). Ce laser est pompé par une onde radio-fréquence de puissance 1200 W à 40,68 MHz. Le régime de fonctionnement du laser est contrôlé en ajustant par un signal TTL son "duty-cycle" de 1 à 100 %, 100 % correspondant à un régime continu. Pour modifier la puissance continue effective du laser, on change le duty-cycle, c'est-à-dire qu'on éteint plus ou moins longtemps le faisceau. On comprend alors qu'avec ce type de laser, on ne peut pas varier sa puissance en régime continu. On devra donc avoir recours à des

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

systèmes optiques supplémentaires pour la contrôler [8]. Le laser devra forcément fonctionner en régime continu lors de la séquence de piégeage pour éviter toute excitation paramétrique pouvant mener à un chauffage de l'échantillon.
Plus spécifiquement, d'après le fabricant, le laser émet dans la gamme de longueurs d'onde 10,2-10,7 μm, possède un waist d'environ 3,5 mm, une divergence inférieure à 4 mRad, et une polarisation linéaire dans le plan horizontal. Le mode spatial du faisceau est un TEM_{00} dont le facteur de correction M^2 est inférieur à 1,2. Pour donner une idée de l'aspect d'un tel laser, sa longueur est d'environ 70 cm et son poids aux alentours de 17 kg.
Ce laser est équipé d'une diode d'alignement émettant dans le visible (He-Ne), coalignée avec le faisceau laser CO_2.

Système optique et caractéristiques du piège

Le verre et le quartz étant opaques à la longueur d'onde du laser CO_2, les lentilles et les hublots de l'enceinte sont en séléniure de zinc (ZnSe) ; les miroirs, quant à eux, sont en silicium.
Le dispositif optique (voir Fig. 3.7) permettant la mise en forme du faisceau est constitué principalement de trois lentilles. Les deux premières réalisent un télescope et la dernière focalise le faisceau au centre de l'enceinte. La première (f1) et la dernière (f3) sont placées sur des platines micrométriques, assurant un déplacement le long de l'axe de propagation du laser, nous permettant ainsi un réglage très précis de la taille du point de focalisation.
Une quatrième lentille est placée en sortie de l'enceinte pour focaliser de nouveau le faisceau vers un bloqueur en cuivre, refroidi à l'eau.

Ce système optique a été modélisé préalablement grâce au logiciel OSLO Light edition [9], et nous a permis de finaliser le choix de la focale des lentilles, ainsi que de déterminer leur position. Nous avons choisi la configuration (voir Fig. 3.7) qui nous permettait de focaliser au maximum le faisceau laser, en minimisant les aberrations optiques, tout en tenant compte de nos contraintes expérimentales. On obtenait finalement un faisceau focalisé d'un waist d'environ 80 μm. Nous avons reproduit le montage sur une table optique, et la mesure du col du faisceau que l'on a effectuée au niveau du point de focalisation correspondait approximativement à celle prévue par le logiciel.
On peut maintenant déduire les caractéristiques [10] du potentiel dipolaire créé par le laser CO_2 pour des atomes et des molécules de césium (les formules utilisées sont données au chapitre 1) :

	Prof. Pot. U_0^{vert}	Fréquence radiale	Fréquence axiale
Atomes	965 μK	986 Hz	29 Hz
Molecules	1680 μK	921 Hz	27 Hz

Les paramètres des pièges dipolaires ont été calculés pour une puissance du laser CO_2 au niveau du MOT $P = 110$ W et un waist $w = 80$ μm. La longueur de Rayleigh correspond à $Z_R \approx 1,9$ mm.

[8] On pourrait utiliser des modulateurs acousto-optiques refroidis, comme par exemple le modèle AGM-408BB1 d'IntraAction Corp.
[9] C'est un logiciel gratuit disponible sur internet à l'adresse http ://www.lambdares.com/downloads/index.phtml.
[10] On inclut ici l'effet de la gravité.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

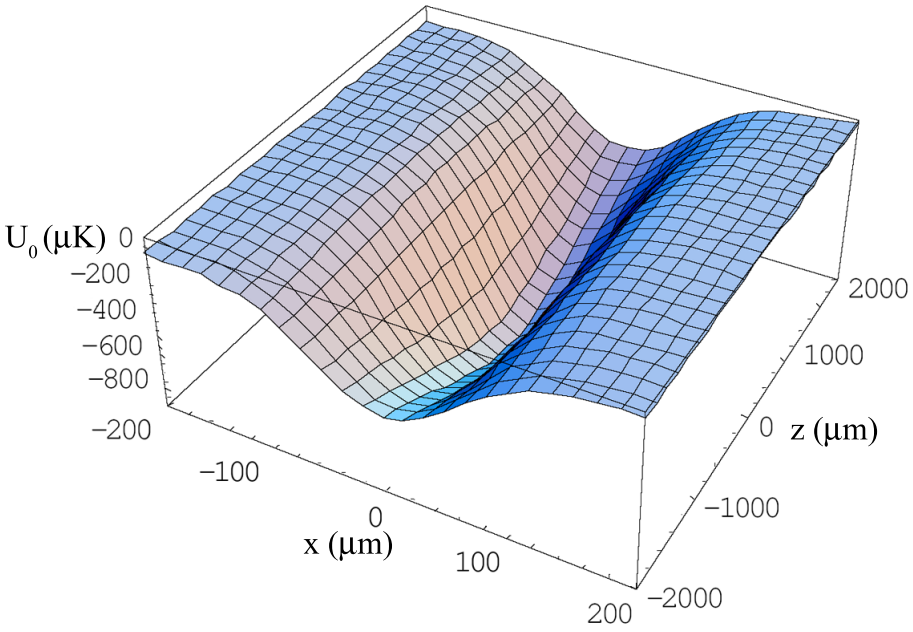

FIG. 3.8 – Représentation du potentiel du piège moléculaire, incluant la gravité, pour une puissance laser du CO_2 de 110 W et focalisé sur 80 μm. La valeur de la polarisabilité moléculaire utilisée est de $\approx 11,6 \times 10^{-39}$ C m^2/V [Tarnovsky et al., 1993]. Le potentiel est tracé en fonction de l'altitude x et de la coordonnée z selon la direction de propagation du faisceau. Les échelles suivant x et suivant z sont très différentes (un ordre de grandeur). Le piège est donc fortement asymétrique et se présente sous la forme d'un "cigare".

On a représenté sur la Fig. 3.8 le potentiel dipolaire moléculaire correspondant aux paramètres expérimentaux choisis. On peut remarquer que le potentiel suivant la direction de propagation du faisceau z est bien plus lâche que dans les deux autres directions. Le nuage moléculaire aura donc une extension spatiale bien plus grande suivant cette direction. Elle est, pour une température de 40 μK, de 415 μm suivant l'axe de propagation du faisceau et de 12 μm dans les deux autres directions.

Procédures d'alignement

Pour aligner le laser CO_2 sur le piège magnéto-optique, on dispose d'une diode laser SDL 5412-H1 montée en cavité étendue de type Littrow, dont le réseau est contrôlé par une cale piézo-électrique. Ce faisceau entre dans l'enceinte en empruntant le trajet inverse du laser CO_2 ; ceci est réalisé en utilisant un "beam combiner" [11].
L'asservissement de cette diode est réalisé en utilisant un signal d'absorption saturée et un signal d'erreur généré grâce à une modulation à 2 kHz de la cale. La diode laser est asservie sur le croisement ($6s_{1/2}$ f=4 $\longrightarrow$ $6p_{3/2}$ f'=4) $\times$ ($6s_{1/2}$ f=4 $\longrightarrow$ $6p_{3/2}$ f'=5) puis décalée de 125 MHz à l'aide d'un modulateur acousto-optique. Le faisceau laser issu de la diode est alors en résonance avec la transition atomique ($6s_{1/2}$ f=4 $\longrightarrow$ $6p_{3/2}$ f'=5). On aligne alors simplement cette diode laser sur le MOT en le détruisant. Le laser CO_2 est ensuite aligné sur la diode laser. Cette procédure permet un alignement grossier du laser de piégeage. Cette diode servira aussi de faisceau "pousseur" d'atomes lors des expériences de piégeage purement moléculaire.

[11] Le beam combiner est transparent à la longueur d'onde du CO_2 mais réfléchit le faisceau de la diode laser à 852 nm.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Une deuxième étape consiste à utiliser l'effet du laser CO_2 sur les atomes du MOT. Celui-ci induit, lorsqu'il est aligné avec le MOT, un déplacement lumineux des niveaux d'énergie des atomes, les rendant plus ou moins hors résonance (suivant leur position dans le laser CO_2) avec les faisceaux du piège magnéto-optique. Cet effet a pour conséquence de modifier la fluorescence émise par le piège.
Une partie de la fluorescence du piège est mesurée à l'aide d'une photodiode. Le laser CO_2 est utilisé en régime cyclique (duty-cycle de l'ordre de 30 %). La fluorescence du MOT va donc fluctuer de façon périodique à la fréquence d'allumage du laser CO_2. Pour détecter les variations de fluorescence dues au laser CO_2, on mesure le signal de la photodiode à l'aide d'une détection synchrone, dont la fréquence de référence est donnée par la fréquence d'allumage du laser CO_2 (signal extrait du signal TTL contrôlant l'allumage et l'extinction de l'onde radiofréquence). On aligne le laser CO_2 de façon à maximiser le signal en sortie de la détection synchrone.

3.3.3 La photoassociation : laser Ti:Sa

Le laser permettant de réaliser la photoassociation des atomes de césium est un laser Titane : Saphir (Ti:Sa) Coherent Ring 899. Ce laser continu monomode couvre des longueurs d'ondes comprises entre 700 et 1000 nm, ce qui nous permet d'atteindre les deux limites asymptotiques $6s_{1/2} + 6p_{1/2}$ et $6s_{1/2} + 6p_{3/2}$. Comme son nom l'indique, ce laser présente une cavité en anneau, dont l'intervalle spectral libre est de 280 MHz, et contient un isolateur de Faraday pour ne permettre qu'un seul sens de circulation. La sélection en longueur d'onde s'effectue à l'aide de trois éléments sélectifs inclus dans la cavité : un filtre de Lyot qui permet de fixer grossièrement la longueur d'onde, un étalon de Fabry-Perot fin (intervalle spectral libre de 225 GHz) et un étalon épais (intervalle spectral libre de 10 GHz). On peut effectuer des balayages en fréquence pouvant aller jusqu'à 30 GHz, sans saut de mode, par rotation contrôlée électroniquement d'une lame montée à Brewster, qui permet de changer la longueur de la cavité. Pendant ce balayage, l'épaisseur de l'étalon épais et la rotation de l'étalon mince sont synchronisées pour suivre le mode du laser. Une partie du faisceau de sortie est envoyée dans une cavité Fabry-Perot thermalisée, pour asservir le balayage. Notons que ce balayage n'est pas linéaire. La largeur spectrale en sortie du laser est de l'ordre du MHz.
Ce laser est pompé par un laser à gaz d'argon ionisé d'une puissance maximale en sortie d'environ 25 W. Le laser de pompe fonctionne typiquement à des puissances de l'ordre de 15 W pour obtenir environ 1 W en sortie du laser Ti:Sa.

Pour connaître la fréquence absolue de notre laser Ti:Sa, nous disposons d'un lambdamètre fibré (Angstrom WS-8), approprié aussi bien pour des mesures sur des faisceaux continus que sur des lasers pulsés. Son principe de fonctionnement repose sur une interférométrie obtenue à l'aide de six interféromètres Fizeau. Le résultat de la mesure est transmis par liaison USB à un ordinateur. Il est calibré en prélevant une partie du faisceau maître du piège magnéto-optique, asservie par absorption saturée. Capable de mesurer des longueurs d'onde comprises entre 350 et 1100 nm, il nous permet d'obtenir dans nos expériences une résolution d'environ 10 MHz sur la fréquence absolue du laser.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

3.3.4 La détection

Principe général de la détection

Un atout important de notre dispositif expérimental repose sur la technique de détection explicite des molécules froides que l'on forme. Ce montage nous permet la détection à la fois des molécules du piège mais aussi des atomes.
La détection de ces particules s'effectue en photoionisant les atomes et les molécules, puis en accélérant les ions produits à l'aide d'un champ électrique vers des galettes micro-canaux. Nous allons maintenant décrire toutes ces étapes.

Processus de photoionisation

Photoionisation des atomes : L'ionisation des atomes de césium s'effectue par une transition multiphotonique REMPI (Resonance Enhanced Multi-Photon Ionization), en utilisant un laser à colorant pulsé qui sera décrit dans la suite. L'observation de tels schémas d'ionisation s'explique par les fortes intensités mises en jeu avec ce genre de laser. L'énergie d'ionisation de l'atome de césium étant de $\lambda^{-1} = 31407$ cm^{-1}, on peut, en utilisant une transition à 3 photons de longueur d'onde d'environ 14150 cm^{-1}, ioniser un atome dans l'état fondamental $6s_{1/2}$. Le taux de photoionisation augmente considérablement quand la longueur d'onde du laser d'ionisation (λ_I) est en résonance avec un vrai niveau atomique intermédiaire (voir Fig. 3.10). En conséquence, nous utiliserons pour les atomes le schéma d'ionisation suivant :

$$6s_{1/2} \xrightarrow{2h\nu_I} 10s_{1/2} \xrightarrow{h\nu_I} Cs^+$$

$$\lambda_I^{-1} \approx 14150 \text{ cm}^{-1} \qquad \lambda_I \approx 706,7 \text{ nm}$$

Cette transition fournit, à partir de l'état fondamental, le taux d'ionisation multiphotonique le plus important.

Photoionisation des molécules : L'obtention d'ions moléculaires Cs_2^+, à partir de molécules de césium dans un de leur état fondamental électronique, est réalisée par un processus d'absorption à plusieurs photons de type REMPI, en utilisant le laser à colorant évoqué pour la détection des atomes. Le premier photon de cette transition multiphotonique est absorbé vers les niveaux de rotation-vibration des états électroniques $(2)^3\Pi_g(0_g^{+,-}, 1_g, 2_g)$ ou $(2)^3\Sigma_g^+(0_g^-)$, asymptotiquement corrélés aux limites de dissociation $6s_{1/2} + 5d_{3/2}$ et $6s_{1/2} + 5d_{5/2}$ (voir Fig. 3.9). Il a été montré [Dion et al., 2002] que l'efficacité du processus d'ionisation moléculaire en fonction de la longueur d'onde du laser pulsé ne dépend que de cette première étape d'absorption. Le second photon induit, quant à lui, une transition vers le continuum des états ionisés $Cs_2^+(X^2\Sigma_g^+)$ de la molécule de césium. Il est à noter que les états relais étant de symétrie g, ce processus ne permet que la détection des molécules dans l'état fondamental triplet $^3\Sigma_u^+$, d'après les règles de sélection des transitions dipolaires électriques. La détection de molécules froides produites par désexcitation radiative de l'état 1_u sous $6s_{1/2}+6p_{3/2}$ est possible car, après photoassociation, les molécules se désexcitent juste sous la limite de dissociation du fondamental, région dans laquelle les interactions hyperfines brisent la symétrie u/g.
La transition dipolaire $6s_{1/2} \longrightarrow 5d_{3/2,5/2}$ étant interdite, la détection est *a priori* peu efficace pour les derniers niveaux de rotation-vibration de l'état triplet. En effet, ce sont des états de très longue extension spatiale pour lesquels la vision d'atomes indépendants devient de plus

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

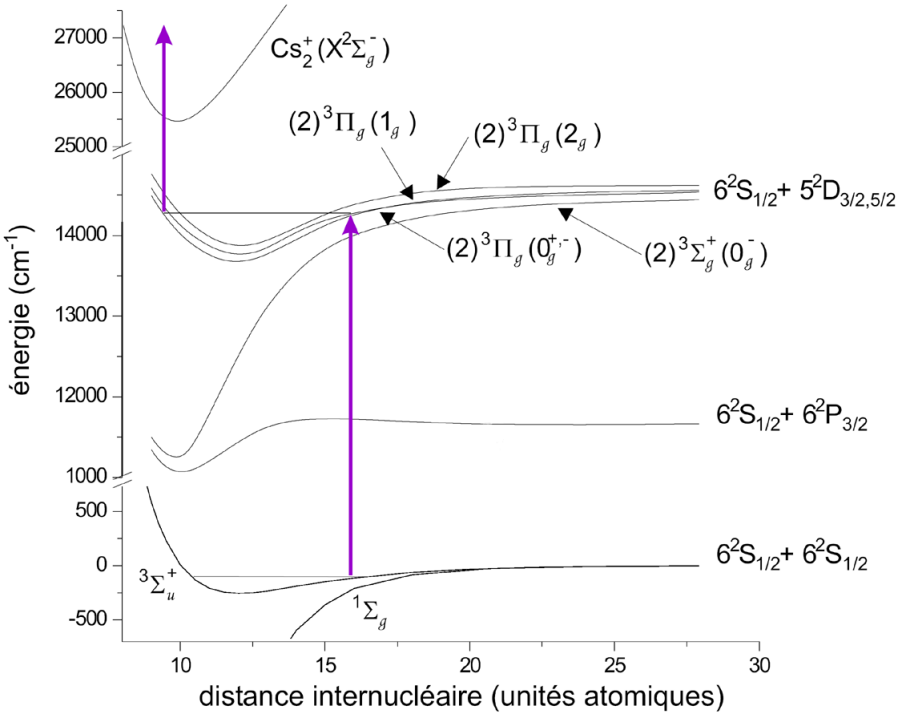

FIG. 3.9 – Schéma de détection à deux photons des molécules froides formées dans les niveaux de rotation-vibration du potentiel fondamental triplet $a^3\Sigma_u^+$.

en plus correcte.

La Fig. 3.10 présente des spectres d'ionisation atomique et moléculaire réalisés lors de la thèse de [Comparat, 1999]. Le spectre d'ionisation atomique présente les différentes transitions accessibles à partir des états $6s_{1/2}$ et $6p_{3/2}$. Trois spectres d'ionisation moléculaire sont reportés, correspondant à l'ionisation de molécules froides formées par photoassociation vers les états $v = 140$ et $v = 4$ du potentiel 0_g^- et $v = 1$ du potentiel 1_u, sous la limite de dissociation $6s_{1/2} + 6p_{3/2}$.
Les expériences de piégeage de molécules froides ont été réalisées principalement en photoassociant l'état 0_g^- sous $6s_{1/2} + 6p_{3/2}$. La longueur d'onde du laser à colorant pulsé était alors optimisée aux alentours de $\lambda_I^{-1} \approx 14030$ cm^{-1}, mais elle ne constitue pas un paramètre très sensible pour la détection des molécules froides. Lors de la photoionisation des molécules, on préférera se placer loin de toute résonance atomique qui provoque un signal d'ions Cs^+ conséquent, pouvant saturer le détecteur et perturbant ainsi la réception du signal des ions moléculaires.

Laser de photoionisation : Le processus de photoionisation que l'on a décrit est réalisé en utilisant un laser à colorant (Continuum ND6000) pompé par un laser Nd : YAG pulsé (Continuum Powerlite Precision 8050). Le laser à colorant est constitué d'une cavité oscillatrice en double réseau (2400 traits par mm), de type "Moya", et de deux cuves d'amplification. Le colorant utilisé pour la détection des atomes et des molécules froides est le LDS722, qui possède une bande de gain allant de 680 à 795 nm. La longueur d'onde du laser peut être ajustée à l'aide d'un réseau monté sur moteur et commandé par ordinateur, nous permettant

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

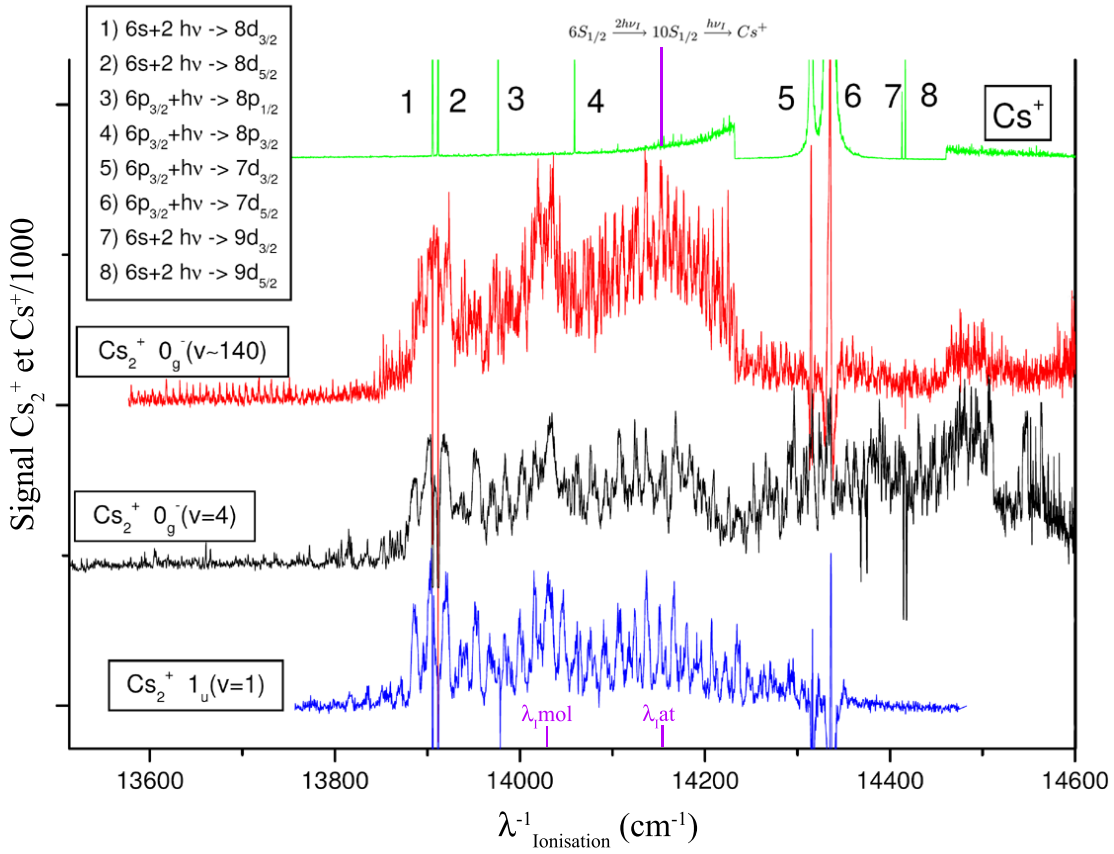

FIG. 3.10 – Spectre d'ionisation atomique et moléculaire. En haut, nous avons représenté le signal d'ions Cs^+, dont les raies sont clairement identifiées. Les atomes du piège dipolaire sont ionisés à la longeur d'onde λ_I correspondant à la transition multiphotonique $6s_{1/2} \xrightarrow{2h\nu_I} 10s_{1/2} \xrightarrow{h\nu_I} Cs^+$. Nous avons aussi reporté trois spectres, sur lesquels est représenté le nombre d'ions moléculaires Cs_2^+ en fonction de la longueur d'onde du laser pulsé, pour trois états photoassociés différents. Cette figure est extraite de [Comparat, 1999].

des incursions entre 13900 et 14500 cm^{-1} (690→719 nm). La largeur spectrale de ce laser est d'environ 0,05 cm^{-1}. Les trois cuves du laser à colorant (oscillateur, préamplificateur, amplificateur) sont pompées par un laser Nd : YAG doublé en fréquence (532 nm, durée d'impulsion 9 ns, 250 mJ/impulsion, largeur spectrale 1 cm^{-1}). Le taux de répétition est de 10 Hz, mais il peut aussi être réglé pour fonctionner à 50 Hz, en changeant simplement le miroir de fond de cavité et moyennant une petite manipulation du boîtier de contrôle électronique du laser.

La puissance disponible en sortie du laser à colorant est typiquement de l'ordre de 8 mJ/impulsion, ce qui correspond, après focalisation sur $\sim$ 1 mm^2, à une intensité d'environ 10^8 W/cm^2.

Détection des ions

Nous disposons, à l'intérieur de l'enceinte, de deux grilles en cuivre entourant le piège magnéto-optique. Ces grilles sont percées de deux trous elliptiques (6 mm × 8 mm) afin de

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

laisser passer les faisceaux du MOT. Elles sont séparées d'environ 1,57 cm et l'on peut créer entre-elles un champ électrique aussi bien pulsé que continu. Au cours de nos expériences de piégeage dipolaire, nous générons des impulsions électriques d'une dizaine de microsecondes et d'amplitude $\sim$ 1,5 kV.
Après la création des ions atomiques et/ou moléculaires par photoionisation, ils sont donc accélérés par une impulsion électrique vers des galettes micro-canaux. Ces ions passent d'abord une grille puis évoluent librement sur environ 6 cm dans une région sans champ électrique. Le temps de vol associé à ce parcours permet de séparer les ions atomiques Cs^+ des ions moléculaires Cs_2^+, puisque l'accélération due au champ électrique est inversement proportionnelle à leur masse. Les ions moléculaires étant deux fois plus lourds que les ions atomiques, leur temps de vol jusqu'au détecteur va être $\sqrt{2}$ fois plus long (voir Fig. 3.11).

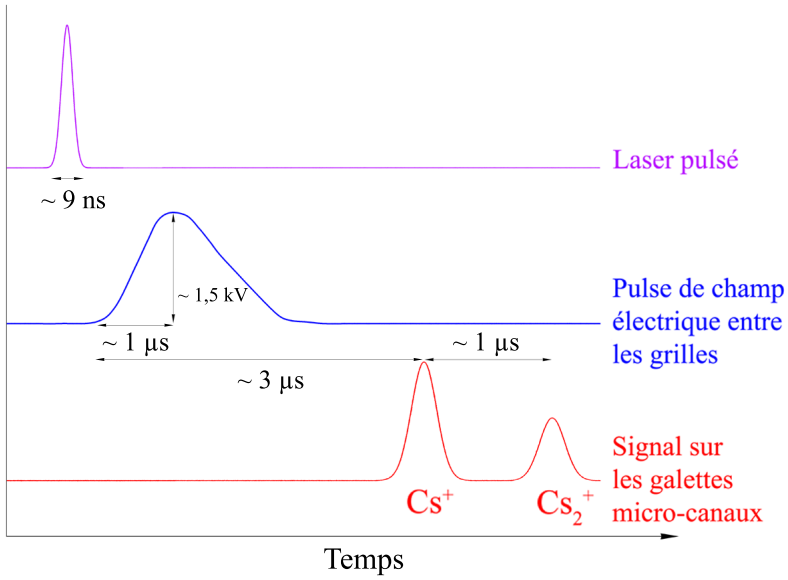

FIG. 3.11 – Signature temporelle de la détection des ions moléculaires et atomiques. Les ions moléculaires, plus lourds, arrivent plus tard sur les galettes micro-canaux. Les temps d'arrivée, entre les deux types d'ions, sont dans un rapport $\sim \sqrt{2}$.

Finalement les ions sont collectés par des galettes micro-canaux qui produisent par effet d'avalanche électronique un signal en courant que l'on enregistre. Un tel système de détection nous permet l'observation d'un ion unique sur le signal. Pour une alimentation des galettes de 2,27 kV, le signal enregistré par ion est triangulaire d'une durée d'environ 15 ns et d'une amplitude de 20 mV. Ces données nous permettent de calibrer le nombre d'atomes et/ou de molécules dans notre piège dipolaire.
Les signaux, résolus en temps, des ions atomiques et moléculaires sont enregistrés indépendamment par un ordinateur, à l'aide d'intégrateurs à portes ou "Box-Car" (Stanford Research Systems Inc. SR250). Afin de contrôler le déclenchement ou l'interruption de tous les éléments pilotables de l'expérience, nous disposons d'un ordinateur utilisant le système d'exploitation RTLinux. L'ordinateur génère les séquences temporelles par le biais d'une carte d'acquisition (PCL-812PG) couplée à des programmes de gestion écrits en langage RTLinux. Des générateurs d'impulsions (Stanford Research Systems Inc. DG535), déclenchés par l'ordinateur, ont aussi été utilisés pour la réalisation des séquences temporelles.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Efficacité de la détection

Pour les molécules :
L'efficacité du processus de photoionisation REMPI des molécules a été estimée à environ 10 %, en comparant les signaux donnés par les galettes micro-canaux à un signal de perte d'atomes dans un piège magnéto-optique. La recollection des ions dans les galettes, déterminée par le coefficient de transparence aux ions des grilles accélératrices, est de l'ordre de 90 %. L'efficacité des galettes micro-canaux est, quant à elle, de l'ordre de 35 %. On obtient finalement une efficacité totale de la détection des molécules froides d'environ 3 %, ce qui correspond à un seuil de détection de l'ordre de 100 molécules.

Pour les atomes :
Pour déduire le nombre d'atomes confinés dans notre piège dipolaire, il faudrait déterminer avant tout leur efficacité d'ionisation. Comme on l'a déjà mentionné, ce processus est une transition REMPI à trois photons, passant par l'état relais $10s_{1/2}$. La section efficace d'un tel schéma d'excitation s'avère très difficile à déterminer directement, et nous devrons donc contourner ce problème. La première possibilité est d'évaluer à l'aide d'une photodiode calibrée la perte de fluorescence ("trap loss") de notre piège magnéto-optique, lors du processus d'ionisation. On en déduit donc le nombre d'atomes ionisés et, par la même occasion, la section efficace. La deuxième méthode, assez indirecte mais à mon goût très élégante, consiste à étudier dans le piège dipolaire, les collisions inélastiques à deux corps entre atomes de césium dans le niveau hyperfin $f = 4$. Ces collisions ont été très largement étudiées dans la communauté scientifique [Lemonde et al., 1995, Engler, 2000, Mudrich, 2003, Guery-Odelin, 1998b]. Tous ces travaux convergent vers une valeur du taux de collisions à deux corps, qui nous permet, en étudiant l'évolution du nombre d'atomes du piège dipolaire, de déduire directement le nombre d'atomes initialement transférés. Cette méthode est décrite lors de l'étude du piège atomique en Sec. 3.4.2. On en déduit une efficacité totale de la détection des atomes d'environ 5 %.

3.4 Piégeage des atomes et des molécules

3.4.1 Chargement atomique du piège dipolaire

Le chargement du piège dipolaire s'effectue à partir d'un piège magnéto-optique, chargé par une vapeur de césium. L'efficacité du transfert des atomes de césium d'un MOT vers un piège dipolaire CO_2 a déjà été étudiée en détail dans les thèses effectuées à Heidelberg dans l'équipe de M. Weidemüller [Engler, 2000, Mudrich, 2003]. Nous avons globalement reproduit les techniques de chargement utilisées par ce groupe.

La séquence temporelle permettant le chargement du piège dipolaire est représentée sur la Fig. 3.12. Tout au long de l'expérience, le laser CO_2 est allumé en continu.
Après avoir coupé le gradient de champ magnétique du MOT, les atomes sont refroidis grâce à une phase de mélasse d'environ 15 ms, pendant laquelle les lasers du MOT sont décalés vers le rouge de la transition atomique $6s_{1/2}$ f=4 $\longrightarrow$ $6p_{3/2}$ f'=5 d'environ 27 Γ ($\approx$ 140 MHz). On a représenté sur la Fig. 3.13 , l'efficacité de transfert des atomes dans le piège dipolaire en fonction du désaccord des faisceaux du MOT pendant la mélasse. Cette étude a été réalisée en mesurant le nombre d'atomes après deux secondes de piégeage. A l'issue d'une telle mélasse et sans laser CO_2, les atomes atteignent des températures de l'ordre de 10 μK ; cependant, en présence du laser de piégeage, la dynamique du refroidissement se trouve modifiée et les températures au sein du piège sont supérieures. On peut se reporter aux thèses

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

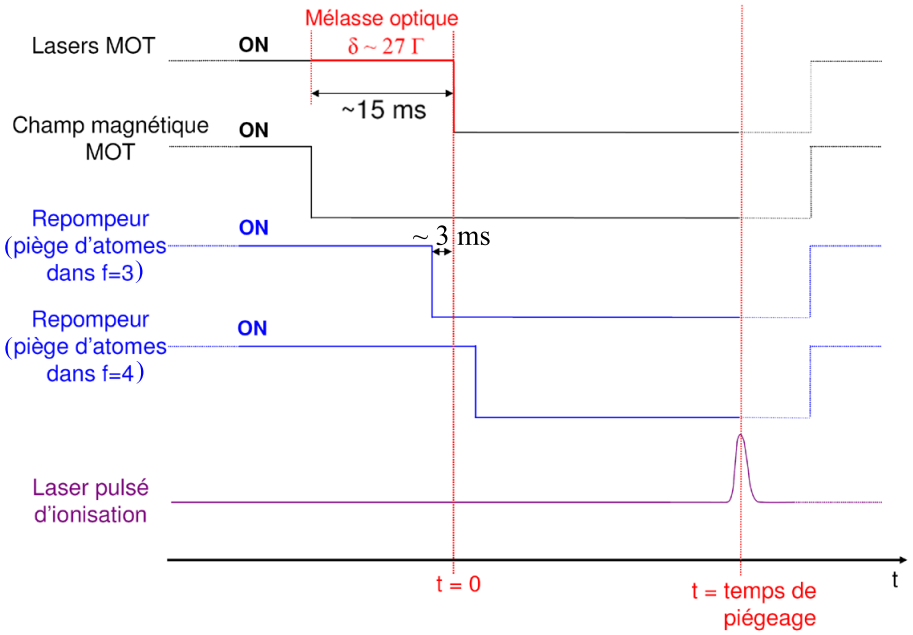

FIG. 3.12 – Séquence temporelle appliquée lors du chargement du piège atomique dipolaire. Nous avons représenté deux types de piégeage, l'un où le laser repompeur du MOT est coupé avant la phase de mélasse, pour piéger des atomes dans leur niveau fondamental $f = 3$, et l'autre, où il est coupé après, pour piéger des atomes dans le niveau hyperfin $f = 4$.

déjà mentionnées pour une étude détaillée du phénomène. Notre dispositif expérimental ne nous permet pas actuellement de sonder aisément la température du piège atomique, puisque nous n'avons pas de système d'imagerie permettant sa détermination par simple temps de vol. Nous verrons ultérieurement qu'en étudiant la forme des raies de photoassociation des atomes du piège, on peut déduire une estimation de cette température. Après cette phase de mélasse, les températures attendues dans le piège dipolaire [Engler, 2000, Mudrich, 2003] sont de l'ordre de 40 μK. Le décalage en fréquence est réalisé grâce à un dispositif électronique qui modifie de façon contrôlée la consigne du courant d'alimentation de la diode maître du MOT. La température des atomes de césium étant bien inférieure à la profondeur du piège dipolaire ($\approx$ 1 mK), l'efficacité du transfert est principalement déterminée par le recouvrement spatial du MOT avec le piège dipolaire. Il convient donc d'ajuster précisément l'alignement et la position du point de focalisation du laser CO_2. Dans nos expériences, l'efficacité de transfert des atomes du MOT vers le piège CO_2 est typiquement de l'ordre de 3 %.

Après la phase de mélasse, les lasers du MOT et repompeur doivent être complètement éteints pour éviter toute perturbation du piège dipolaire. Les faisceaux sont coupés en supprimant brusquement les ondes radio-fréquences des différents modulateurs acousto-optiques. Ce n'est cependant pas suffisant pour une extinction complète des faisceaux. On doit donc rajouter des obturateurs mécaniques pour assurer cette condition. Ces obturateurs ont été réalisés par notre groupe sur une idée originale tirée de la référence [Singer et al., 2002].

Les atomes peuvent être préparés dans un des deux niveaux hyperfins de l'état fondamental $6s_{1/2}$. Le piégeage d'atomes dans le niveau $f = 3$ est réalisé en coupant le faisceau repompeur quelques ms avant la fin de la phase de mélasse. Pour préparer les atomes dans le

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

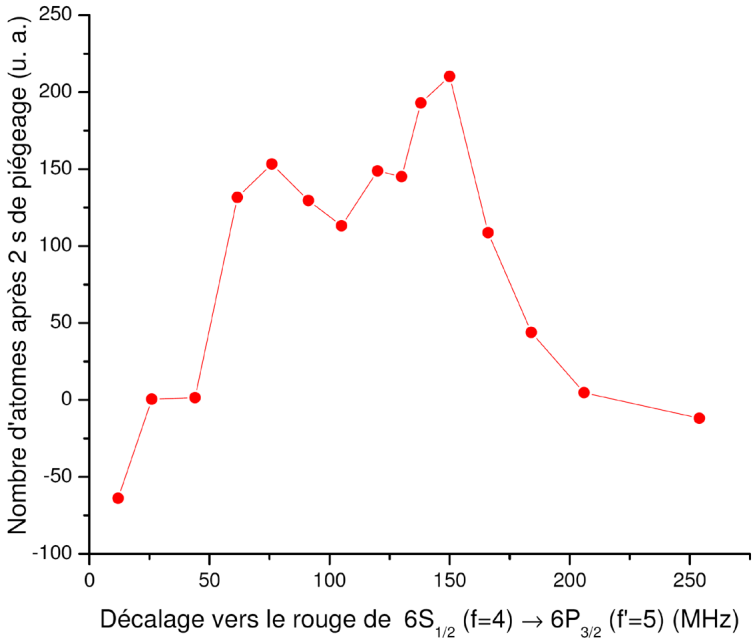

FIG. 3.13 – Mesure du nombre d'atomes (en unités arbitraires) transférés pour différents désaccords des lasers du MOT lors de la mélasse optique. Le nombre d'atomes, transférés dans le niveau $f = 3$, est observé après une séquence de piégeage de deux secondes.

niveau $f = 4$, il suffit de l'éteindre après la mélasse.

3.4.2 Piège atomique

Les premières expériences de piégeage que l'on a réalisées consistaient à étudier la durée de vie de notre piège dipolaire atomique. Nous avons effectué ces mesures en préparant les atomes soit dans le niveau hyperfin de plus haute énergie $f = 4$, soit dans le niveau hyperfin fondamental $f = 3$. Après avoir chargé les atomes du piège magnéto-optique dans le piège dipolaire, nous attendons un temps arbitraire avant de déclencher le laser d'ionisation. L'intervalle de temps entre l'extinction des faisceaux du MOT et l'impulsion du laser d'ionisation détermine notre temps de piégeage. Une fois les atomes ionisés, on les accélère à l'aide d'un champ électrique vers les galettes micro-canaux. Cette séquence temporelle est décrite sur la Fig. 3.12 et la Fig. 3.11.
On a représenté sur la Fig. 3.14 l'évolution du nombre d'atomes piégés en fonction du temps de piégeage, pour les deux niveaux hyperfins. Chaque point correspond à une moyenne effectuée sur une quinzaine de cycles de piégeage. On peut remarquer tout de suite la décroissance exponentielle des atomes dans le niveau hyperfin $f = 3$, alors que la variation des atomes dans le niveau $f = 4$ est beaucoup plus rapide et ne suit pas une loi exponentielle.

Interprétation des courbes de décroissance

En général, la décroissance du nombre N_{Cs} des atomes d'un piège est liée à deux processsus collisionnels bien identifiés :

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

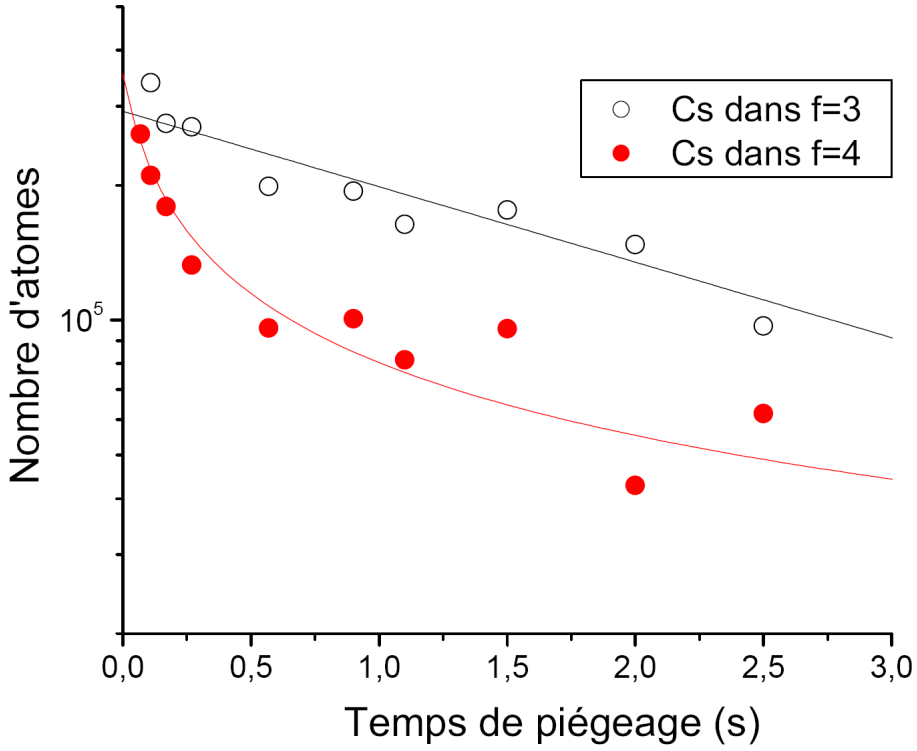

FIG. 3.14 – Evolution temporelle du nombre d'atomes dans le piège dipolaire. Deux cas sont représentés : en cercles vides, les atomes sont dans le niveau fondamental $f = 3$; en cercles pleins, les atomes sont dans le niveau $f = 4$. On remarque une chute clairement exponentielle du nombre d'atomes quand ils sont dans leur état fondamental. Elle est due aux collisions avec les particules du gaz résiduel. L'ajustement par une fonction exponentiellement décroissante de ce comportement nous donne une durée de vie de l'ordre de 2,7 s. Dans le cas d'atomes dans le niveau $f = 4$, on constate une décroissance très rapide aux temps courts, qui est due cette fois à des collisions inélastiques à deux corps. La décroissance du nombre d'atomes a été ajustée par la fonction (3.13) en fixant la valeur du taux de collisions à deux corps $G_{\rm Cs} = 1,1 \times 10^{-11}$ cm^3 s^{-1} [Mudrich et al., 2004]. Nous avons pu déduire de cet ajustement une valeur du nombre initial d'atomes transférés (voir texte) ainsi qu'une durée de vie de 2,8 s, compatible avec celle précédemment obtenue avec des atomes dans l'état $f = 3$.

– Le premier vient des collisions des atomes du piège avec le gaz résiduel chaud. La perte d'atomes liée à ce processus est exprimée par le terme $\alpha_{\rm Cs} N_{\rm Cs}(t)$ dans l'équation d'évolution du nombre de particules piégées (voir équation 3.11). $\alpha_{\rm Cs}^{-1}$ représente la durée de vie du piège, qui est estimée, en pratique, aux temps longs.

– La deuxième contribution vient des collisions binaires inélastiques qui ont lieu au sein du piège. Dans le cas d'une collision entre deux atomes de césium dans le niveau hyperfin de plus haute énergie $f = 4$, la réaction peut conduire à la production d'un ou de deux atomes dans le niveau $f = 3$:

$$|f = 4\rangle + |f = 4\rangle \longrightarrow |f = 4\rangle + |f = 3\rangle$$

ou

$$|f = 4\rangle + |f = 4\rangle \longrightarrow |f = 3\rangle + |f = 3\rangle$$

Après de telles collisions, les atomes partagent, sous forme d'énergie cinétique, l'énergie libérée due au changement d'état hyperfin, soit $\Delta E_{HF} = k_B \times 440$ mK si un seul atome

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

bascule, ou $2\Delta E_{HF}$ si les deux basculent. Dans les deux cas, l'énergie cinétique de chaque atome devient bien plus grande que la profondeur du piège, ≈ 1 mK, et les deux atomes sont perdus.
Dans l'équation d'évolution du nombre d'atomes, ce processus est pris en compte par un terme en $2G_{\rm Cs}\bar{n}_{\rm Cs}(t)N_{\rm Cs}(t)$, où $\bar{n}_{\rm Cs}(t)$ représente la densité moyenne de l'échantillon atomique et $G_{\rm Cs}$, le taux de collision à deux corps. Le facteur 2 prend en compte le fait qu'à la suite d'une telle collision inélastique, les deux atomes s'échappent du piège.

On peut maintenant écrire l'équation d'évolution [12] du nombre d'atomes :

$$\frac{dN_{\rm Cs}(t)}{dt} = -\alpha_{\rm Cs}N_{\rm Cs}(t) - 2G_{\rm Cs}\bar{n}_{\rm Cs}(t)N_{\rm Cs}(t) \tag{3.11}$$

Nous allons considérer notre piège dipolaire dans l'approximation harmonique et supposer une distribution gaussienne des atomes dans le piège. La densité moyenne s'exprime alors ainsi :

$$\bar{n}_{\rm Cs}(t) = \frac{N_{\rm Cs}(t)}{V_{\rm Cs}(T)} = N_{\rm Cs}(t)\omega_r^2\omega_z\left(\frac{4\pi k_B T(t)}{M_{\rm Cs}}\right)^{-3/2} \tag{3.12}$$

où ω_r et ω_z sont les fréquences radiale et longitudinale du piège dipolaire de volume effectif $V_{\rm Cs}(T)$, $M_{\rm Cs}$ est la masse des atomes du piège, et T, leur température.

Nous allons considérer par souci de simplicité le volume $V_{\rm Cs}(T)$ constant. Nous obtenons alors la solution de l'équation différentielle (3.11) :

$$N_{\rm Cs}(t) = N_{\rm Cs}(0)e^{-\alpha_{\rm Cs}t}\left(1 + 2\bar{n}_{\rm Cs}(0)\frac{G_{\rm Cs}(1-e^{-\alpha_{\rm Cs}t})}{\alpha_{\rm Cs}}\right)^{-1} \tag{3.13}$$

Nous avons représenté sur la Fig. 3.14 l'évolution d'un piège d'atomes préparés dans l'état hyperfin $f = 4$. On constate, aux temps courts et donc pour les fortes densités, une décroissance clairement non exponentielle du nombre d'atomes, témoignant de l'existence de collisions inélastiques à deux corps. Nous avons déjà évoqué la difficulté de déterminer le nombre d'atomes dans notre piège dipolaire. La méthode que nous avons retenue pour l'évaluer consiste à considérer comme connu le taux de collisions inélastiques à deux corps $G_{\rm Cs}$ et d'en déduire la densité initiale d'atomes transférés $\bar{n}_{\rm Cs}(0)$ puis le nombre d'atomes correspondants. Ces données ont donc été ajustées par la fonction (3.13), en fixant le paramètre $G_{\rm Cs} = 1,1 \pm 0,3 \times 10^{-11}$ cm^3 s^{-1} [Mudrich et al., 2004].

Après le chargement du piège dipolaire, nous obtenons une densité atomique moyenne de césium $\bar{n}_{\rm Cs}(0) \approx 4^{+4,4}_{-2,4} \times 10^{11}$ cm^{-3}. En considérant une température d'environ 40 μK, le nombre d'atomes initialement transférés est de l'ordre de $N_{\rm Cs}(0) \approx 3,5 \times 10^5$. L'efficacité du transfert des atomes du MOT vers le piège dipolaire est d'environ 3 %. La durée de vie du piège est, quant à elle, aux alentours de $\alpha_{\rm Cs}^{-1} \approx 2,8$ s.

[12] On peut trouver un description détaillée des équations d'évolution du nombre d'atomes, de leur densité, et de leur température dans ([Guery-Odelin, 1998b] p103, [Mudrich, 2003] p81).

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Pour les atomes préparés dans l'état hyperfin $f = 3$, on s'attend à une décroissance exponentielle du nombre d'atomes, puisque les collisions inélastiques sont interdites ($G_{\mathrm{Cs}} = 0$). Les données expérimentales (voir Fig. 3.14) reproduisent assez bien ce comportement. Après ajustement de ces données, on extrait une durée de vie du piège atomique $\alpha_{\mathrm{Cs}}^{-1} \approx 2,7$ s, ce qui est en bon accord avec la valeur trouvée précédemment.

3.4.3 Photassociation dans le piège atomique

Séquence temporelle

Nous venons de faire la démonstration du piégeage dipolaire d'atomes de césium. L'étape suivante pour réaliser un piège moléculaire consiste à photoassocier les atomes confinés dans le laser CO_2. L'optimisation du piège moléculaire a été réalisée en photoassociant le niveau de rotation-vibration (v=6, J=2) du potentiel 0_g^- corrélé à la limite $6s_{1/2} + 6p_{3/2}$.
Après la phase de mélasse optique et l'extinction des faisceaux laser, nous soumettons les atomes à une impulsion de photoassociation de durée bien déterminée. L'allumage et l'extinction du Ti :Sa sont contrôlés par un modulateur acousto-optique et un obturateur mécanique pour assurer la coupure complète du rayonnement.
Après avoir soigneusement aligné le laser de photoassociation sur le piège dipolaire et ajusté la taille du point de focalisation en optimisant le nombre de molécules froides créées [13], nous avons optimisé la durée de photoassociation. On peut voir le résultat de l'étude sur la Fig. 3.15. Le maximum de molécules froides transférées dans le piège est obtenu pour une durée d'illumination d'environ 30 ms. Le diminution du signal après 30 ms peut s'expliquer par la réexcitation des molécules froides par le biais d'un photon du Ti:Sa. Il est donc nécessaire de couper toute lumière lors des séquences de piégeage pour éviter ces pertes.

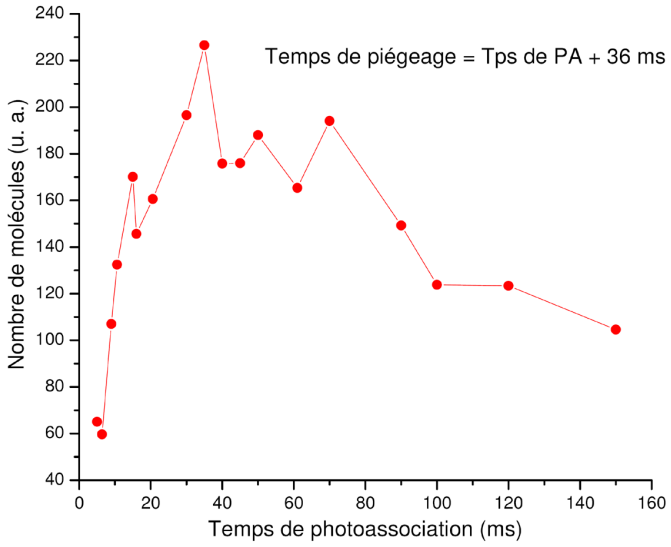

FIG. 3.15 – Nombre de molécules froides piégées en unité arbitraire en fonction du temps de photoassociation. L'intervalle de temps entre la fin de la période de photoassociation et la fin de la phase de piégeage est maintenu constant = 36 ms.

[13] Le laser est focalisé sur le piège dipolaire, avec un waist correspondant approximativement à la taille du piège. L'intensité lumineuse au sein du piège est d'environ 100 W cm^{-2}.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Spectres de photoassociation

Des spectres de photoassociation d'atomes de césium ont déjà été réalisés dans des pièges dipolaires [Wester et al., 2004]. Nous allons, dans cette section, comparer un spectre de photoassociation effectué dans notre piège magnéto-optique avec un spectre réalisé dans le piège dipolaire atomique. Cette comparaison nous fournira de nombreuses indications quant aux caractéristiques de notre piège dipolaire.

Nous avons représenté sur la Fig. 3.16 , un spectre de photoassociation réalisé dans le MOT, dans lequel on peut visualiser la progression rotationnelle ($J = 0$, 1, 2, 3) du niveau vibrationnel $v = 6$ du potentiel 0_g^- sous la limite $6s_{1/2} + 6p_{3/2}$. Un deuxième spectre a aussi été reporté sur cette figure, qui a été, lui, effectué dans le piège atomique, 40 ms après le chargement, en photoassociant le niveau de rotation-vibration ($v = 6$, $J = 2$) de ce même potentiel électronique.

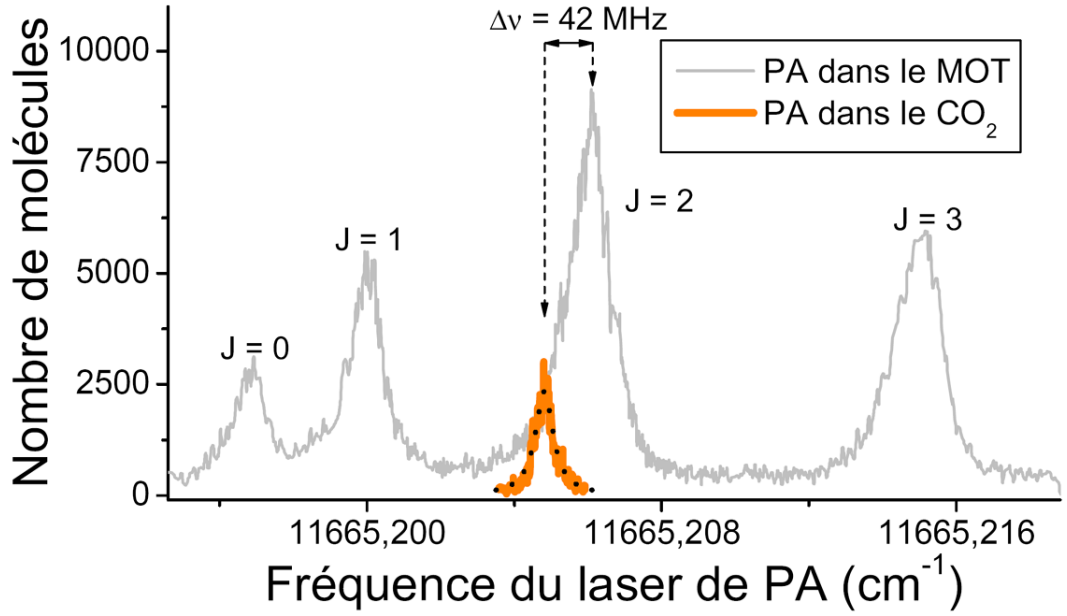

FIG. 3.16 – Spectres de photoassociation dans le piège magnéto-optique et dans le piège dipolaire. Le spectre de photoassociation dans le MOT représente la progression rotationnelle du niveau $v = 6$ du potentiel 0_g^- ($p_{3/2}$). L'état photoassocié dans le piège dipolaire est le niveau ($v = 6, J = 2$) du même potentiel. On peut remarquer le décalage entre les deux raies $J = 2$, qui témoigne du déplacement Stark des niveaux atomiques dans le laser CO_2. La mesure de ce décalage nous permet de déduire, entre autres, la profondeur de notre piège dipolaire. Nous avons également représenté, en pointillés sur cette figure, l'ajustement de la raie $J = 2$ obtenue dans le piège dipolaire pour déduire une estimation de la température des atomes dans le piège CO_2 (voir Sec. 3.4.3).

La première chose que l'on peut remarquer en comparant les deux raies $J = 2$, c'est le décalage vers le rouge de celle obtenue dans le piège dipolaire. Ce décalage en fréquence, de l'ordre de 42 MHz, vient de l'effet Stark dynamique induit par le laser CO_2 sur les atomes. Effectivement, le faisceau lumineux produit un déplacement des niveaux atomiques $6s_{1/2}$ et $6p_{3/2}$ reliés par la transition de photoassociation (voir Fig. 3.17).

Le déplacement maximum en fréquence $\Delta\nu$ attendu dépend de la polarisabilité des atomes

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

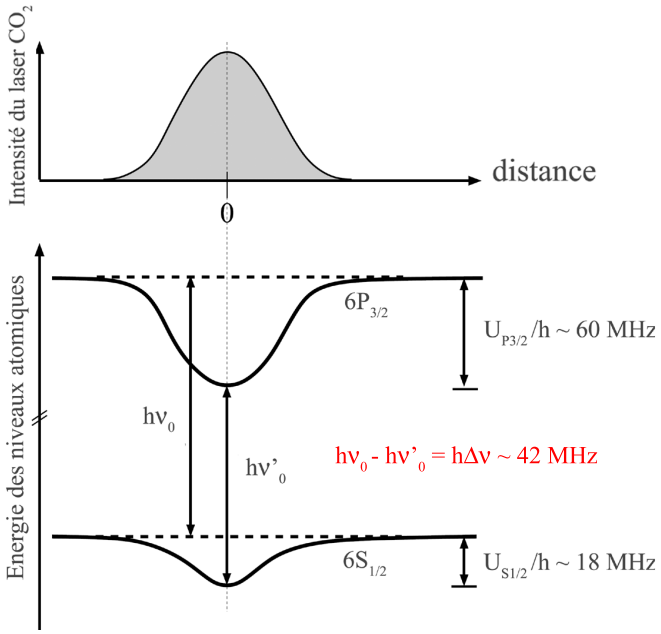

FIG. 3.17 – Illustration du décalage Stark des niveaux atomiques en présence du laser CO_2. Nous avons représenté en haut de la figure la distribution radiale en intensité du laser CO_2. Dans le bas de la figure, le déplacement lumineux des niveaux fondamental $6s_{1/2}$, $m_j = \pm 1/2$ et excité $6p_{3/2}$, $m_j = \pm 3/2$ est reproduit. Les valeurs des déplacements lumineux ont été calculées en considérant un waist du faisceau laser de $w = 84$ μm et une puissance laser de $P = 110$ W. On peut remarquer, en présence du laser CO_2, que les énergies de transitions atomiques sont plus faibles. En effet, le déplacement lumineux du niveaux excité $6p_{3/2}$ est bien plus important que celui du niveau fondamental $6s_{1/2}$.

dans leur niveau fondamental $6s_{1/2}$, α_{6s}^{stat}, et dans leur niveau excité $6p_{3/2}$, $\alpha_{6p_{3/2}}^{stat}$:

$$\Delta\nu = (\alpha_{6s}^{stat} - \alpha_{6p_{3/2}}^{stat}) \frac{1}{\pi h \epsilon_0 c} \frac{P}{w^2} \tag{3.14}$$

On prendra $\alpha_{6s}^{stat} = 6,63 \times 10^{-39}$ $C\ m^2/V$ *et* $\alpha_{6p_{3/2}}^{stat} = 21.8 \times 10^{-39}$ $C\ m^2/V$ *[Engler, 2000, Marrus et al., 1966]* P *est la puissance du laser, et* w*, le col du faisceau de piégeage.*

Connaissant le décalage $\Delta\nu$ et la puissance P de notre laser, on peut donc déduire une estimation du col du laser CO_2 et, par la même occasion, la profondeur du piège dipolaire. Le décalage en fréquence est estimé à ≈ 42 MHz, ce qui correspond, pour une puissance du laser CO_2 dans l'enceinte d'environ 110 W, à un waist d'environ 84 ± 4 μm et une profondeur de potentiel de $\approx 0,9$ mK pour les atomes et $\approx 1,5$ mK pour les molécules [14]. Ces résultats sont en bon accord avec la mesure de la taille du faisceau d'environ 80 μm. Nous retiendrons la valeur du waist déduite de la mesure du décalage Stark de la raie de photoassociation.

Toujours en étudiant la Fig. 3.16, nous allons tenter d'estimer la température des atomes du piège dipolaire. La température représente un paramètre majeur qui détermine la forme des raies de photoassociation. Nous allons expliquer la finesse de la raie obtenue dans le piège

[14] La profondeur du potentiel moléculaire est calculée avec la polarisabilité statique donnée dans [Tarnovsky et al., 1993].

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

dipolaire (≈ 16 MHz) comparée à celle obtenue dans le MOT (≈ 38 MHz). Nous allons, pour introduire l'analyse de la température, expliquer brièvement et dans un contexte général la forme des raies de photoassociation, légèrement asymétriques vers le côté rouge.

Forme des raies : On peut trouver dans les articles [Jones et al., 1999, Simoni et al., 2002, Tiesinga et al., 1996b] une étude détaillée de la forme des raies de photoassociation, qu'il est essentiel de comprendre si l'on veut réaliser une spectroscopie très fine d'états moléculaires et en déduire ainsi des paramètres aussi cruciaux que la longueur de diffusion. Nous nous intéressons à cette étude dans l'unique but de donner une estimation de la température de l'échantillon atomique dans le piège dipolaire. C'est l'expression (3.2) du taux de photoassociation qui permet de reproduire et de comprendre la forme des raies.

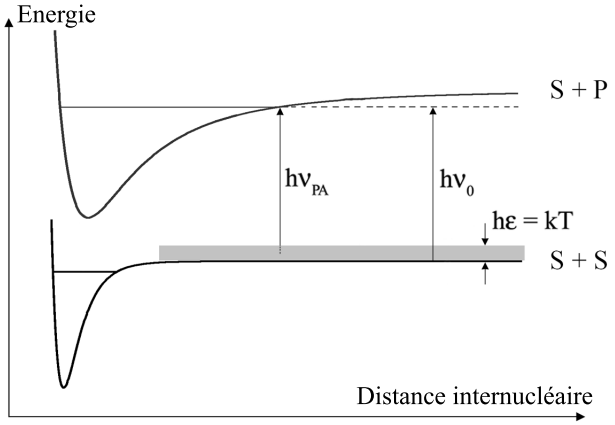

FIG. 3.18 – Schéma de photoassociation. Deux atomes entrent en collision à travers le potentiel fondamental $s+s$. Pour une distance internucléaire appropriée, un photon excite la molécule (atomes en collision) vers un potentiel moléculaire excité sous l'asymptote $s+p$, formant ainsi une molécule liée.

Nous avons représenté sur la Fig. 3.18 le schéma de base de la réaction de photoassociation. Si toutes les collisions entre atomes se produisaient à une énergie fixée $h\epsilon$, la raie de photoassociation serait une simple lorentzienne centrée sur la fréquence $\nu_0 - \epsilon$, comme indiqué sur la figure. La largeur de raie serait alors déterminée par la largeur naturelle Γ du niveau moléculaire excité [15]. Dans la suite, nous négligerons la largeur spectrale du laser de photoassociation, inférieure à 1 MHz, ainsi que les élargissements Doppler et collisionnels, puisque nous traitons le cas d'un gaz ultrafroid.
Dans la pratique, l'énergie de collision de la paire d'atomes n'est pas fixée. Elle suit plutôt une distribution thermique décrite par le facteur de Boltzmann, qui donne la probabilité qu'une collision d'énergie $h\epsilon$ se produise. La condition de résonance de photoassociation dépend ainsi de la dispersion en énergie et donc de la température $T = hT'/k_B$ (T' : température en unité de fréquence) de l'échantillon atomique. Pour des énergies très faibles, la contribution au signal de photoassociation d'atomes d'énergie collisionelle $h\epsilon$ peut être évaluée sans tenir compte de l'ensemble du potentiel moléculaire de l'état fondamental. Les lois de seuil de Wigner nous permettent dans ce cas de connaître la dépendance en énergie de l'élément de matrice dipolaire de transition entre l'état fondamental de collision et l'état final moléculaire (voir les expressions (3.2) et (3.9)). Le terme de couplage $(\hbar\Omega)^2$, pour une énergie de collision $h\epsilon$, variera en

[15] La largeur naturelle de l'état 0_g^- $(p_{3/2})$ est de l'ordre de $2 \times \Gamma_{atome} \approx 2\pi \times 10,4$ MHz [Drag, 2000].

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

$\epsilon^{l+1/2}$, où l est le moment cinétique de l'onde partielle intervenant lors de la collision. En supposant la loi de seuil de Wigner valide [16], la forme des raies de photoassociation, pour des atomes de moment cinétique de collision l, est donnée par :

$$W_l(\nu) = B_l \int_0^\infty e^{\epsilon/T'} \frac{\Gamma' \quad \epsilon^{l+1/2}}{[\nu - (\nu_0 - \epsilon)]^2 + \Gamma'^2/4} \quad d\epsilon \tag{3.15}$$

B_l est l'amplitude globale que l'on ajustera de façon à reproduire les résultats expérimentaux, T' est la température en unité de fréquence, $\Gamma' = \Gamma/2\pi$ est la largeur naturelle du niveau moléculaire excité en unité de fréquence, et ν_0 représente la fréquence de photoassociation pour une énergie de collision $h\epsilon$ nulle. Nous ne tenons pas compte, dans cette formule, d'effets potentiels de saturation de la raie de photoassociation.

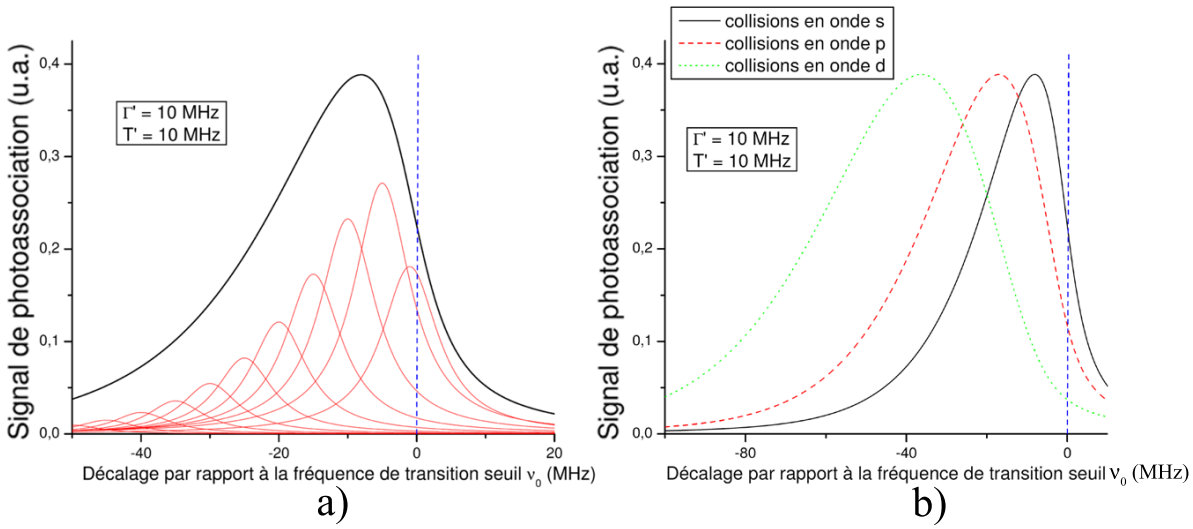

FIG. 3.19 – Le décalage en fréquence, représenté en abscisse, est égal à $\nu_{PA} - \nu_0$ (voir Fig. 3.18). a)- Une raie de photoassociation après collision en onde s (somme infinie de lorentziennes) pour une température $T' = 10$ MHz et une largeur naturelle $\Gamma = 10$ MHz. Nous avons représenté sous la raie de photoassociation globale(en noir épais), une dizaine de raies correspondant chacune à une énergie de collision $h\epsilon$ donnée. Ce sont des lorentziennes de largeur Γ dont le centre dépend de l'énergie de collision. L'amplitude de chacune d'entre elles est déterminée par le facteur $\epsilon^{l+1/2} e^{\epsilon/T'}$, en prenant $l = 0$, puisque nous traitons ici le cas de collisions en onde s. Sur la figure, cette amplitude a été multipliée par un facteur 6 pour une meilleure lisibilité. b)- Raies de photoassociation pour des collisions en onde s, p et d pour une température $T' = 10$ MHz et une largeur naturelle $\Gamma = 10$ MHz. Plus le moment cinétique de collision est élevé et plus la raie de photoassociation est décalée vers le rouge.

A l'aide de l'expression (3.15), nous avons représenté sur la Fig. 3.19a) une raie de photoassociation résultant de collisions en onde s (l=0) à la température $T' = 10$ MHz ($T \approx 480$ μK). Cette raie de photoassociation est une somme infinie de lorentziennes dont la contribution relative est donnée par la combinaison d'un terme croissant en $\epsilon^{l/2}$ et d'un terme exponentiellement décroissant en $e^{-\epsilon/T'}$. Les collisions de plus basse

[16] Nous verrons dans la suite que la loi de seuil de Wigner n'est pas valable dans nos conditions expérimentales pour des atomes de césium collisionnant en onde s.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

énergie contribuent au côté bleu de la raie, alors que celles de plus haute énergie au côté rouge.

Pour déterminer la forme globale de la raie de photoassociation, il faut tenir compte de toutes les ondes partielles intervenant dans la réaction. Elle est donc reproduite par la fonction :

$$W(\nu) = \sum_l W_l(\nu) \tag{3.16}$$

Toutefois, pour de faibles énergies de collision, le nombre d'ondes partielles l intervenant dans les processus de collision est relativement petit. En effet, pour des moments cinétiques de collision élevés, la barrière centrifuge du potentiel fondamental (voir Fig. 3.20) réduit fortement la probabilité de présence à courte distance des deux atomes. Dans le cas de l'atome de césium, la hauteur de la barrière centrifuge est d'environ 35 μK pour les ondes partielles p et de 190 μK pour les ondes partielles d. Les ondes partielles $l > 2$ n' interviendront pas dans notre étude puisque la température de notre piège magnéto-optique est typiquement inférieure à 200 μK [17]. Nous avons représenté sur la Fig. 3.19b) la contribution des ondes partielles s (l=0), p (l=1) et d (l=2) pour une température T' de 10 MHz ($T \approx 480$ μK). On peut remarquer que plus l augmente et plus la raie se déplace vers le rouge de la transition (déplacement d'une quantité $\Delta_l = (l + 1/2)T'$). La largeur des raies W_l augmente elle aussi avec l. Ainsi, plus on fait contribuer des l élevés et plus la raie de photoassociation est large.

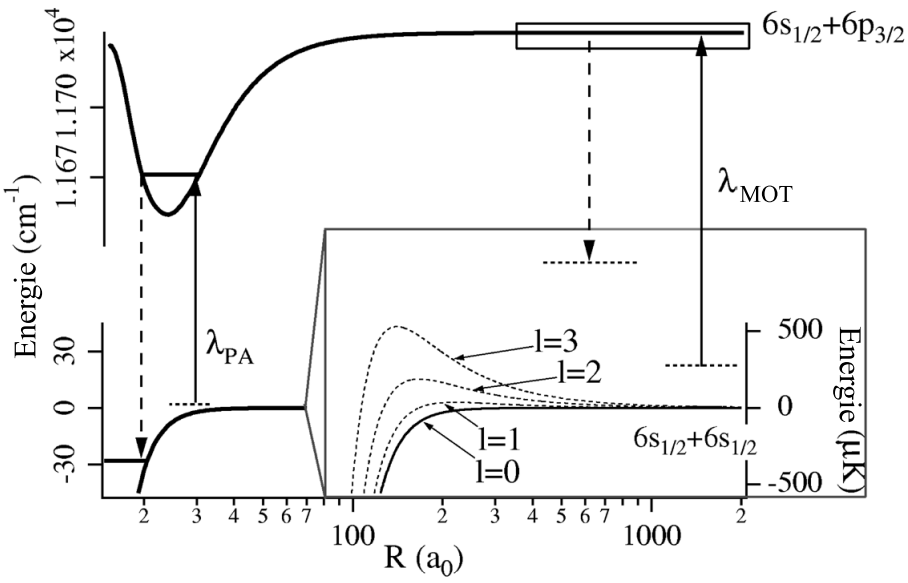

FIG. 3.20 – Représentation des barrières centrifuges pour les collisions atomiques à travers le potentiel moléculaire fondamental. L'échelle d'énergie dans le petit encadré a été multipliée par un facteur 10^5.

Sur les spectres de photoassociation (voir Fig. 3.16), la contribution des ondes partielles aux différentes raies rotationnelles est clairement identifiée :

$$J = 0 \rightarrow (s + d) \qquad J = 1 \rightarrow (p) \qquad J = 2 \rightarrow (s + d) \qquad J = 3 \rightarrow (p)$$

Pour le potentiel 0_g^-, les nombres quantiques J sont reliés au moment cinétique relatif l par la formule

$$\boldsymbol{J} = \boldsymbol{L} + \boldsymbol{S} + \boldsymbol{l}$$

[17] La barrière centrifuge des ondes partielles $l = 3$ est de 530 μK.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

où $L = 1$ est le moment cinétique angulaire électronique total des deux atomes, $S = 1$ leur spin total, avec la règle de sélection $J + l = pair$ [Tiesinga et al., 1996b].

Avant d'ajuster les raies de photoassociation à l'aide de la fonction $W(\nu)$, il est indispensable de savoir si la loi de seuil de Wigner est valable dans nos domaines d'énergies. Il a été montré qu'au dessus d'une température atomique de l'ordre de 10 nK la loi de seuil de Wigner n'est plus valable pour des atomes de césium collisionnant en onde s [Lisdat et al., 2002]. La non validité de la loi de seuil à si basse température est le résultat assez exceptionnel d'une grande longueur de diffusion pour l'atome de césium. Nous ne pouvons donc pas ajuster les raies de photoassociation à partir de la fonction (3.15).

Il nous faut donc évaluer directement le terme de couplage $(\hbar\Omega)^2$ proportionnel au module carré de la fonction d'onde de collision évaluée au point tournant externe du potentiel moléculaire excité $|G_{E,l}(R_C^{ext})|^2$ (voir l'expression (3.7)). Nous avons donc calculé $|G_{E,l}(R_C^{ext})|^2$ en fonction de l'énergie de collision par un calcul de l'amplitude de la fonction d'onde de collision, au point de Condon externe du niveau moléculaire $(v = 6)$ 0_g^- $(p_{3/2})$, situé à environ 28 a_0 [Fioretti et al., 1999a]. Nous avons utilisé pour cela, en collaboration avec Anne Crubellier, théoricienne au laboratoire Aimé Cotton, une méthode de calcul asymptotique à une voix, décrite dans la thèse de Benoît T'Jampens ([T'Jampens, 2002] p33). Cette approche consiste à n'utiliser que la partie asymptotique du potentiel moléculaire fondamental en C_6/R^6 [18]. Une des idées maîtresses de ce calcul asymptotique est la notion de "lignes de noeuds" : il s'agit de lignes joignant les noeuds des fonctions d'onde vibrationnelles successives proches du seuil de dissociation du potentiel. Les lignes de noeuds reflètent la variation des positions des noeuds des fonctions d'onde radiales en fonction de l'énergie de liaison. Près du seuil, puisque la densité de niveaux est importante, cette variation est faible, de sorte que nous pouvons l'approximer par une droite. Ces lignes de noeuds sont utilisées pour le calcul des fonctions d'onde radiales. N'utilisant pas le potentiel dans son ensemble, il faut appliquer une condition à la fonction d'onde radiale au bord interne de la zone asymptotique. Pour une énergie donnée, la position du noeud de la fonction d'onde permet de résumer l'histoire de la collision dans la zone interne. Ces lignes de noeuds sont obtenues après intégration numérique de l'équation de Schrödinger uniquement dans la zone asymptotique.
Le calcul de la fonction d'onde de collision nous permet de déterminer $|G_{E,l}(R_C^{ext} = 28\ a_0)|^2(E)$ que nous avons représenté, pour $l = 0$, sur la Fig. 3.21.

En remplaçant dans la formule (3.15) le terme de loi de seuil de Wigner $\epsilon^{l+1/2}$ par la fonction trouvée $|G_{E,l}(R_C^{ext} = 28\ a_0)|^2(E)$, nous sommes capables maintenant d'ajuster les raies de photoassociation en vue d'en déduire la température atomique.

- PA dans le MOT :

En ajustant les raies de photoassociation obtenues dans le piège magnéto-optique (voir Fig. 3.16), nous déduisons une température atomique dans le MOT exceptionnellement élevée, de l'ordre de 2 mK. Les largeurs de raie sont effectivement très grandes ($\approx$ 38 MHz) comparées à la largeur naturelle d'environ 10 MHz. Ce résultat est surprenant mais connaît une explication. *A priori*, on pourrait penser à un phénomène de saturation de la transition de PA et introduire un terme de saturation dans la formule (3.15). Cependant, nous n'avons jamais observé de phénomène d'élargissement de raie de PA en augmentant la puissance de notre laser Ti :Sa (les intensités mises en jeu sont probablement trop faibles). L'explication est tout autre et provient vraisemblablement des forces à longue portée entre

[18] Dans le calcul de la fonction d'onde de collision, le coefficient C_6 du césium est pris égal à 6846 a_0 [Vanhaecke et al., 2004].

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

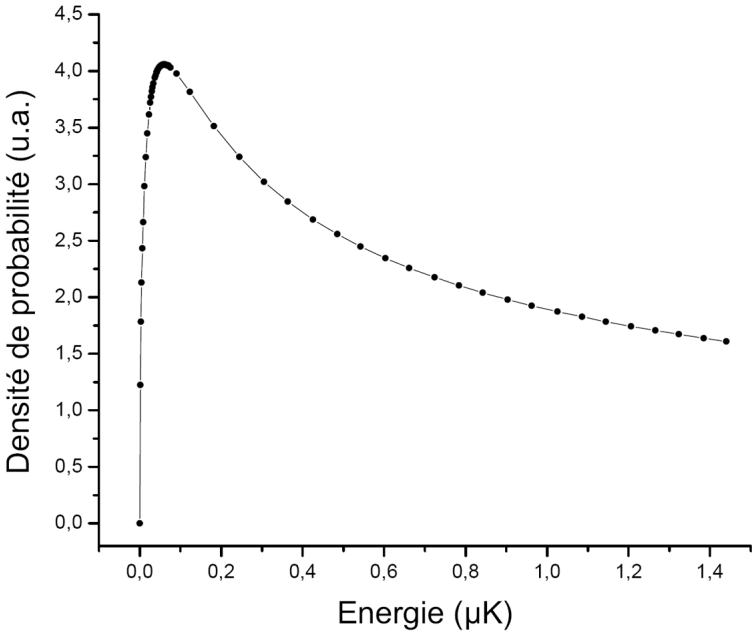

FIG. 3.21 – Représentation de la densité de probabilité $|G_{E,l=0}(R_C^{ext} = 28\ a_0)|^2$ en fonction de l'énergie de collision E. Le début de la partie croissante de la courbe se comporte selon la loi de seuil de Wigner, puis cette loi cesse d'être valable très rapidement à cause d'une longueur de diffusion de l'atome de césium très élevée.

atomes froids [Fioretti et al., 1999b]. Cet effet d'augmentation de température viendrait de l'accélération de paires d'atomes excitées par les lasers du MOT, avec apparition d'une force dipolaire attractive entre les atomes. Le phénomène est le suivant : une paire d'atomes froids $6s_{1/2} + 6s_{1/2}$ entrant en collision est excitée, à grande distance $R \approx 1500\ a_0$, par les lasers de refroidissement, sur une courbe de potentiel moléculaire en C_3/R^3, asymptotiquement liée à la limite $6s_{1/2} + 6p_{3/2}$ (voir Fig. 3.20). Les atomes sont alors soumis à une force dipolaire $F = 3C_3/R^4$ qui les accélère l'un vers l'autre jusqu'à ce que l'émission spontanée se produise (≈ 30 ns). Ce processus peut se répéter plusieurs fois avant que les lasers du MOT soient hors résonance. Ce phénomène tend à augmenter significativement la vitesse relative des atomes en collision et, à chaque fois, que le système se désexcite, l'énergie cinétique de collision est redistribuée à tout l'échantillon.

- PA dans le piège dipolaire :

Dans le piège dipolaire, la température attendue des atomes est de l'ordre de 40 μK [Mudrich et al., 2004]. La forme de la raie de photoassociation du niveau de rotation $J = 2$, obtenue dans le piège dipolaire (voir Fig. 3.16), ne doit donc être que le résultat de collisions en ondes s, puisque la hauteur de la barrière centrifuge de l'onde d est de 190 μK.

Pour déduire la température des atomes dans le piège dipolaire, il ne convient pas uniquement d'ajuster la raie de photoassociation par la fonction $W_0(\nu)$ (voir expression (3.15)) en remplaçant le terme de loi de seuil de Wigner par la densité de probabilité calculée $|G_{E,0}(R_C^{ext} = 28\ a_0)|^2(E)$. En effet, il faut tenir compte de l'effet Stark quadratique, induit par le champ électrique du laser CO_2, qui lève la dégénérescence des sous-niveaux magnétiques M_J du niveau de rotation $J = 2$ [Friedrich and Herschbach, 1995, Kraft et al., 2005].

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

En tenant compte de l'effet Stark quadratique, l'énergie des sous-niveaux magnétiques M_J est donnée par [Friedrich and Herschbach, 1995] :

$$E_{J,M_J} = \left[J(J+1) - \frac{c^2}{2}\left(1 - \frac{(2|M_J|-1)(2|M_J|+1)}{(2J-1)(2J+3)}\right) - \omega_\perp \right] B \tag{3.17}$$

avec

$$c^2 = \omega_\parallel - \omega_\perp \quad \text{et} \quad \omega_{\parallel,\perp} = \frac{\alpha_{\parallel,\perp}\mathcal{E}_0^2}{4B} \tag{3.18}$$

où B est la constante rotationnelle, $\alpha_{\parallel,\perp}$ sont les polarisabilités électriques parallèle et perpendiculaire à l'axe moléculaire, et $\mathcal{E}_0$ est l'amplitude du champ électrique $\mathcal{E} = \mathcal{E}_0 \cos(2\pi\nu t)$ du laser CO_2.

L'élargissement produit au centre du piège par la levée de dégénérescence est estimé à $\Delta E(r=0) = |E_{2,0} - E_{2,2}|/h \approx 5$ MHz (r témoigne de la dépendance spatiale de l'élargissement ; $r = 0$ correspond au centre du piège dipolaire, où le champ électrique est maximum).

L'analyse complète de la raie de photoassociation dans le piège dipolaire rend compte d'une température de l'échantillon atomique en accord avec la température attendue d'environ 40 μK [Mudrich et al., 2004, Mudrich, 2003]. Ne disposant pas d'un système d'imagerie nous permettant de déterminer facilement la température de l'échantillon atomique, il me semblait ici intéressant d'évoquer cette méthode élégante pour l'estimer. Il faut noter que plus la température de l'échantillon est faible et plus sa détermination sera difficile. Cette méthode est surtout intéressante pour estimer des températures élevées.
Dans la suite, nous considérerons une température atomique au sein du piège dipolaire $T \approx 40^{+10}_{-10}$ μK.

Nous allons maintenant exposer les premiers résultats que nous avons obtenus après avoir photoassocié les atomes confinés dans le piège dipolaire et fait la démonstration du piégeage de molécules froides de césium.

3.4.4 Piège moléculaire

Les premières expériences de piégeage moléculaire furent réalisées en photoassociant le niveau de rotation-vibration ($v = 6, J = 2$) du potentiel moléculaire 0_g^- sous la limite $6s_{1/2} + 6p_{3/2}$. Cet état présente l'avantage de produire un grand nombre de molécules froides, préférentiellement dans les niveaux élevés du potentiel fondamental triplet $a^3\Sigma_u^+$. A l'issue de la séquence de photoassociation, nous disposons, dans notre piège, d'un échantillon froid d'atomes (non photoassociés) et de molécules que nous pouvons détecter, après un processus d'ionisation (voir Sec. 3.3.4), à la fin de la séquence de piégeage. L'étude de la durée de vie d'un tel piège mixte d'atomes et de molécules a été effectuée en suivant l'évolution temporelle du nombre de molécules froides au sein du piège (courbe en cercles pleins de la Fig. 3.22). Deux régimes de décroissance furent mis en évidence. Jusqu'à environ 300 ms de piégeage, le signal de molécules froides chute drastiquement d'un ordre de grandeur de façon exponentielle (temps caractéristique $\tau_{1mol} \approx 100$ ms), puis décroît de façon bien plus lente, toujours exponentiellement (temps caractéristique $\tau_{2mol} \approx 640$ ms). Nous

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

pensions alors que le premier régime de décroissance était la cause de la présence d'atomes au sein du piège dipolaire, ce qui perturbait de façon dramatique le confinement des molécules.

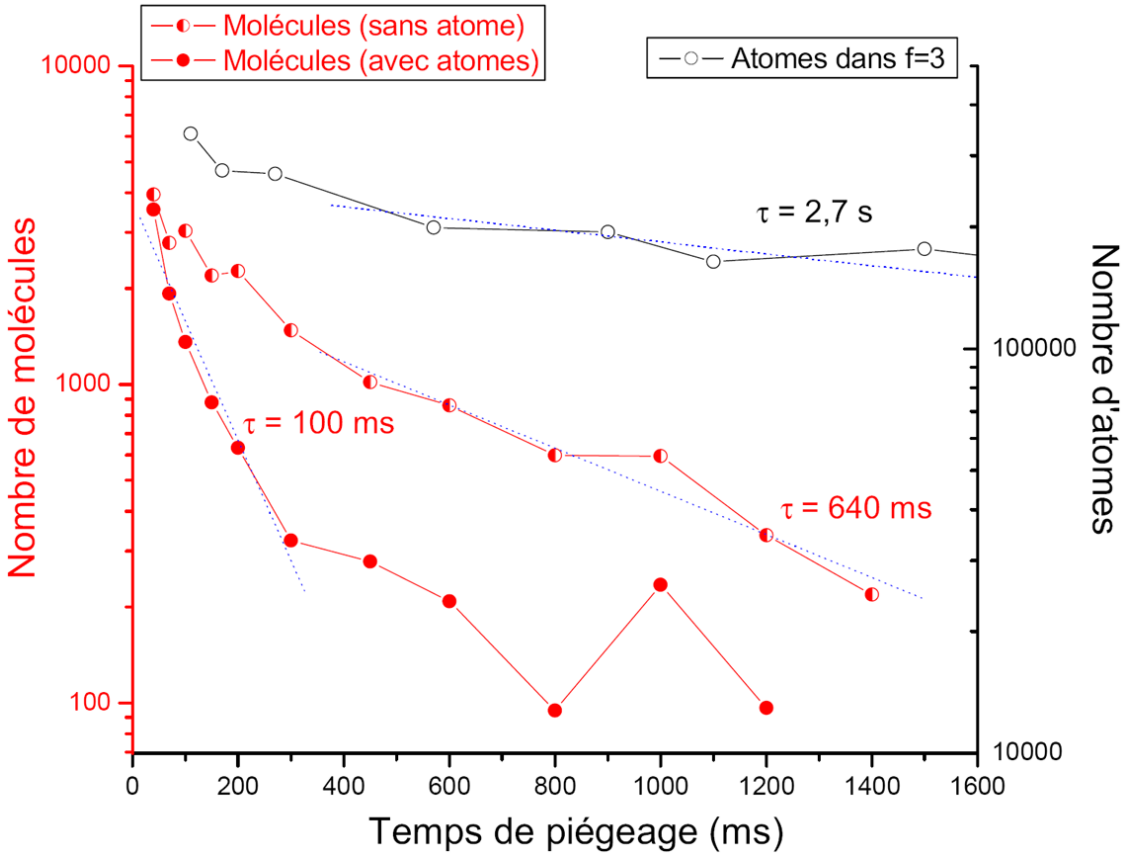

FIG. 3.22 – Evolution temporelle du nombre de particules dans le piège dipolaire. Nous avons représenté, en cercles vides, l'évolution du nombre d'atomes dans l'état $f = 3$ dans un piège purement atomique. L'ajustement de cette courbe nous permet de déduire une durée de vie de l'ordre de 2,7 s. En cercles demi-pleins, nous avons tracé l'évolution du nombre de molécules dans un piège purement moléculaire. L'ajustement de ces données par une fonction exponentiellement décroissante nous fournit une durée de vie de l'ordre 640 ms. En cercles pleins, la courbe représente l'évolution du nombre de molécules dans un piège mixte d'atomes (dans l'état $f = 4$) et de molécules. On remarque une décroissance très rapide ($\tau_{1mol} \approx 100$ ms) dans les premières centaines de millisecondes, qui témoigne d'un fort taux de collisions inélastiques entre atomes et molécules.

La prochaine étape était donc de chasser les atomes du piège à l'aide d'un faisceau lumineux résonant, de façon à créer un piège purement moléculaire. Nous avons utilisé pour cela une diode laser (SDL 5412-H1) montée en cavité étendue, asservie par absorption saturée sur le croisement $6s_{1/2}f = 4 \longrightarrow 6p_{3/2}f' = 4 \times 6s_{1/2}f = 4 \longrightarrow 6p_{3/2}f' = 5$. La fréquence de l'onde lumineuse est ensuite décalée à l'aide d'un modulateur acousto-optique sur la transition atomique $6s_{1/2}f = 4 \longrightarrow 6p_{3/2}f' = 5$. Ce faisceau laser emprunte le même parcours que le laser CO_2 mais en sens inverse. Son alignement se fait très simplement sur le piège magnéto-optique, puisqu'étant à résonance avec une transition atomique, il chasse tous les atomes : le MOT doit donc disparaître lorsque la diode est correctement alignée [19].
Après la phase de photoassociation, les atomes du piège sont alors chassés par une impulsion

[19] Le faisceau de cette diode peut servir d'alignement grossier pour le laser CO_2.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

lumineuse d'une quinzaine de millisecondes (voir séquence (TTLpiège atomique +TTLphotoassociation + TTLpousseur)). Après une telle impulsion, le signal d'ions atomiques est inexistant, ce qui montre que l'on réalise dans ces conditions un piège purement moléculaire. Les molécules ne ressentent, quant à elles, aucun effet, puisque le signal d'ions moléculaires reste inchangé. Nous avons représenté, toujours sur la même Fig. 3.22, l'évolution temporelle du nombre de molécules sans les atomes. L'effet est assez clair : il n'y a plus qu'un seul temps caractéristique de la décroissance exponentielle du nombre de molécules, qui plus est similaire au régime de décroissance à temps longs du piège mixte atomique et moléculaire. La chute importante du nombre de molécules pendant les trois cents premières millisecondes dans le piège mixte est donc manifestement le résultat de collisions inélastiques entre atomes et molécules du piège.
En comparant la courbe de durée de vie du piège atomique avec celle du piège purement moléculaire, on peut remarquer que les temps de décroissance à temps longs sont différents dans les deux cas. Ils sont typiquement de l'ordre de $\tau_{at} \approx 2,7$ s pour les atomes et de $\tau_{2mol} \approx 640$ ms pour les molécules ; il y a donc environ un facteur 4 entre les deux durées de vie.
Le nombre initial de molécules piégées $N_{Cs_2}(t=0) \approx 4000$ correspond à une densité moléculaire moyenne $\bar{n}_{Cs_2}(t=0) \approx 10^{10}$ cm^{-3}.

Nous allons, dans la suite, étudier en détail les collisions inélastiques entre atomes et molécules du piège, responsables d'une perte importante du nombre de molécules dans les premières centaines de millisecondes de piégeage. Nous nous intéresserons dans un deuxième temps aux temps longs de l'évolution du nombre de molécules pour tenter de comprendre la différence entre le temps de décroissance du piège atomique, dû aux collisions avec le gaz résiduel, et celui du piège moléculaire dont l'origine n'est pas clairement identifiée.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

3.5 Etude des collisions au sein du piège moléculaire

Ces dernières années, un grand intérêt fut porté à l'étude des interactions au sein d'un gaz d'atomes et de molécules ultrafroids. En 2002, la possibilité de former des dimères à partir d'atomes bosoniques ^{85}Rb fut démontrée [Donley et al., 2002], et ceci par simple variation d'un champ magnétique autour d'une résonance de Feshbach. Cependant, la durée de vie de molécules produites à partir de condensats atomiques en utilisant cette technique s'est avérée extrêmement faible, de l'ordre de la milliseconde. Les collisions atome-molécule et molécule-molécule au sein du piège sont les causes d'une telle observation [Donley et al., 2002, Herbig et al., 2003, Xu et al., 2003, Dürr et al., 2004, Mukaiyama et al., 2004]. Les molécules formées dans ces expériences sont dans les états de vibration les plus élevés ; ainsi, n'importe quelle collision inélastique induisant un changement d'état interne moléculaire libère assez d'énergie pour éjecter du piège les deux particules en collision. Notons que la formation de molécules froides à partir d'un condensat atomique de ^{87}Rb a également été réalisée mais cette fois-ci par photoassociation (transitions Raman stimulées libre-lié) [Wynar et al., 2000]. Là encore, les molécules créées se trouvaient dans des niveaux vibrationnellement très excités. En analysant la forme des raies de photoassociation, ce groupe a pu déduire un taux de collision inélastique atome-molécule important, expliquant la faible durée de vie des molécules qu'ils observaient.

Au milieu de l'année 2003, L'équipe de D. S. Jin réussit à créer un gaz de molécules diatomiques à partir d'un gaz de Fermi dégénéré de ^{40}K, par variation d'un champ magnétique au voisinage d'une résonance de Feshbach [Regal et al., 2003]. De telles molécules, composants bosoniques formés à partir de deux fermions, apparurent, pour certaines valeurs de champ magnétique et donc de longueur de diffusion, très stables vis-a-vis des collisions inélastiques [Cubizolles et al., 2003, Jochim et al., 2003a, Regal et al., 2004]. Des durées de vie de l'échantillon moléculaire allant jusqu'à une dizaine de secondes ont été obtenues [Jochim et al., 2003a]. Finalement, à la fin de l'année 2003, l'équipe de D. S. Jin, en partant d'un gaz de fermions ^{40}K, obtint le premier condensat moléculaire [Greiner et al., 2003]. Il ne fallut pas attendre longtemps pour voir se succéder d'autres signatures de condensats moléculaires formés, cette fois, à partir de fermions ^{6}Li[Jochim et al., 2003b, Zwierlein et al., 2003, Bourdel et al., 2004] [20].

L'utilisation d'espèces atomiques fermioniques semble être un critère crucial pour l'observation d'un condensat moléculaire stable. Les collisions inélastiques provoquant la chute rapide du nombre de molécules formées à partir de bosons sont, dans certaines conditions, supprimées pour des molécules composées de fermions. Ces conditions sont remplies pour des valeurs de champ magnétique produisant des longueurs de diffusion atome-atome positives très grandes. D'après Petrov *et al.* [Petrov et al., 2004], près d'une résonance de Feshbach, le taux de décroissance du nombre de molécules dû aux collisions molécule-molécule et atome-molécule varie, en fonction de la longueur de diffusion atome-atome a, respectivement en $a^{-2,55}$ et $a^{-3,33}$. Ceci explique les grandes longueurs de diffusion utilisées pour obtenir un condensat moléculaire stable. [Petrov et al., 2004] explique la différence de stabilité entre les molécules formées de bosons et celles composées de fermions en termes de statistique quantique. Le principe d'exclusion de Pauli empêcherait, dans les conditions déjà mentionnées, les collisions inélastiques provoquant cette instabilité. Les

[20] Dans le cas du ^{40}K, les molécules sont obtenues en traversant une résonance de Feshbach alors que pour ^{6}Li elles sont obtenues près d'un résonance de Feshbach, par recombinaison à trois corps.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

articles [Cvitas et al., 2005, Quéméner et al., 2005] montrent que cette interprétation n'est valable que pour des molécules dans les niveaux vibrationnels les plus élevés, ce qui est le cas lorsqu'elles sont formées par résonance de Feshbach. Pour des niveaux vibrationnels profonds, leurs calculs ont montré, pour le ^{6}Li et le ^{7}Li, qu'il n'y avait pas de différence systématique dans les valeurs des taux de collisions inélastiques atome-molécule.

Nous allons, dans ce contexte, caractériser les différents processus collisionnels intervenant au sein de notre piège moléculaire de césium. Nous étudierons, dans un premier temps, les collisions molécule-molécule et atome-molécule qui interviennent pour des temps de piégeage relativement courts. Nous avons montré précédemment l'effet important des collisions atome-molécule, responsables d'une perte importante et rapide du nombre de molécules dans le piège. Nous étudierons, dans un deuxième temps, l'évolution du nombre de molécules aux temps longs, pour lesquels la durée de vie moléculaire est bien plus faible que celle des atomes.

3.5.1 Equations d'évolution du nombre de molécules

L'étude quantitative des collisions inélastiques peut être effectuée en mesurant les taux de perte des particules du piège. L'évolution temporelle du nombre de molécules N_{Cs_2} en présence d'atomes Cs est décrite par l'équation :

$$\frac{dN_{\mathrm{Cs}_2}(t)}{dt} = -\alpha_{\mathrm{Cs}_2} N_{\mathrm{Cs}_2}(t) - 2G_{\mathrm{Cs}_2} \int n^2_{\mathrm{Cs}_2}(t)\, d^3r - K_{\mathrm{Cs}_2\mathrm{Cs}} \int n_{\mathrm{Cs}_2}(t)\, n_{\mathrm{Cs}}(t)\, d^3r \qquad (3.19)$$

où $n_{\mathrm{Cs}_2}(t)$ et $n_{\mathrm{Cs}}(t)$ représentent les densités locales de molécules et d'atomes.

Le taux de perte à un corps α_{Cs_2} de l'équation (3.19) caractérise *a priori* [21] les pertes de molécules dues aux collisions avec le gaz résiduel. Les collisions inélastiques binaires sont décrites par les deux derniers termes de l'équation (3.19). Les coefficients G_{Cs_2} et $K_{\mathrm{Cs}_2\mathrm{Cs}}$ représentent respectivement les taux de collisions molécule-molécule et molécule-atome. Ils sont directement reliés aux sections efficaces de collision par $G_{\mathrm{Cs}_2} = \bar{v}_{Cs_2Cs_2}\, \sigma_{\mathrm{Cs}_2}$ et $K_{\mathrm{Cs}_2\mathrm{Cs}} = \bar{v}_{\mathrm{Cs}_2\mathrm{Cs}}\, \sigma_{\mathrm{Cs}_2\mathrm{Cs}}$, où $\bar{v_{ij}}$ représente la vitesse relative moyenne des deux particules i et j en collision.
L'analyse des données est simplifiée en considérant les particules à l'équilibre thermique, distribuées de façon gaussienne dans le potentiel harmonique du piège dipolaire.
Nous définissons le volume effectif V_{CsCs_2}, pour décrire les collisions binaires entre un atome et une molécule, comme le recouvrement spatial des deux nuages atomique et moléculaire :

$$V_{\mathrm{CsCs}_2} = N_{\mathrm{Cs}} N_{\mathrm{Cs}_2} \left(\int n_{\mathrm{Cs}}(\boldsymbol{r}) n_{\mathrm{Cs}_2}(\boldsymbol{r}) d^3r \right)^{-1} \qquad (3.20)$$

$$= \left(\frac{\alpha^{stat}_{\mathrm{Cs}}}{\alpha^{stat}_{\mathrm{Cs}_2}} \frac{T_{\mathrm{Cs}_2}}{M_{\mathrm{Cs}_2}} + \frac{T_{\mathrm{Cs}}}{M_{\mathrm{Cs}}} \right)^{3/2} \frac{(2\pi k_B)^{3/2}}{\omega_r^2 \omega_z} \qquad (3.21)$$

où $\alpha^{stat}_{\mathrm{Cs}}$ et $\alpha^{stat}_{\mathrm{Cs}_2}$ représentent respectivement la polarisabilité statique de l'atome et de la molécule de césium ; ω_r et ω_z correspondent respectivement aux pulsations radiale et longitudinale du piège dipolaire. Les températures T_{Cs} et T_{Cs_2} sont supposées égales à l'énergie de photon de recul près. En considérant le recouvrement de deux nuages atomiques de même espèce, on voit que l'on retrouve la formule (3.12).

[21] Ce point sera discuté dans la suite du manuscrit en Sec. 3.5.5.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Toutes ces considérations nous permettent d'obtenir l'équation d'évolution du nombre de molécules :

$$\frac{dN_{Cs_2}(t)}{dt} = -\left(\alpha_{Cs_2} + K_{Cs_2Cs}\frac{N_{Cs}(t)}{V_{CsCs_2}}\right)N_{Cs_2}(t) - 2G_{Cs_2}\frac{N^2_{Cs_2}(t)}{V_{Cs_2}} \tag{3.22}$$

Le nombre de molécules $N_{Cs_2}(t)$ est rigoureusement couplé au nombre d'atomes $N_{Cs}(t)$ par le biais des collisions inélastiques molécule-atome. Cependant, vu le nombre bien plus élevé d'atomes dans le piège (un ordre de grandeur) et lorsque les atomes sont dans leur état fondamental hyperfin $f = 3$ (stable vis-à-vis des collisions binaires inélastiques), on peut considérer la densité $n_{Cs}(t)$ constante, et prendre $n_{Cs}(t) = n_{Cs}(0)$.
La solution de l'équation (3.22) est semblable à celle déjà rencontrée (3.13), où il suffit de remplacer α par $\alpha\tilde{_{Cs_2}} = \alpha_{Cs_2} + K_{Cs_2Cs}N_{Cs}(t)/V_{CsCs_2}$:

$$N_{Cs_2}(t) = N_{Cs_2}(0)e^{-\tilde{\alpha}_{Cs_2}t}\left(1 + 2\frac{N_{Cs_2}(0)}{V_{Cs_2}}\frac{G_{Cs_2}(1 - e^{-\tilde{\alpha}_{Cs_2}t})}{\tilde{\alpha}_{Cs_2}}\right)^{-1} \tag{3.23}$$

3.5.2 Collisions molécule-molécule

Nous nous intéressons d'abord aux collisions molécule-molécule au sein du piège dipolaire. Nous avons donc créé un piège purement moléculaire en chassant les atomes à l'aide d'une impulsion lumineuse résonante avec une transition atomique. On peut voir sur la Fig. 3.23 deux courbes de piégeage moléculaire qui diffèrent l'une de l'autre par le nombre de molécules créées au départ. La photoassociation a été réalisée vers l'état ($v = 6$,$J = 2$) du potentiel 0^-_g $(p_{3/2})$.

Des densités initiales moléculaires d'environ $2,5 \times 10^{10}$ cm^{-3} et 9×10^9 cm^{-3} furent obtenues en photoassociant les atomes du piège respectivement pendant 30 ms et 4 ms. Des ajustements par des fonctions exponentiellement décroissantes ont été effectués aux temps longs, et on a pu en extraire des durées de vie moléculaires très proches dans les deux cas de l'ordre de 900 ms. On ne remarque pas vraiment d'effet dû au changement de densité moléculaire sur les courbes de décroissance. Les collisions molécule-molécule susceptibles de se produire au sein du piège sont donc peu élevées, ce qui n'est pas vraiment surprenant vues les densités initiales assez faibles de notre nuage moléculaire.

Nous avons cependant tenté d'extraire le taux de collision molécule-molécule G_{Cs_2}, en ajustant la courbe, dont la densité initiale moléculaire est la plus importante, par la solution (3.23), avec $K_{Cs_2Cs} = 0$ (voir Fig. 3.24). On en déduit un taux de collisions $G_{Cs_2} \approx 1,0(5) \times 10^{-11}$ cm^3 s^{-1}, ce qui est très proche de la limite unitaire $G^{l.u.}_{Cs_2} \approx 8 \times 10^{-12}$ cm^3 s^{-1} :

$$G^{l.u.}_{Cs_2} = \frac{\pi\hbar}{kM_{Cs}} \tag{3.24}$$

où $k = (3M_{Cs}k_BT/\hbar^2)^{1/2}$ est le vecteur d'onde de la particule relative du système molécule-molécule de masse réduite M_{Cs}.

Le taux de collision molécule-molécule que nous trouvons est également très proche des valeurs trouvées par [Chin et al., 2005]. Cette équipe a en effet étudié les collisions froides molécule-molécule, à partir d'un échantillon de molécules de césium formées par résonance de Feshbach. Ils ont analysé la dépendance de ce taux de collision en fonction du champ

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

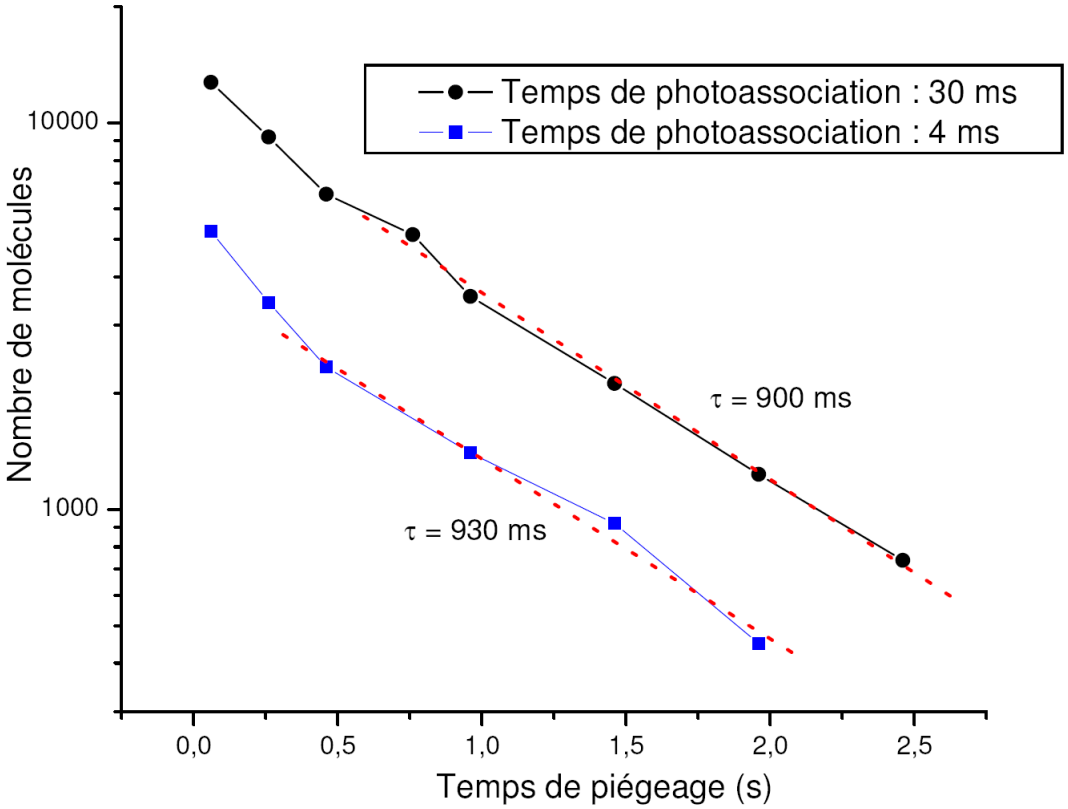

FIG. 3.23 – Durée de vie d'un piège purement moléculaire pour deux densités initiales de molécules, formées après photoassociation de l'état ($v = 6$,$J = 2$) du potentiel 0_g^- ($p_{3/2}$). Le nombre initial de molécules est contrôlé en variant la durée de photoassociation. La courbe de cercles est réalisée en photoassociant les atomes du piège pendant 30 ms alors que la courbe de carrés correspond à une durée d'illumination de 4 ms. Le nombre initial de molécules varie environ d'un facteur 3 entre les deux courbes. La durée de vie ne dépend que très peu de la densité de molécules.

magnétique appliqué. Ils ont trouvé pour un champ de 15,4 G, $G_{Cs_2} \approx 5 \times 10^{-11}$ cm^3 s^{-1}, et à 12,1 G, $G_{Cs_2} \approx 3 \times 10^{-11}$ cm^3 s^{-1}.
Nous tenons à faire remarquer que nos mesures fournissent également des taux de collisions molécule-molécule similaires à ceux trouvés par le groupe du MIT sur la molécule Na_2, $G_{Na_2} \approx 5,1 \times 10^{-11}$ cm^3 s^{-1} [Mukaiyama et al., 2004].

Ces taux de collisions inélastiques, impliquant des molécules formées à partir d'espèces bosoniques, sont à peu près deux ordres de grandeurs supérieurs à ceux obtenus dans certaines conditions pour des molécules composées de fermions [Cubizolles et al., 2003, Jochim et al., 2003a]. L'équipe de R. Grimm [Jochim et al., 2003a] rapporte des mesures effectuées sur des molécules $^6Li_2$. Pour un champ magnétique de 546 G, ils observent une chute drastique du nombre de molécules, qui est la signature évidente de collisions inélastiques molécule-molécule avec un taux $G_{^6Li_2} \approx 5 \times 10^{-11}$ cm^3 s^{-1}. La production d'un condensat stable moléculaire est alors impossible avec des taux si importants. En changeant la valeur de leur champ magnétique à 690 G, ils obtiennent cette fois une borne supérieure du taux de collision de 3×10^{-13} cm^3 s^{-1}, ce qui ouvre la voie vers la condensation. La possibilité de réduire le taux de collision molécule-molécule en se rapprochant, à l'aide

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

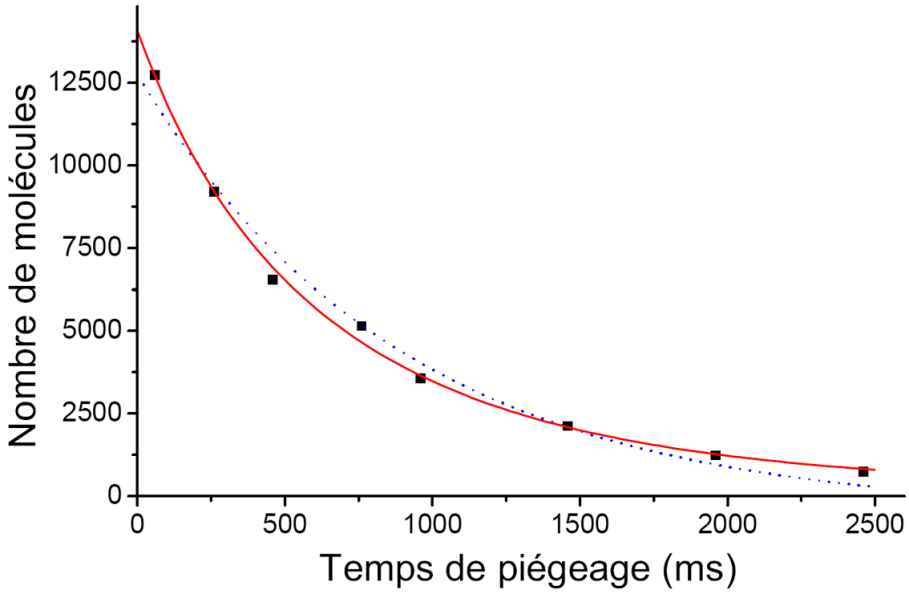

FIG. 3.24 – Durée de vie du piège purement moléculaire après 30 ms de photoassociation vers l'état ($v = 6$,$J = 2$) du potentiel 0_g^- ($p_{3/2}$). Les données ont été ajustées par la fonction (3.23), avec $K_{Cs_2Cs} = 0$ (ligne continue). On obtient un taux de collisions inélastiques molécule-molécule $G_{Cs_2} \approx 1,0(5) \times 10^{-11}$ cm^3 s^{-1}. Un ajustement par une fonction exponentiellement décroissante a également été représenté (en pointillés). On peut remarquer qu'un ajustement tenant compte de collisions à deux corps correspond mieux à l'évolution du nombre de molécules dans le piège dipolaire.

d'un champ magnétique, d'une résonance de Feshbach ne s'applique que dans le cas de molécules formées à partir de fermions puisque ce taux de collision inélastique décroît avec la longueur de diffusion a selon $a^{-2,55}$[Petrov et al., 2004]. Dans le cas de molécules composées de bosons, ce taux devrait augmenter proportionnellement à a.

Les collisions inélastiques molécule-molécule ne sont pas les seuls phénomènes collisionnels néfastes que l'on peut rencontrer. Les collisions molécule-atome interviennent elles aussi, et, comme on le verra, sont généralement plus importantes que les précédentes.

3.5.3 Collisions molécule-atome

Comme on l'a vu précédemment, le piégeage simultané d'atomes et de molécules froids conduit à une perte importante et rapide des molécules (voir Fig. 3.22). Une expérience que nous avons réalisée avait pour but d'identifier clairement l'origine de ces pertes. En effet, plusieurs situations sont possibles après la collision :
– La molécule peut changer d'état interne et tomber dans un niveau de rotation-vibration inférieur, libérant assez d'énergie pour chasser et la molécule et l'atome du piège.
– L'atome peut également changer de structure hyperfine de $f = 4$ vers $f = 3$ lors de la collision, sans pour autant qu'il y ait un changement d'état interne moléculaire. L'énergie libérée est, là encore, assez élevée pour perdre l'atome et la molécule.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

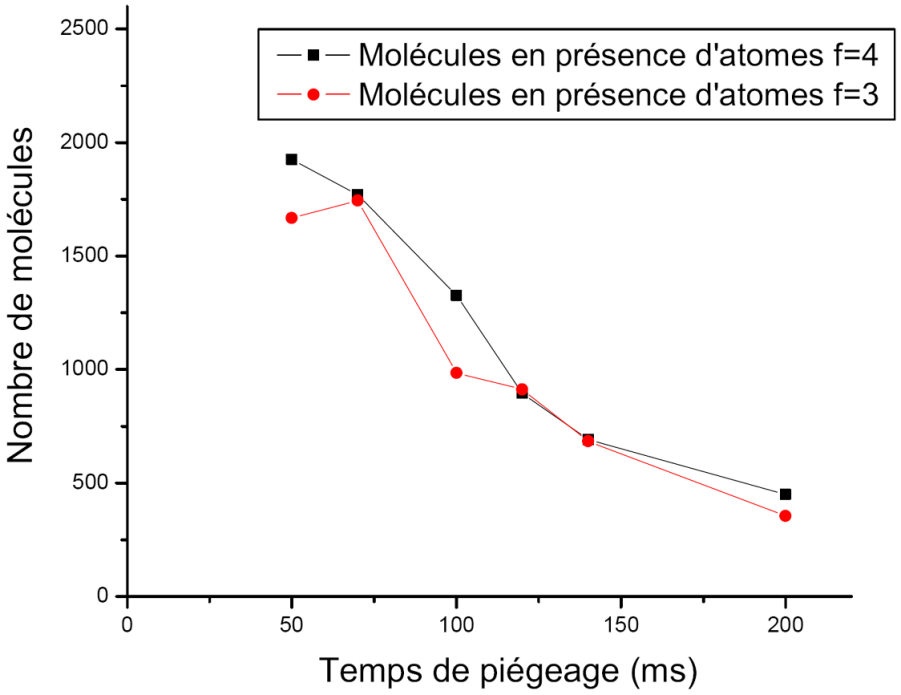

FIG. 3.25 – Durée de vie d'un piège moléculaire en présence d'atomes dans l'état $f = 4$ (carrés) ou $f = 3$ (ronds). Les molécules sont produites après photoassociation de l'état ($v = 6$,$J = 2$) du potentiel 0_g^- ($p_{3/2}$). On n'observe pas de dépendance de l'évolution temporelle du nombre de molécules avec l'état hyperfin des atomes.

Pour déterminer si les molécules que l'on perd ont changé d'état interne, nous avons étudié l'évolution du nombre de molécules dans trois situations différentes : seules, en présence d'atomes dans le niveau hyperfin $f = 4$, et en présence d'atomes dans le niveau fondamental hyperfin $f = 3$. On voit sur la Fig. 3.25 que l'état interne atomique n'influence pas l'évolution du nombre de molécules. Ceci montre que, lors des collisions inélastiques molécule-atome, il y a un changement de structure interne de la molécule.

Nous allons maintenant étudier l'aspect quantitatif de ces processus en essayant de déterminer le taux de collisions inélastiques entre atomes et molécules. L'expérience consiste à étudier l'évolution du nombre de molécules en faisant varier le nombre d'atomes dans le piège dipolaire. Les atomes du piège sont initialement dans l'état hyperfin $f = 3$. Juste après la photoassociation des atomes, une impulsion du laser repompeur fait basculer les atomes dans le niveau $f = 4$. Ensuite, la diode "pousseur", asservie sur la transition $6s_{1/2}f = 4 \longrightarrow 6p_{3/2}f' = 5$, chasse les atomes hors du piège. Le nombre d'atomes qui interagissent avec les molécules est contrôlé en modifiant la durée de l'impulsion du repompeur.
Une méthode plus simple aurait été de transférer directement dans le piège les atomes dans l'état $f = 4$ puis de faire varier la durée de l'impulsion de la diode pousseur, chassant ainsi du piège un plus ou moins grand nombre d'atomes. Avec cette seconde technique, les atomes restant dans le piège peuvent avoir été chauffés, ce qui peut conduire à des effets difficilement modélisables. Une variation de la densité n'est de plus pas possible pour des atomes piégés dans l'état $f = 3$. Nous n'avons pas utilisé cette façon simple d'expulser les atomes.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Nous avons représenté sur la Fig. 3.26 le résultat de cette expérience. Le nombre maximum d'atomes est estimé à environ $2,3 \times 10^5$. Les quatre courbes de décroissance représentées sont des mesures réalisées sans pousser les atomes, en en gardant 82 %, 58 % et 8 %. Ces données ont été analysées en considérant que les pertes étaient principalement dues aux collisions molécule-atome, les atomes étant piégés dans l'état $f = 3$. Comme on l'a vu précédemment, les collisions molécule-molécule sont difficilement perceptibles. Ces considérations nous permettent d'ajuster chaque courbe expérimentale par une fonction exponentiellement décroissante [22] solution de l'équation d'évolution (voir Eq. (3.22)) :

$$\frac{dN_{Cs_2}}{dt} = -K_{Cs_2Cs}\frac{N_{Cs}}{V_{CsCs_2}}N_{Cs_2} \tag{3.25}$$

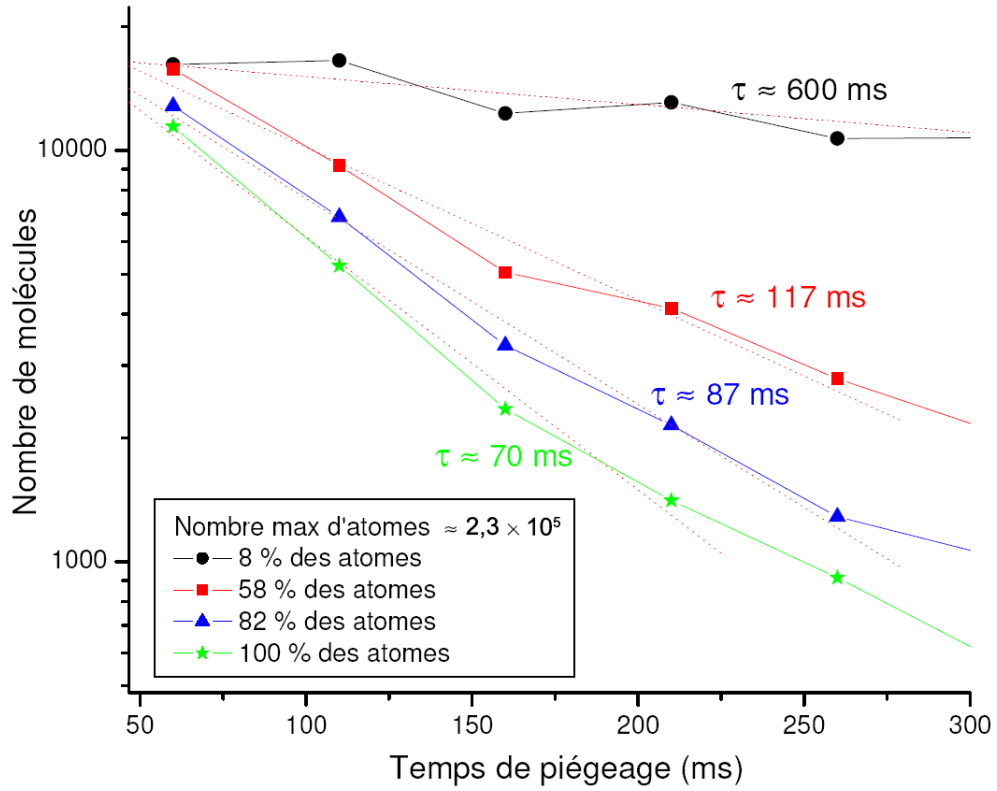

FIG. 3.26 – Evolution temporelle du nombre de molécules en faisant varier le nombre d'atomes dans le piège dipolaire. Les courbes de durée de vie correspondent à un nombre d'atomes de $N_{max} \approx 2,3 \times 10^5$, 82 $\%N_{max}$, 58 $\%N_{max}$, et 8 $\%N_{max}$. On peut voir que plus le nombre d'atomes est important et plus le nombre de molécules décroît rapidement. En ajustant ces données par la solution de l'équation (3.25), on déduit une valeur du taux de collisions inélastiques molécule-atome : $2,63 \times 10^{-11}$ cm^3 s^{-1}, $2,56 \times 10^{-11}$ cm^3 s^{-1} et $2,68 \times 10^{-11}$ cm^3 s^{-1} correspondant respectivement à N_{max} , 82 $\%N_{max}$ et 58 $\%N_{max}$ (le taux déduit dans le cas où seulement 8 $\%N_{max}$ des atomes sont présents n'est pas mentionné car le faible nombre des atomes ne nous permet pas de déterminer un taux assez précis).

Les taux de décroissance observés nous permettent de déduire un taux de collisions molécule-atome pour chacune de ces courbes qui devrait converger vers une même valeur.

[22] Nous avons également ajusté les données avec l'Eq. (3.23), ce qui nous permet de trouver des taux de collisions semblables.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Le tableau ci-dessous récapitule les taux de collisions mesurés en fonction du pourcentage des atomes restant dans le piège (le taux de collisions avec 8 % d'atomes n'est pas mentionné car il y a trop peu d'atomes pour en donner une estimation correcte) :

	100 %	82 %	58 %
K_{Cs_2Cs} (cm^3 s^{-1})	$2,63 \times 10^{-11}$	$2,56 \times 10^{-11}$	$2,68 \times 10^{-11}$

Les trois valeurs sont relativement proches les unes des autres et s'accordent entre elles pour estimer un taux de collision inélastique molécule-atome $K_{Cs_2Cs} = 2,6^{+4}_{-1,3} \times 10^{-11}$ cm^3 s^{-1}. Cette grande incertitude sur la valeur de K_{Cs_2Cs} vient principalement de l'incertitude relative à la détermination de la densité atomique. Tout comme le taux de collisions molécule-molécule, le taux de collisions molécule-atome que nous trouvons est très proche de la limite unitaire estimée à $K^{l.u.}_{Cs_2Cs} \approx 1,5 \times 10^{-11}$ cm^3 s^{-1}. Le fait de trouver un taux dépassant la limite unitaire n'est pas dénué de sens, car la limite unitaire ne tient compte que des collisions en onde s alors que, dans nos expériences, il est très probable que des collisions en onde p se produisent.

Des travaux théoriques ont été entrepris pour déterminer les taux de collisions inélastiques molécule-atome dans des gaz alcalins de Li [Cvitas et al., 2005], Na [Yurovski et al., 2000, Yurovski and Ben-Reuven, 2003], et K [Quéméner et al., 2005]. A titre d'exemple nous présentons la Fig. 3.27, extraite de [Quéméner et al., 2005]. Ces résultats comparent les taux de collisions élastiques et inélastiques molécule-atome dans le cas d'isotope du potassium fermionique et bosonique. Les molécules sont considérées initialement dans l'état vibrationnel $v = 1$. On voit donc que ni le système de bosons ni celui de fermions n'est épargné par un taux de collisions inélastiques très important, de l'ordre de 10^{-10} cm^3 s^{-1}. On peut remarquer une légère différence entre les bosons et les fermions. En effet, les taux de collisions élastiques et inélastiques sont légèrement plus faibles dans le cas fermionique. Il ne faut cependant pas voir là un effet du principe d'exclusion de Pauli, puisque le rapport du taux de collisions élastiques sur inélastiques est quasiment le même pour les bosons et pour les fermions.

Peu d'expériences ont étudié les collisions froides molécule-atome à partir d'un gaz d'atomes d'espèce bosonique. A ma connaissance seulement deux groupes ont rapporté de tels travaux et mesuré un taux de collisions [Wynar et al., 2000, Mukaiyama et al., 2004].

En 2000, un échantillon de molécules froides a été obtenu à partir d'un condensat d'atomes de ^{87}Rb, par photoassociation à 2 photons [Wynar et al., 2000]. L'étude des raies de photoassociation a permis de déterminer une borne supérieure au taux de collisions molécule-atome, estimée à 8×10^{-11} cm^3 s^{-1}.
Le groupe de Ketterle [Mukaiyama et al., 2004] s'est intéressé, lui, aux propriétés collisionnelles des molécules de sodium. Ces molécules sont créées par résonance de Feshbach dans un condensat atomique. Ils ont observé des pertes importantes du nombre de molécules à cause de collisions molécule-molécule et molécule-atome. En étudiant son évolution, ils ont pu déduire un taux de collisions molécule-atome de $5,5 \times 10^{-11}$ cm^3 s^{-1}.

Dans ces deux expériences, les molécules sont détectées de façon indirecte. Dans la première, on mesure la perte du signal atomique dans le condensat. Dans la deuxième, les molécules sont transformées en atomes en traversant une résonance de Feshbach à l'aide d'un champ magnétique, puis les atomes sont détectés avec une imagerie par absorption.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

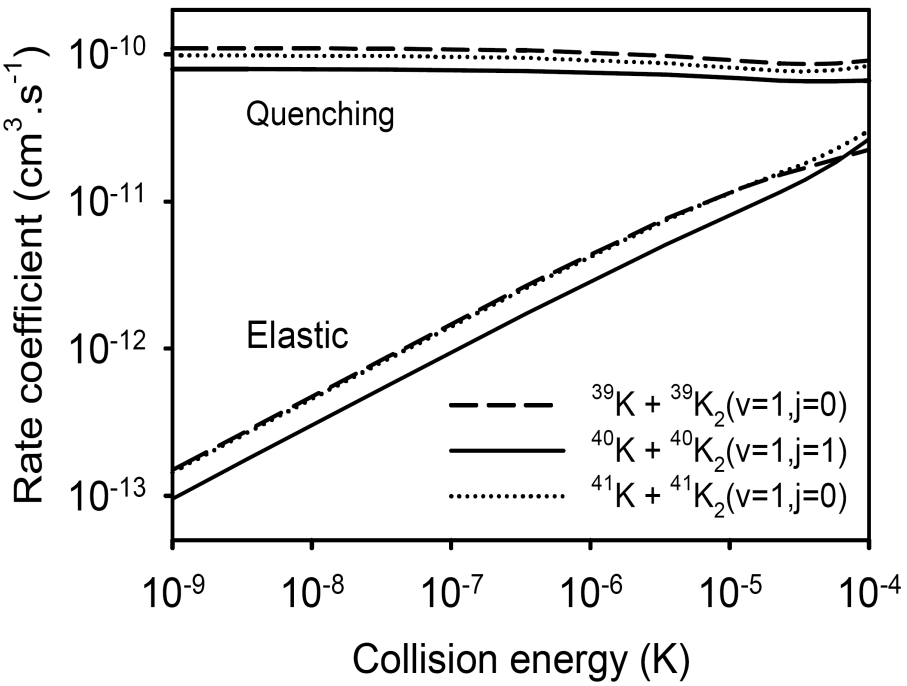

FIG. 3.27 – Comparaison des taux de collisions élastiques et inélastiques molécule-atomes, calculés théoriquement dans [Quéméner et al., 2005], dans le cas d'isotope du potassium bosonique (ligne en tirets et pointillés) et fermionique (ligne continue). Les molécules sont considérées dans le niveau vibrationnel $v = 1$. Cette figure nous montre que les taux de collisions inélastiques sont très importants, même dans le cas d'atomes fermioniques. Il y a seulement une légère différence entre le cas des bosons et celui des fermions. En considérant les collisions élastiques et inélastiques, les taux sont plus importants pour des atomes bosoniques. Toutefois le rapport du taux de collisions élastiques sur celui des collisions inélastiques est presque identique dans les deux types de système, fermionique et bosonique. L'énergie de collision est exprimée en kelvin. Cette figure est extraite de [Quéméner et al., 2005].

L'estimation du taux de collisions molécule-atome donnée par ces deux groupes est en bon accord avec celui que l'on obtient. De telles valeurs de taux de collisions expliquent l'échec de toutes les tentatives de production de condensats moléculaires stables composés de bosons. Il s'avère donc nécessaire de réduire ces taux de collisions. Ces processus devraient dépendre de façon importante de l'état interne de la molécule. En particulier, le taux de collisions inélastiques devrait décroître rapidement avec des états moléculaires de plus en plus profonds. [Balakrishnan et al., 1998] montrent théoriquement que les taux de collisions inélastiques, entre des dimères d'hydrogène H_2 et des atomes d'hélium ^{3}He et ^{4}He, décroît de trois ordres de grandeur lorsque le niveau de vibration initial de la molécule change de $v = 10$ à $v = 1$.

L'état moléculaire, ($v = 2$, $J = 2$) du potentiel 0_g^- ($p_{3/2}$) que nous avons excité par photoassociation, produit, après désexcitation spontanée, des molécules froides dans les niveaux de vibration élevés du potentiel fondamental triplet ($v' = 33 - 47$). Nous avons également photoassocié les atomes du piège vers d'autres états moléculaires, suceptibles de créer des molécules froides dans des niveaux de vibration très différents. Nous présentons dans la section suivante les résultats de ces expériences.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

3.5.4 Étude des collisions en fonction de l'état interne moléculaire

Les taux de collisions molécule-molécule et molécule-atome que nous avons mesurés devraient dépendre fortement de l'état vibrationnel des molécules du piège dipolaire [Balakrishnan et al., 1998]. Nous avons donc tenté de vérifier expérimentalement ce comportement en photoassociant les atomes du piège vers différents états moléculaires. Sur la Fig. 3.28, nous pouvons comparer l'évolution du nombre de molécules froides piégées, formées après désexcitation spontanée du niveau $(v = 6, J = 2)$ du potentiel excité 0_g^- $(p_{3/2})$ et d'un niveau trés élevé du même potentiel, la raie "géante" G1 (voir Fig. 3.3). Ces expériences ont été réalisées avec et sans atomes, dans des conditions expérimentales identiques. La photoassociation vers le niveau de rotation-vibration $(v = 6, J = 2)$ permet la production de molécules froides dans les niveaux très élevés du potentiel fondamental triplet $a^3\Sigma_u^+$ $(v' = 33 - 47)$; alors qu'en photoassociant vers la raie G1, les molécules froides sont distribuées dans les états profonds du potentiel fondamental triplet $(v' = 7 - 9)$ [Vatasescu et al., 2000]. On peut remarquer sur la Fig. 3.28 qu'il y a un régime de décroissance semblable entre les deux voies de photoassociation, que la perte d'atomes soit due aux collisions molécule-atome dans les pièges mixtes (courbes avec atomes ; symboles pleins), aux collisions molécule-molécule [23] (courbes sans atomes aux temps courts ; symboles demi-pleins), ou tout simplement à la durée de vie du piège purement moléculaire (courbes sans atomes aux temps longs ; symboles demi-pleins).
Les conclusions du travail de [Balakrishnan et al., 1998] sur les collisions entre molécules d'hydrogène et atomes d'hélium ne semblent donc pas vérifiées dans nos expériences, dans le cas du césium.

La photoassociation vers le potentiel 0_u^+, sous la limite $6s_{1/2} + 6p_{1/2}$, a également été réalisée. Les molécules froides produites sont censées se trouver cette fois dans des niveaux de rotation-vibration élevés du potentiel fondamental singulet $X^1\Sigma_g^+$ $(v' \sim 132)$ [Dion et al., 2001]. La Fig. 3.29 compare leur comportement avec celui de molécules froides créées à partir de l'état $(v = 6, J = 2)$ du potentiel 0_g^- $(p_{3/2})$, dans les mêmes conditions expérimentales. Là encore, avec ou sans atomes dans le piège, on ne remarque pas de comportement clairement différent, même si le signal de piégeage n'est pas très bon. L'interprétation de ces données est en réalité assez compliquée, puisque les molécules froides formées ne sont pas identifiées de façon précise. Il faut également étudier en détail la réelle possibilité que l'on a d'ioniser les molécules dans l'état singulet avec notre schéma REMPI. Nous sommes *a priori* capables, au mieux, de détecter les niveaux les plus élevés du potentiel singulet.
Nous travaillons à la réalisation d'un schéma de photoassociation nous permettant de peupler sans ambiguité le potentiel singulet, puis d'ioniser de façon efficace les molécules froides, distribuées dans les états profonds du potentiel.
Nous avons également représenté sur la Fig. 3.29 l'évolution d'un piège purement moléculaire, créé en photoassociant le niveau $v = 1$ du potentiel 1_u $(p_{3/2})$. Les molécules froides sont dans les derniers niveaux sous la limite de dissociation $6s_{1/2} + 6s_{1/2}$ (voir Sec. 3.2.4). La durée de vie du piège est identique à celles obtenues dans les précédentes expériences.

[23] Dans cette expérience, le nombre de molécules est tellement faible que l'on ne peut rien conclure à leur propos.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

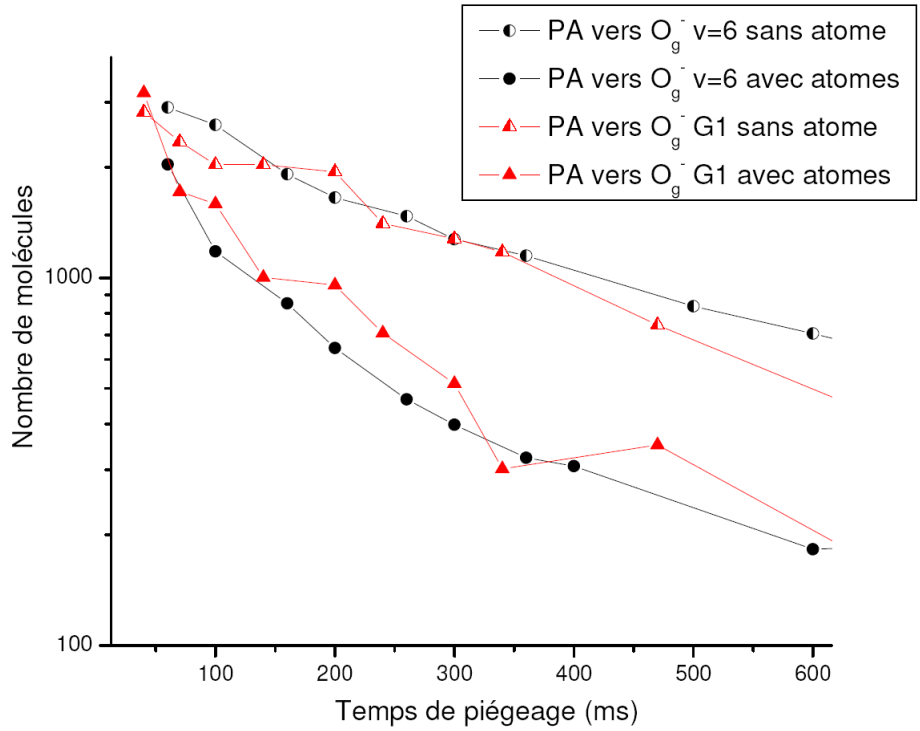

FIG. 3.28 – Evolution temporelle du nombre de molécules avec (symboles pleins) ou sans atomes (symboles demi-pleins) dans le piège dipolaire, après photoassociation vers le niveau $(v = 6, J = 2)$ (symboles en cercles) vers la raie G1 (symboles en triangles) du potentiel 0_g^- $(p_{3/2})$. Ces deux états photoassociés sont censés peupler, après désexcitation spontanée, différents niveaux de vibration dans le potentiel fondamental triplet et avoir des propriétés collisionnelles différentes. On ne voit ici aucune réelle différence dans la décroissance du nombre de molécules.

La formation de molécules froides dans des états internes différents ne semble rien changer aux propriétés collisionnelles du piège moléculaire, ce qui n'était pas attendu [Balakrishnan et al., 1998]. Il faut néanmoins noter que les molécules froides piégées sont formées proche de la limite de dissociation, liées au plus de ~ 170 cm^{-1} alors que la profondeur du potentiel singulet est de l'ordre de 3600 cm^{-1}. Les calculs ont quant à eux été effectués en considérant des molécules dans les niveaux vibrationnels les plus bas du potentiel. Pour tester véritablement les prédictions théoriques, il faudrait donc contrôler très précisément le mécanisme de formation des molécules froides en ne les formant que dans un des niveaux vibrationnels les plus bas du potentiel singulet.
Nous observons donc des taux de collisions molécule-atome très importants dans nos expériences, et la possibilité d'atteindre la condensation de Bose-Einstein moléculaire apparaît fortement compromise. La solution qu'il faudrait envisager serait de créer des molécules froides dans l'état $v = 0$ du potentiel fondamental singulet $X^1\Sigma_g^+$. Des études sont en cours dans notre laboratoire pour y parvenir.

3.5.5 Durée de vie du piège moléculaire

Nous nous sommes intéressés jusqu'à maintenant à des temps de piégeage courts (< 300 ms) pour lesquels les taux de collisions molécule-atome et molécule-molécule ont pu être estimés. Nous allons nous concentrer à présent sur les temps de piégeage longs.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

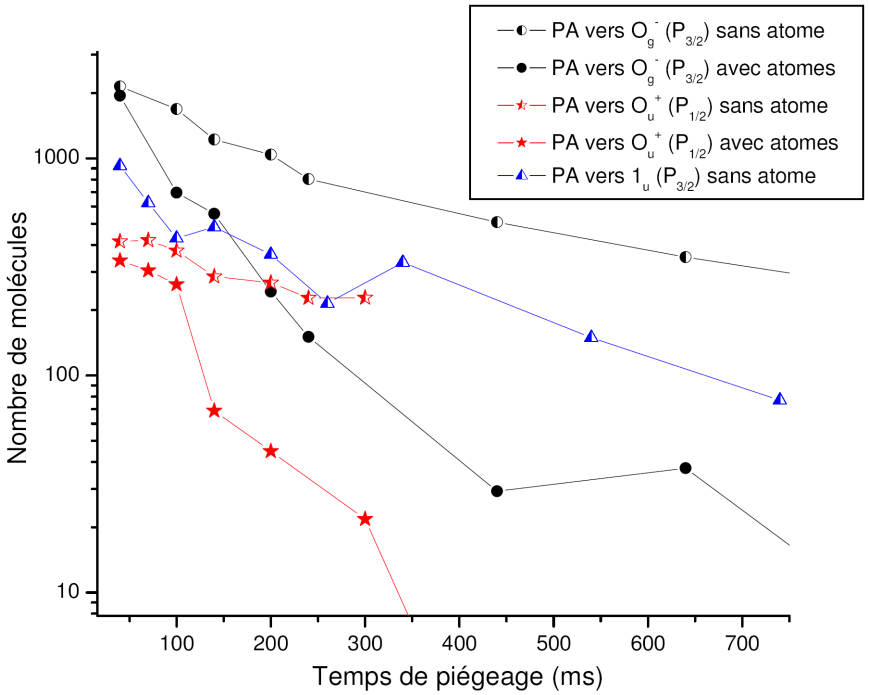

FIG. 3.29 – Evolution temporelle du nombre de molécules avec (symboles pleins) ou sans atomes (symboles demi-pleins) dans le piège dipolaire, après photoassociation vers le niveau $(v = 6, J = 2)$ du potentiel 0_g^- sous $p_{3/2}$ (symboles en cercles), $(v = 1)$ du potentiel 1_u sous $p_{3/2}$ (symboles en triangles) et un niveau du potentiel 0_u^+ sous $p_{1/2}$ (symboles en étoiles). Ces deux états photoassociés sont censés peupler, après désexcitation spontanée, différents niveaux de vibration dans le potentiel fondamental triplet et avoir des propriétés collisionnelles différentes. On ne voit ici aucune réelle différence dans la décroissance du nombre de molécules.

La fig. 3.22 témoignait d'un comportement différent entre l'évolution temporelle du piège atomique et celui purement moléculaire. En effet, les constantes de décroissance, ou durées de vie, diffèrent d'un facteur 4 entre les deux types de piège ($\approx 2,7$ s pour les atomes et $\approx 0,64$ s pour les molécules). Pour le piège atomique, cette décroissance est clairement identifiée et est attribuée aux collisions avec le gaz chaud résiduel. Pour le piège moléculaire, plusieurs phénomènes peuvent expliquer cette durée de vie.

Influence du laser CO_2

Pour expliquer cette différence, nous avons dans un premier temps testé le rôle de l'intensité du laser CO_2 sur les deux durées de vie. En effet, le laser CO_2 pourrait induire des transitions radiatives au sein des niveaux fondamentaux de la molécule et engendrer un chauffage voire même, après absorption successive de photons, mener à la dissociation de la molécule. Rappelons que les transitions dipolaires électriques entre niveaux de rotation-vibration des potentiels fondamentaux sont, au premier ordre, interdites mais deviennent permises en considérant une contribution au second ordre de l'interaction spin-orbite ; ceci nous laisse penser que le laser CO_2, voire également le rayonnement du corps noir, pourraient être des causes de perte de molécules dans le piège dipolaire. On peut simplement noter que ces deux effets peuvent avoir un rôle décisif dans le piégeage de molécules hétéronucléaires, où, cette fois, les transitions entre niveaux de vibration d'un même potentiel sont permises.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Ces processus ont été étudiés dans le cas du piégeage de LiCs dans un laser CO_2 et semblent très préjudiciables ([Mudrich, 2003] p127).
Pour évaluer l'influence du laser CO_2, nous avons considéré deux tailles de faisceau au niveau du point de focalisation (84 μm et 100 μm), qui correspondent à des intensités laser différentes. Nous n'avons observé aucune différence dans l'évolution des durées de vie des pièges atomique ou moléculaire. Il n'apparaît donc pas que le laser CO_2 induise des transitions entre niveaux ro-vibrationnels.

Il semble donc que le facteur 4 entre la durée de vie d'un piège atomique et celle d'un piège moléculaire résulterait plutôt des collisions avec le gaz résiduel d'atomes chauds. La section efficace de collision molécule-atome$_{chd}$ serait plus importante que celle atome-atome$_{chd}$, ce qui expliquerait la différence de durée de vie entre les deux types de piège.

Influence du gaz chaud : piégeage magnétique

Pour comprendre la durée de vie du piège moléculaire, nous avons réalisé successivement un piège magnétique purement atomique puis purement moléculaire, et nous avons comparé leur durée de vie. La première démonstration du piégeage magnétique de molécules froides a été réalisée au laboratoire Aimé Cotton, pendant la thèse de Nicolas Vanhaecke, sur ce dispositif expérimental [Vanhaecke, 2003, Vanhaecke et al., 2002]. Le piège magnétique est réalisé à l'aide des bobines de champ magnétique du piège magnéto-optique, à travers lesquelles nous avons fait passer un courant produisant un gradient de champ, non plus de 13 G cm^{-1}, mais de 60 G cm^{-1}. De tels gradients de champ magnétique nous permettent de piéger l'état triplet du potentiel fondamental moléculaire [24]. Les courbes de durée de vie obtenues sont tracées sur la Fig. 3.30 . Le piège magnétique atomique a été réalisé avec des atomes dans l'état hyperfin $f = 3$, et les molécules ont été créées après photoassociation vers l'état 0_g^- sous $(p_{3/2})$. On observe une durée de vie de l'ordre de 1,8 s pour le piège atomique et d'environ 400 ms pour le piège moléculaire [25].
On voit, là encore, une différence importante entre les durées de vie atomique et moléculaire. On peut conclure que les faibles durées de vie moléculaires observées dans le piège dipolaire ne sont pas dues à l'absorption de photons du laser CO_2. L'influence du rayonnement du corps noir étant du même ordre de grandeur ([Mudrich, 2003] p130), voire plus faible, on peut définitivement admettre que la durée de vie du piège dipolaire moléculaire est limitée par les collisions avec le gaz résiduel.

L'expression du taux de collisions entre les atomes ou molécules du piège avec le gaz résiduel Cs_{res} est donnée par :

$$\alpha_{Cs} = n_{res}\ \sigma_{CsCs_{res}}\ \bar{v}_{res} \tag{3.26}$$

$$\alpha_{Cs_2} = n_{res}\ \sigma_{Cs_2Cs_{res}}\ \bar{v}_{res} \tag{3.27}$$

où n_{res} représente la densité du gaz résiduel, $\bar{v}_{res}$ la vitesse moyenne des atomes du gaz résiduel, et $\sigma_{CsCs_{res}}$, $\sigma_{Cs_2Cs_{res}}$ respectivement les sections efficaces de collisions atomes piégés-atomes chauds, et molécules piégées-atomes chauds.

[24] Des molécules dans l'état singulet $X^1\Sigma_g^+$ ne peuvent être piégées puisqu'elles n'ont pas de moment magnétique, leur moment cinétique de spin étant nul.

[25] Le piège magnétique possède un zéro de champ magnétique qui n'induit pas dans notre cas de pertes notables par transitions Majorana (transitions dépolarisantes), puisque les densités atomiques et moléculaires sont très faibles.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

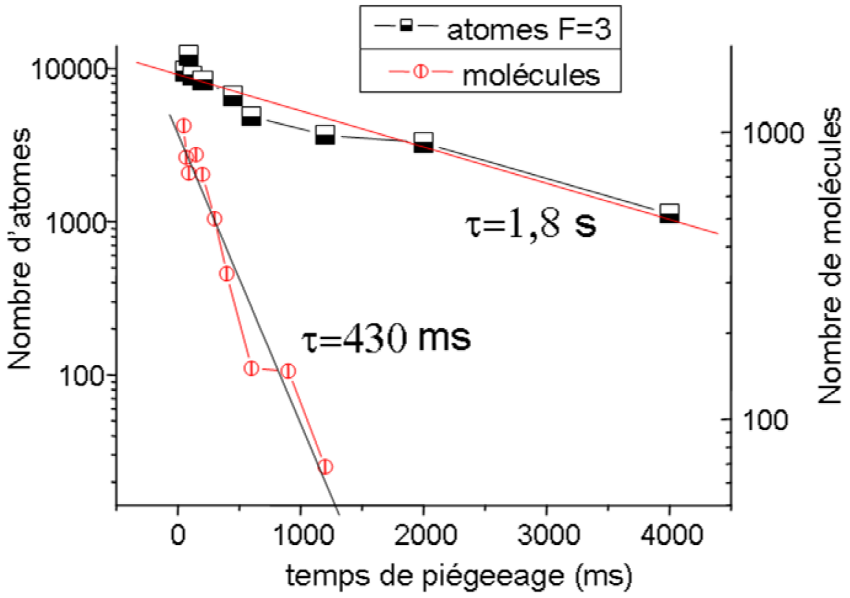

FIG. 3.30 – Evolution du nombre de particules, atomes ou molécules, dans un piège magnétique. La courbe avec des symboles carrés correspond à l'évolution du nombre d'atomes dans un piège magnétique. La durée de vie déduite d'un ajustement par une fonction exponentiellement décroissante est d'environ 1,8 s. La courbe avec des cercles correspond à l'évolution du nombre de molécules dans un piège magnétique. La durée de vie est dans ce cas d'environ 430 ms.

Le rapport des durées de vie des pièges moléculaire $\alpha_{\mathrm{Cs_2}}^{-1}$ et atomique $\alpha_{\mathrm{Cs}}^{-1}$, que ce soit dans le cas d'un confinement optique ou magnétique, est de l'ordre de 4, d'où :

$$\sigma_{\mathrm{CsCs_{res}}} \approx 4\sigma_{\mathrm{Cs_2Cs_{res}}} \tag{3.28}$$

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

3.6 Conclusion

Nous avons pu démontrer, dans un premier temps, le piégeage de molécules ultrafroides de césium dans un piège dipolaire réalisé à l'aide d'un laser CO_2. Selon les conditions expérimentales, nous avons été capables de piéger jusqu'à environ 12000 molécules, à des densités moyennes d'environ 3×10^{10} cm^{-3} et d'atteindre des temps de piégeage supérieurs à la seconde. Une étude collisionnelle systématique au sein du piège dipolaire nous a permis de déterminer des taux de collisions inélastiques molécule-atome et molécule-molécule très élevés, non compatibles avec la formation d'un condensat de Bose-Einstein moléculaire stable. Ce comportement collisionnel est une conséquence directe du caractère bosonique de l'atome de césium. Bien que diverses études théoriques prédisent un taux de collisions molécule-atome fortement dépendant du niveau vibrationnel des molécules piégées, nous n'avons pas observé un tel comportement ; il est cependant nécessaire, dans notre expérience, de pouvoir contrôler très précisément l'état interne des molécules formées pour définitivement conclure quant à cette dépendance. Concernant la durée de vie d'un piège purement moléculaire, nous avons montré qu'elle est limitée par les collisions avec le gaz résiduel ; la section efficace de collision étant 4 fois plus élevée entre molécule froide et atome chaud qu'entre atome froid et atome chaud. Il serait très intéressant d'augmenter la durée de vie du piège moléculaire en diminuant la pression du gaz résiduel, ce qui nous permettrait de pouvoir mesurer la durée de vie de l'état moléculaire métastable $a^3\Sigma_u^+$, étudier plus précisément les collisions molécule-molécule, et probablement observer des transitions radiatives induites par le laser CO_2.
Jusqu'à présent, les molécules sont principalement formées dans des niveaux de vibration élevés. Un enjeu très important serait de produire des molécules froides dans les niveaux de vibration les plus bas du potentiel fondamental singlet $X^1\Sigma_g^+$, ce qui devrait révéler un comportement collisionnel bien différent. La technique de photoassociation à deux photons [Wynar et al., 2000, Vanhaecke et al., 2004] à travers un état moléculaire excité apparaît comme un bon moyen d'y parvenir. L'utilisation d'impulsions de photoassociation façonnées temporellement [Koch et al., 2005] ou la réalisation du processus de photoassociation par micro-ondes pourraient permettre la formation des molécules dans un état de rotation-vibration bien déterminé.
A terme, l'obtention d'un échantillon dense de molécules froides dans l'état de plus basse énergie ($v = 0$, $J = 0$), non perturbé par les collisions inélastiques, pourrait permettre d'atteindre la condensation de Bose-Einstein à partir d'espèces atomiques bosoniques.

Notons, avant de conclure, qu'une expérience très proche de celle que nous avons entreprise a été réalisée simultanément par l'équipe de M. Weidemüller à Freiburg [Staanum et al., 2006]. Elle rapporte une mesure du taux de collisions inélastiques molécule-atome de l'ordre de 10^{-10} cm^3 s^{-1}, ce qui est 3 fois plus élevé que ce que l'on obtient. Cette différence n'a pas encore été expliquée jusqu'à présent.
Tout comme dans notre expérience, ils n'observent pas de variation du taux de collisions en fonction du niveau de rotation-vibration peuplé par photoassociation.
La réalisation des expériences menées par nos deux équipes de recherche montre l'intérêt croissant porté par la communauté scientifique à l'exploration du domaine complexe des collisions impliquant des atomes et des molécules froids.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Deuxième partie

Spectroscopie haute résolution d'un gaz d'atomes de Rydberg froids en interaction

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Chapitre 4

Spectroscopie haute résolution d'un gaz d'atomes de Rydberg froids en interaction

4.1 Préambule

Nous quittons le domaine des molécules froides, tout en restant dans celui des collisions et interactions froides, mais cette fois entre atomes très excités : les atomes de Rydberg.
Le groupe qui a développé le domaine des molécules froides au laboratoire Aimé Cotton a également, en collaboration avec celui de T. Gallagher, développé le domaine des atomes de Rydberg ultrafroids. Cette collaboration s'explique par la similitude des deux montages expérimentaux nécessaires à ce genre d'études ; de plus, outre l'espèce atomique manipulée (rubidium, césium), la physique mise en jeu ne diffère pas vraiment entre les deux expériences. Le mécanisme responsable du processus de photoassociation est une interaction dipôle-dipôle entre les deux atomes sous rayonnement. Une telle interaction va sous-tendre également la physique des états de Rydberg. Il est très intéressant de remarquer qu'un concept fondamental pour les atomes de Rydberg comme celui du défaut quantique se retrouve pour les molécules photoassociées, dans la théorie de LeRoy-Bernstein, qui est une généralisation de ce concept. Ces considérations ont sans doute conduit les groupes réalisant des molécules froides par photoassociation à très souvent développer une activité sur les atomes de Rydberg froids.

4.2 Introduction : intérêt des atomes de Rydberg

Depuis 1975, la physique des gaz d'atomes de Rydberg a fait l'objet d'un intérêt qui ne s'est jamais altéré. Possédant un moment dipolaire électrique important et une durée de vie très longue, les atomes de Rydberg se sont révélés être des systèmes d'étude privilégiés dans le domaine de la physique atomique [Gallagher, 1994]. Comparés à des atomes "ordinaires" dans leur état fondamental ou dans un état peu excité, les atomes de Rydberg offrent la possibilité d'étudier la matière dans des conditions environnementales "extrêmes". Il existe en quelque sorte une loi d'échelle faisant correspondre l'effet d'un champ électrique, magnétique, ou électromagnétique modeste auquel peut être soumis un atome de Rydberg avec celui d'un champ considérable dans lequel baigne un atome "ordinaire", comme par exemple dans une étoile.
On ne peut rapporter rapidement ici les résultats fondamentaux obtenus par de nombreuses

équipes concernant la spectroscopie des états de Rydberg, les atomes de Rydberg en champ externe électrique ou magnétique, les atomes de Rydberg en cavité... dont il est fait référence dans le livre [Gallagher, 1994]. Mentionnons tout de même l'exemple très parlant des études sur le chaos quantique que les atomes de Rydberg ont rendues possibles à travers des expériences très démonstratives [Bouloufa et al., 1995].

Les avancées dans le domaine du refroidissement laser et du piégeage atomique ont ouvert de nouvelles perspectives d'application en utilisant des atomes de Rydberg froids. Dans une première approximation, ces atomes peuvent, à l'échelle de temps des expériences, être considérés comme quasi-immobiles : la durée de vie des atomes de Rydberg impose de réaliser les expériences en un temps typique de l'ordre de quelques microsecondes. Le fait que les atomes froids aient des vitesses très faibles ($\sim$ 10 cm/s) permet de considérer ces atomes comme pratiquement immobiles, car leur déplacement est de l'ordre de grandeur de leur taille ($\sim$ 100 nm pour $n = 20$). Pour les densités d'atomes de Rydberg que l'on considère (10^8 - 10^{10} cm^{-3}), les déplacements sont de plus d'un ordre de grandeur plus petit que la distance moyenne entre les atomes froids (20 - 5 μm). On s'attend donc pour un tel système à des propriétés qui s'apparentent davantage à celles d'un solide, et plus précisément d'un solide amorphe à cause de la répartition stochastique des atomes. Des effets de transfert d'énergie induits par l'interaction dipôle-dipôle, très analogues à la migration d'un exciton dans un solide, ont pu être observés [Anderson et al., 1998, Mourachko et al., 1998].
Lorsque la densité d'atomes est très importante, des effets "dramatiques" complètement différents sont observés avec l'évolution spontanée du gaz de Rydberg vers un plasma ultrafroid [Robinson et al., 2000]. Les atomes de Rydberg se trouvent ici à la frontière de la physique des plasmas avec comme enjeu important l'étude des plasmas corrélés pouvant conduire à un phénomène de cristallisation.
Ce domaine est l'objet d'une activité intense tant théorique qu'expérimentale, visant à contrôler les interactions entre atomes de Rydberg [Fioretti et al., 1999b], ce qui a de nombreuses implications vers les plasmas ultrafroids et la création de molécules géantes de Rydberg [Greene et al., 2000, Boisseau et al., 2002, Farooqi et al., 2003]. Le contrôle de ces interactions peut intervenir également dans des schémas de manipulation quantique d'une paire d'atomes qui présenteraient un intérêt majeur pour l'information quantique [Jaksch et al., 2000, Lukin et al., 2001, Ryabtsev et al., 2005]. Dans ce contexte, les interactions longues distances doivent permettre l'intrication des états atomiques.

Nous allons faire maintenant une brève présentation de la théorie de l'information quantique, ce qui nous permettra de mieux saisir l'implication des atomes de Rydberg dans ce domaine.

4.2.1 Information quantique

L'information quantique est un champ de recherche dont l'objectif est de tirer parti des possibilités offertes par la mécanique quantique pour traiter l'information d'une manière plus efficace [Bennett and DiVincenzo, 2000]. Le calcul quantique, employant de nouveaux algorithmes basés sur les principes de la mécanique quantique, doit permettre de diminuer radicalement les temps de calcul nécessaires pour résoudre certains problèmes.
La confidentialité des systèmes de cryptographie utilisés actuellement repose sur la difficulté algorithmique supposée de certains problèmes, comme par exemple la décomposition de grands nombres en facteurs premiers. Un ordinateur quantique pourrait justement permettre

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

de factoriser des grands nombres en un temps bien plus court qu'en utilisant les techniques actuelles de calcul classique. Il est donc nécessaire de développer d'autres méthodes de cryptographie, résistantes à une "attaque quantique".
La réalisation pratique d'un tel ordinateur doit cependant faire face à des difficultés expérimentales énormes, loin d'être résolues. La difficulté principale est d'arriver à préserver la cohérence quantique du système pendant toute la durée du calcul. Cela signifie que les qubits, unités de stockage de l'information quantique, doivent être complètement découplés du monde extérieur. Plus le nombre de qubits devient grand et plus la probabilité que l'un d'entre eux interagisse avec l'environnement augmente, ce qui accroît la probabilité que le calcul échoue. Le nombre de qubits nécessaires à la réalisation des calculs envisagés, plusieurs milliers pour factoriser un nombre de 200 chiffres, est pour l'instant bien au-delà du record actuel de 7 qubits utilisés pour la factorisation du nombre 15 [Vandersypen et al., 2001]. D'après David Deutsch, un ordinateur de 100 qubits permettrait de simuler le fonctionnement de tout un cerveau humain, et un de 300 qubits, l'évolution de l'univers entier depuis le Big Bang.

Nous allons rappeler, dans un premier temps, le principe de base du fonctionnement des ordinateurs actuels et la manière dont les informations y sont stockées et manipulées ; la théorie de l'information qui régit leur fonctionnement est dite *classique* par opposition à l'information *quantique*. Nous évoquerons dans un deuxième temps les particularités du traitement quantique de l'information, puis discuterons de sa réalisation pratique en passant en revue quelques approches expérimentales.

Théorie de l'information classique

L'unité de base de l'information classique est le *bit*, une entité qui peut se trouver dans un des deux états symbolisés par $\mathtt{0}$ et $\mathtt{1}$. Dans un ordinateur, un bit peut être réalisé concrètement par la combinaison d'un transistor et d'un condensateur. Lorsque le condensateur est chargé, le bit est dans l'état $\mathtt{1}$, et dans le cas contraire, le bit est dans l'état $\mathtt{0}$. Le transistor permet de "récupérer" ou de modifier l'état du condensateur. Le principe de fonctionnement d'un ordinateur passe par la manipulation de ces unités d'information et donc le contrôle de l'état dans lequel elles se trouvent. Les opérations élémentaires qui peuvent être appliquées à cette fin sont appelées couramment des *portes* ("gates"). La porte NOT est un exemple de portes qui peuvent s'appliquer sur un bit seul. L'application de cette porte a pour effet de changer l'état dans lequel se trouve le bit avant l'opération. Par exemple, si l'état initial du bit est $\mathtt{0}$, après avoir appliqué la porte NOT sur le bit, l'état se transforme en NOT($\mathtt{0}$)=$\mathtt{1}$. L'effet de cette porte peut être présenté de la manière suivante :

$$\mathtt{0} \rightarrow \mathrm{NOT}(\mathtt{0}) = \mathtt{1} \tag{4.1}$$
$$\mathtt{1} \rightarrow \mathrm{NOT}(\mathtt{1}) = \mathtt{0} \tag{4.2}$$

Nous pouvons également présenter la porte RESET qui a pour résultat $\mathtt{0}$, quel que soit l'état initial :

$$\mathtt{0} \rightarrow \mathrm{RESET}(\mathtt{0}) = \mathtt{0} \tag{4.3}$$
$$\mathtt{1} \rightarrow \mathrm{RESET}(\mathtt{1}) = \mathtt{0} \tag{4.4}$$

L'application combinée de ces deux portes permet la manipulation totale des états d'un bit. Il est bien évident que le fonctionnement d'un ordinateur ne repose pas uniquement sur l'état d'un bit unique. Les unités d'information sont en fait combinées pour représenter bien

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

plus d'informations à traiter. Les bits sont donc combinés en séquences dont les états sont symbolisés par des chaînes d'états. Par exemple, une séquence de deux bits peut être dans un de ces quatre états : 00, 01, 10, et 11. Les différents bits sont distingués par la position qu'ils occupent dans la séquence. Les portes à 1 bit peuvent être appliquées à n'importe quel bit de la séquence. Cependant, si l'on veut manipuler les séquences de bits, ces portes ne suffisent plus. Il faut des portes qui n'agissent pas de façon indépendante sur chaque bit d'une chaîne. Une de ces portes est la porte NAND ("NOT AND"). Cette porte agit sur deux bits d'une séquence et a pour effet de fixer à 0 l'état du premier bit si les deux bits sont dans l'état 1 ; sinon l'état du premier bit est fixé à 1 :

$$00 \rightarrow \text{NAND}(00) = 10 \tag{4.5}$$
$$01 \rightarrow \text{NAND}(01) = 11 \tag{4.6}$$
$$10 \rightarrow \text{NAND}(10) = 10 \tag{4.7}$$
$$11 \rightarrow \text{NAND}(11) = 01 \tag{4.8}$$

La porte NAND peut être appliquée à deux bits situés n'importe où dans une séquence. Par exemple, elle peut agir sur le quatrième et le deuxième bit (dans cet ordre) d'une séquence de 4 bits ; l'état initial 1101 se transformerait ainsi en 1100, fixant le quatrième bit à 0.

Toutes les portes présentées jusqu'à maintenant suffisent à engendrer n'importe quelle transformation des états d'une séquence de bits. Les instructions nécessaires pour appliquer ces portes dans un ordre particulier sont appelées un circuit. Une part importante de la recherche dans le traitement de l'information est de déterminer le nombre minimum de portes et de bits à utiliser pour un circuit donné. La complexité d'un circuit provoquant une transformation particulière, est le nombre minimum de portes requises pour la mettre en oeuvre.

Nous allons maintenant aborder la théorie de l'information quantique qui présente des différences fondamentales par rapport à la théorie de l'information classique.

Théorie de l'information quantique

Le bit quantique (qubit) : L'entité fondamentale et unité de base de l'information quantique est le bit quantique ou qubit, qui se comporte comme un bit classique en tenant compte du principe fondamental de superposition. D'un point de vue physique, un qubit est représenté par un système quantique idéal à deux états. Les photons (polarisation verticale et horizontale), les électrons et autres ensembles de spin 1/2 (spin haut et bas), ainsi que les systèmes définis par deux états d'énergie d'atomes ou d'ions, sont des exemples d'entités pouvant représenter un qubit.
Dans le cadre de l'information quantique, l'espace des états d'un qubit contient deux *états logiques* $|0\rangle$ et $|1\rangle$. L'état initial d'un qubit est toujours un des deux états logiques. L'application d'opérations sur ces qubits nous permet d'obtenir des états qui sont des *superpositions* d'états logiques. Ces superpositions peuvent être exprimées en fonction d'une combinaison linéaire $\alpha|0\rangle + \beta|1\rangle$ des états logiques, où α et β sont les amplitudes complexes de la superposition. Les états d'un qubit qui sont des superpositions d'états logiques sont appelés des états *purs*. Dans ce cas, les amplitudes de la superposition répondent à la relation de normalisation $\alpha^2 + \beta^2 = 1$. L'existence de telles superpositions d'états de systèmes quantiques est l'essence même de la théorie de l'information quantique.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Pour mieux faire le lien entre l'information classique et l'information quantique, nous allons introduire un concept faisant intervenir la notion de probabilité. Il existe un type plus familier d'informations dont les états sont des combinaisons d'états logiques. L'unité de base de ce genre d'information est le bit probabiliste ou pbit. Intuitivement le pbit peut être vu comme le résultat non encore déterminé du jet d'une pièce de monnaie (pile ou face). L'espace des états d'un pbit est donné par la distribution de probabilité des états du bit. On peut symboliser un tel état par l'expression $\{p : \mathtt{0}, (1-p) : \mathtt{1}\}$ qui signifie que le pbit a la probabilité p d'être dans l'état $\mathtt{0}$ et $(1-p)$ d'être dans $\mathtt{1}$. Ainsi, l'état d'un pbit est la combinaison probabiliste de deux états logiques, dont la somme des coefficients est égale à 1. Dans l'exemple d'un jet de pièce de monnaie, où le résultat face est l'état $\mathtt{0}$ et le résultat pile, l'état $\mathtt{1}$, l'état du pbit (la pièce) est $\{1/2 : \mathtt{0}, 1/2 : \mathtt{1}\}$. Une fois le résultat du lancer connu, l'état fusionne en un état logique $\mathtt{0}$ ou $\mathtt{1}$. C'est ainsi que le pbit est converti en un bit classique. Si le caractère probabiliste du pbit est corrélé à d'autres pbits, alors cette fusion, associée à la connaissance de l'état dans lequel se trouve le pbit, change la distribution de probabilité de l'ensemble des pbits. Une conséquence de ce résultat est que nous ne pouvons jamais voir la distribution de probabilité, mais uniquement les états de bits classiques.
Cet exemple fait un grand parallèle avec le qubit, car nous ne pouvons non plus jamais voir l'état général d'un qubit, qui possède aussi ce caractère probabiliste (L'état $\alpha|\mathtt{0}\rangle + \beta|\mathtt{1}\rangle$ a la probabilité α^2 d'être dans l'état $|\mathtt{0}\rangle$ et β^2 d'être dans $|\mathtt{1}\rangle$). La mesure d'un qubit revient également à convertir l'état du qubit en un bit classique.

L'utilisation de pbits dans le traitement de l'information présente de nombreux avantages par rapport à un traitement classique déterministe, basé sur la manipulation de simples bits. Dans certains cas, les algorithmes probabilistes (génétiques, Monte Carlo) sont bien plus efficaces que ceux de nature déterministe (par exemple la détermination du caractère premier d'un nombre).
Quelle est finalement la différence entre un bit, un pbit et un qubit ? Une façon de voir cette différence et de réaliser la richesse qu'apporte l'emploi de pbits et qubits est décrite sur la Fig. 4.1.

Opération sur 1 qubit : La version quantique de la porte NOT permet l'échange des états logiques dans l'expression d'un état pur :

$$\mathrm{NOT}(\alpha|\mathtt{0}\rangle + \beta|\mathtt{1}\rangle) = \alpha|\mathtt{1}\rangle + \beta|\mathtt{0}\rangle \tag{4.9}$$

L'action d'une porte NOT sur un état peut être représentée par la multiplication du vecteur d'état par la matrice de Pauli σ_x :

$$\mathrm{NOT}\begin{pmatrix}\alpha\\ \beta\end{pmatrix} = \begin{pmatrix}0 & 1\\ 1 & 0\end{pmatrix}\begin{pmatrix}\alpha\\ \beta\end{pmatrix} = \begin{pmatrix}\beta\\ \alpha\end{pmatrix} \tag{4.10}$$

Cette porte NOT est ce que l'on appelle une porte réversible, c'est-à-dire que son action peut être annulée en appliquant une seconde fois la porte NOT. La matrice représentant l'opération est alors dite unitaire ($U^\dagger U = I$), et cette condition d'unitarité est nécessaire et suffisante pour assurer la transformation d'un état pur en un autre état pur. Grâce à la correspondance des états d'un qubit aux points de la sphère de Bloch, les portes quantiques réversibles peuvent être vues comme des rotations sur la sphère de Bloch. C'est pour cela qu'on nomme fréquemment les portes agissant sur un qubit, des rotations. Ces rotations autour des

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

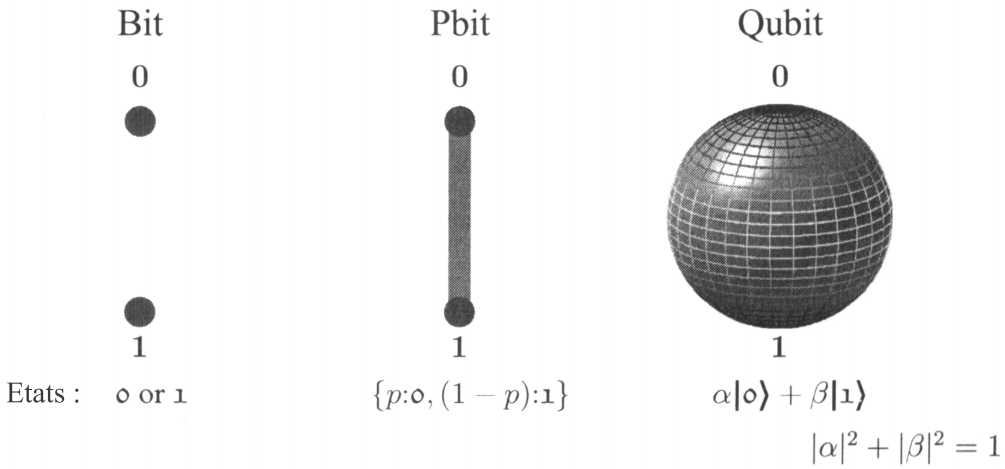

FIG. 4.1 – Comparaison de l'espace des états des différentes unités d'information. Les états d'un bit correspondent à deux points. Ceux d'un pbit sont une combinaison d'états d'un bit et peuvent être imaginés comme une ligne d'états connectant les deux états d'un bit classique. Les états purs d'un qubit correspondent à la surface d'une sphère unité à trois dimensions, sur laquelle les états logiques coïncident avec les pôles. Un état pur correspond donc à un point sur la sphère. Cette représentation des états d'un qubit est appelée la sphère de Bloch.

axes x, y, z sont générées par les matrices de Pauli,

$$\sigma_{\mathrm{x}} = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \quad \sigma_{\mathrm{y}} = \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix}, \quad \sigma_{\mathrm{z}} = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} \tag{4.11}$$

qui représentent chacune d'entre elles une porte quantique applicable sur un qubit. A titre d'exemple, une rotation d'un angle ϕ autour de l'axe x est donnée par $e^{i\sigma_x\phi/2} = \cos(\phi/2)I - i\sin(\phi/2)\sigma_x$. La porte Hadamard, très utilisée dans les algorithmes quantiques, est, elle, le produit d'une rotation d'un angle $\pi/2$ autour de l'axe y et de la matrice σ_z :

$$\mathrm{H} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 & -1 \\ 1 & 1 \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ 1 & -1 \end{pmatrix} \tag{4.12}$$

Nous venons de voir comment l'état pur d'un qubit peut être transformé en un autre point de la sphère de Bloch à l'aide de portes quantiques à un bit.

Opération sur 2 qubits : Les états à deux qubits sont symbolisés par la juxtaposition des états de chaque qubit. En particulier, on distingue les quatre états logiques $|00\rangle$, $|01\rangle$, $|10\rangle$, et $|11\rangle$. Chaque état d'un ensemble de deux qubits est de la forme :

$$\alpha|00\rangle + \beta|01\rangle + \gamma|10\rangle + \delta|11\rangle \tag{4.13}$$

Ce vecteur d'état doit être normé, ce qui impose la relation $\alpha^2 + \beta^2 + \gamma^2 + \delta^2 = 1$

Le plus simple des moyens de modifier l'état de deux qubits est d'appliquer une porte à 1 qubit qui pourra transformer l'état d'un des deux qubits de façon indépendante. Toutefois, l'utilisation de portes quantiques à 1 qubit limite grandement le nombre d'opérations possibles. Il n'est, par exemple, pas possible d'obtenir un état de Bell en partant de l'état $|00\rangle$ ou d'un autre état logique. On a donc besoin d'introduire au moins une porte quantique à deux

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

qubits. Les portes à deux qubits réalisent en général une dynamique conditionnelle : une transformation d'un des deux qubits est déterminée par l'état initial de l'autre. Il existe un grand nombre de telles portes et nous ne présenterons ici que la porte *Control NOT* ou CNOT, qui est sans doute la plus connue. Elle change l'état du *qubit cible* (deuxième qubit) uniquement si le *qubit de contrôle* (premier qubit) est dans l'état $|1\rangle$:

$$|00\rangle \rightarrow |00\rangle \tag{4.14}$$
$$|01\rangle \rightarrow |01\rangle \tag{4.15}$$
$$|10\rangle \rightarrow |11\rangle \tag{4.16}$$
$$|11\rangle \rightarrow |10\rangle \tag{4.17}$$

Sa représentation matricielle est alors :

$$\text{CNOT} = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \end{pmatrix} \tag{4.18}$$

En associant cette porte aux rotations individuelles de qubits et à l'opération de mesure quantique de l'état logique d'un qubit, on obtient un jeu de portes universel, suffisant pour réaliser n'importe quel calcul quantique.

Opération sur plusieurs qubits : Les opérations sur plus de deux qubits se font alors en appliquant des portes quantiques agissant sur n'importe quel qubit ou groupe de deux qubits, sachant que les deux qubits sont choisis indépendamment l'un de l'autre parmi tous les qubits du système [1]. Là encore, toutes les transformations capables d'agir sur les états du système peuvent être exprimées par la combinaison de produits de portes à 1 qubit et à 2 qubits.

Mesure d'un qubit : De façon à avoir accès "classiquement" à l'information concernant l'état de qubits, nous faisons appel à une opération dite de *mesure* (MEAS). La probabilité du résultat de la mesure est donnée par l'état dans lequel se trouve le système. L'état du qubit mesuré est réduit à un état logique. En supposant que nous avons uniquement un qubit, l'état du système est la superposition $\alpha|0\rangle + \beta|1\rangle$ et le résulat de la mesure est donné par :

$$\text{MEAS}(\alpha|0\rangle + \beta|1\rangle) = \begin{cases} 0 : |0\rangle & \text{proba } : |\alpha|^2 \\ 1 : |1\rangle & \text{proba } : |\beta|^2 \end{cases} \tag{4.19}$$

Réalisation expérimentale

Comme c'est souvent le cas, les réalisations expérimentales sont très en retard par rapport aux propositions théoriques. On ne connaît que quelques systèmes qui réalisent des qubits [roadmap, 2004]. Un des premiers est simplement constitué par la polarisation d'un photon. On ne connaît toutefois pas encore de portes quantiques efficaces couplant les états à deux photons. Il est donc très difficile de manipuler leur intrication. Les trois premiers systèmes avec lesquels il a été possible de réaliser une porte logique quantique et des manipulations élémentaires d'information sont basés sur l'utilisation de la résonance magnétique nucléaire, le piégeage d'ions et l'électrodynamique en cavité. Etudions brièvement ces trois systèmes :

[1] L'ensemble des qubits forme ce que l'on appelle un *registre*.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

- A l'heure actuelle, le système ayant démontré expérimentalement les calculs quantiques les plus sophistiqués est basé sur la résonance magnétique nucléaire [Chuang et al., 1998]. Les qubits sont les états de spin nucléaire d'atomes dans une molécule. Ils sont très bien isolés du monde extérieur et présentent donc des temps de cohérence longs. Les noyaux étant situés en des positions différentes, les fréquences de résonance associées sont elles aussi distinctes. Ils peuvent être donc manipulés individuellement par une impulsion radio-fréquence bien choisie. Par ailleurs, les spins des différents noyaux de la molécule sont couplés, et la fréquence de résonance d'un spin peut dépendre de l'état des spins voisins. On peut donc ainsi réaliser des transformations conditionnelles des spins, ce qui est l'ingrédient de base des portes logiques quantiques. Cette technique a permis de réaliser un algorithme factorisant le nombre 15 [Vandersypen et al., 2001], ce qui constitue pour l'instant l'algorithme quantique le plus évolué jamais réalisé. Cette technique possède cependant quelques limites lorsqu'il s'agit de manipuler un nombre important de qubits. Premièrement, plus ce nombre augmente et plus les noyaux deviennent difficilement adressables individuellement. Deuxièmement, le signal détecté décroît exponentiellement avec le nombre de qubits intervenant dans le calcul.

- Les techniques de piégeage d'ions sont maintenant très bien maîtrisées dans des configurations de champs électriques appropriées. Le codage d'un qubit est réalisé sur une transition entre deux niveaux de longue durée de vie d'un ion piégé. Le mouvement quantifié de l'ion dans le piège fournit un autre qubit codé sur les états à zéro et un quantum de vibration (phonon). Un refroidissement par laser permet d'initialiser l'ion dans l'état "zéro phonon". Des transitions optiques couplant états internes et états de vibration permettent de réaliser la porte logique CNOT. Le groupe de D. Wineland (NIST, Boulder) a ainsi pu réaliser la première porte logique quantique entre les niveaux internes et les niveaux de vibration d'un ion unique [Monroe et al., 1995]. Plus récemment, des manipulations beaucoup plus complexes, impliquant jusqu'à quatre ions, ont pu être réalisées. Dernièrement, la "téléportation" de l'état quantique d'un ion piégé vers celui d'un autre ion a été rapportée par l'équipe de R. Blatt à Innsbruck [Riebe et al., 2004].
L'utilisation d'ions piégés dans le cadre de l'information quantique semble très prometteuse mais quelques problèmes subsistent. Une source importante de décohérence provient du chauffage vibrationnel des ions induit par la fluctuation des champs électriques ou magnétiques au sein du piège. Actuellement, l'élaboration de la porte CNOT requiert une séquence de 8 impulsions laser se répartissant sur une période d'environ 500 μs, alors que le temps de décohérence est de l'ordre de 1 ms. Le terme décohérence (ou perte de cohérence) correspond à la corruption de l'information stockée dans les qubits due au couplage du système avec l'extérieur. Cette limitation d'ordre technique semble pouvoir être surmontée dans les prochaines années.
La manipulation d'un nombre élevé de qubits est envisagée en utilisant des réseaux de pièges ioniques communiquant entre eux par le biais de photons ou en déplaçant les ions d'un piège à un autre.

- L'électrodynamique quantique en cavité réalise le système matière-rayonnement le plus simple : un seul atome couplé à un seul mode de champ contenant zéro, un ou quelques photons. L'interaction atome/champ est utilisée pour générer de l'intrication. En utilisant des atomes de Rydberg circulaires et des cavités résonantes dans le domaine des micro-ondes, il est possible de réaliser les fonctions de base du traitement quantique de l'information. Le régime de couplage fort obtenu entre l'atome de Rydberg et le champ contenu dans la cavité permet d'intriquer les états atomiques et les états du champ. Ce système a permis, entre

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

autres, de réaliser des expériences de démonstration de fonctions élémentaires de traitement quantique de l'information [Rauschenbeutel et al., 1999].
Les expériences en cavité dans le domaine optique sont à un stade moins avancé qu'en micro-ondes, mais apparaissent comme plus prometteuses à la réalisation d'algorithmes quantiques simples. En effet, les photons optiques se propagent plus facilement à l'air libre ou dans des fibres, et se détectent plus aisément.
La cause principale de décohérence est l'amortissement du champ dans la cavité. Avec des améliorations réalistes, l'accomplissement de quelques dizaines d'opérations sur une dizaine de qubits est envisagée prochainement.

L'utilisation d'atomes refroidis par laser, ou de condensats de Bose-Einstein, piégés dans des réseaux optiques a également été proposée et semble prometteuse pour l'élaboration de portes quantiques. Les forces exercées par des lasers permettent de réaliser des réseaux de puits de potentiel. En rapprochant deux puits, on peut réaliser une porte avec une collision contrôlée entre deux atomes. Le piégeage d'atomes individuels est maîtrisé mais il reste à résoudre de nombreux problèmes : adressage, manipulation et lecture individuelle d'un grand nombre de qubits. Ce système demeure néanmoins l'un des plus prometteurs en optique quantique.
Nous allons maintenant nous pencher sur le cas qui nous intéresse plus particulièrement, celui d'un gaz d'atomes de Rydberg froids. De nombreuses propositions ont été avancées dans le but d'utiliser de tels systèmes en vue d'applications dans le domaine de l'information quantique [Jaksch et al., 2000, Lukin et al., 2001].

Atomes de Rydberg et information quantique

Dans le cas des atomes alcalins, un qubit à deux niveaux correspond aux deux niveaux hyperfins de l'état fondamental s. L'opérateur NOT peut être mis en oeuvre expérimentalement par des transitions Raman entre ces deux niveaux, en permettant d'inverser l'état quantique du qubit. La porte CNOT est un peu plus compliquée à réaliser puisqu'elle correspond à la lecture non destructive de l'état d'un qubit (qubit de contrôle) interagissant avec un autre qubit (cible). Après l'action d'une porte CNOT, les deux qubits doivent se trouver dans un état intriqué. Le principal enjeu est finalement d'intriquer l'état de deux atomes.
Récemment, l'utilisation de l'interaction dipôle-dipôle a été proposée pour coupler les états de deux atomes dans un ensemble d'atomes froids [Brennen et al., 1999]. Cette interaction est cependant trop faible lorsque les atomes sont dans leur état fondamental ou même faiblement excité. Une solution pour rendre cette interaction plus importante a été avancée par [Jaksch et al., 2000, Lukin et al., 2001], en proposant l'excitation des atomes vers un état de Rydberg. Les moments dipolaires (variant en n^2) très élevés des atomes de Rydberg sont responsables d'une interaction dipôle-dipôle bien plus grande que l'interaction des atomes dans leur état fondamental. Cette interaction agit sur les atomes de Rydberg en modifiant l'énergie de leurs états quantiques et peut être vue comme l'effet Stark d'un atome placé dans le champ électrique des dipôles des atomes environnants. Nous avons représenté sur la Fig. 4.2 un schéma permettant la réalisation d'une porte quantique CNOT, en utilisant le décalage énergétique induit par l'interaction dipôle-dipôle V_{dd}. L'excitation du qubit de contrôle vers l'état de Rydberg décale énergétiquement le niveau de Rydberg du qubit cible, et empêche par conséquent l'excitation du qubit cible vers l'état de Rydberg : c'est ce que l'on appelle le blocage dipolaire [Lukin et al., 2001].

De nombreux schémas d'excitation ont été proposés dans le but de concevoir un jeu de portes quantiques universel en utilisant un gaz d'atomes de Rydberg froids

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

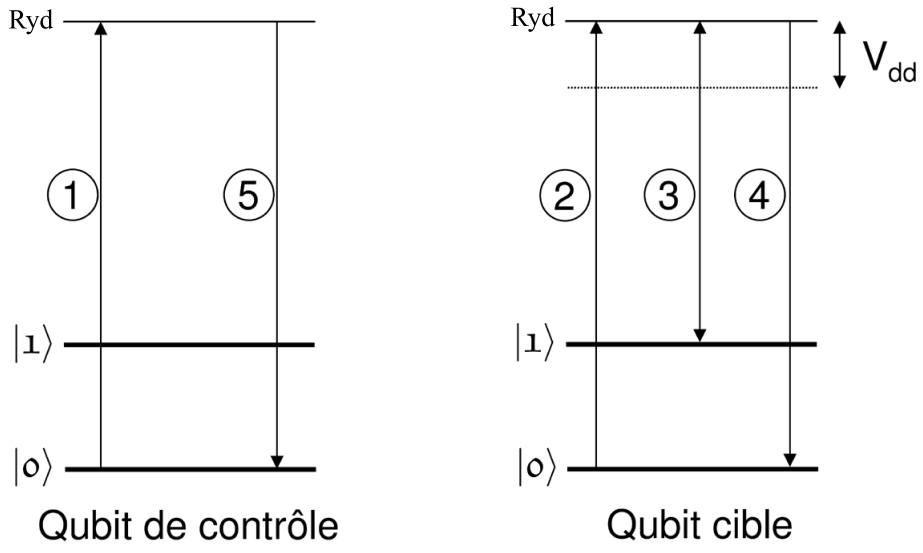

FIG. 4.2 – Séquence d'impulsions laser générant une porte CNOT. Le numéro des impulsions laser indique l'ordre dans lequel sont appliquées les impulsions. • Si le qubit de contrôle est initialement dans l'état $|0\rangle$, il sera transféré par l'impulsion 1 vers l'état de Rydberg. Les impulsions 2, 3 et 4 ne joueront alors aucun rôle sur le qubit cible puisque le niveau Rydberg est décalé par l'interaction dipôle-dipôle, V_{dd}, induite par l'état du qubit de contrôle. Ces impulsions seront hors résonance. La cinquième impulsion transférera le qubit de contrôle vers son état initial $|0\rangle$. • Si par contre, le qubit de contrôle est initialement dans l'état $|1\rangle$, les impulsions 1 et 5 n'auront, cette fois, aucune influence sur le système. Si l'état du qubit cible est initialement dans l'état $|0\rangle$, alors il basculera vers l'état $|1\rangle$ après les impulsions 2 et 3. L'impulsion 4 n'interviendra pas. Si l'état initial du qubit cible est $|1\rangle$, l'impulsion 2 sera sans effet ; par contre, les impulsions 3 et 4 feront basculer le qubit vers l'état $|0\rangle$. Le résultat global de cette séquence d'impulsions est donc l'effet d'une porte CNOT.

[Jaksch et al., 2000, Protsenko et al., 2002, Lukin et al., 2001]. Cela passe bien sûr par la création d'états intriqués couplés par l'interaction dipôle-dipôle.

La première étape vers la réalisation d'une porte quantique CNOT semble donc être le contrôle de cette interaction dipôle-dipôle et surtout la résolution spectroscopique du blocage dipolaire. L'observation de l'interaction dipôle-dipôle au sein d'un échantillon d'atomes de Rydberg froids a déjà été rapportée [Anderson et al., 1998, Mourachko et al., 1998, Afrousheh et al., 2004]. Néanmoins aucun phénomène de blocage dipolaire d'excitation n'a encore été mis en évidence jusqu'à présent.

La possibilité d'exploiter l'interaction de Van der Waals et non plus dipôle-dipôle entre des atomes de Rydberg a également été considérée pour la réalisation de portes quantiques. Cependant, cette interaction n'est importante que pour des états de Rydberg élevés et des distances interatomiques faibles. En comparaison avec l'interaction dipôle-dipôle, elle présente l'avantage d'être indépendante de l'orientation des dipôles atomiques. Des études expérimentales ont déjà été effectuées pour mettre en évidence de telles interactions, en étudiant des effets d'élargissement de raie d'excitation [Raimond et al., 1981, Singer et al., 2004]. Des résultats expérimentaux récents ont été présentés, indiquant l'observation d'un blocage local d'excitation qui serait dû à l'interaction Van der Waals. Nous reviendrons sur ces expériences

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

et leur interprétation dans la section (4.5.8).

4.2.2 Présentation du chapitre

Nous allons commencer le chapitre par une description sommaire des propriétés fondamentales des atomes de Rydberg. Nous présenterons ensuite les travaux effectués concernant l'évolution d'un gaz d'atomes froids de Rydberg vers la formation d'un plasma. Nous nous concentrerons plus particulièrement sur les phénomènes physiques entrant en jeu lors de l'initiation du processus, qui jusqu'à maintenant n'avaient pas été clairement identifiés. Cette étude nous a amenés à souligner le rôle très probable des collisions froides entre atomes de Rydberg dans la formation d'un plasma. L'interaction dipôle-dipôle entre les atomes de Rydberg serait responsable de collisions froides ionisantes à l'origine de cette formation. L'intérêt incontestable de ces interactions dans le domaine de l'information quantique et leur implication dans la formation d'un plasma froid, nous ont poussés à les étudier en détail. Nous avons donc mis au point des méthodes originales de spectroscopie des états de Rydberg pour sonder et mettre en évidence ces interactions dipolaires. L'étude de l'évolution temporelle de la cohérence de ces interactions, dans le processus de transfert résonant d'énergie, a constitué un point essentiel de ce travail [Mudrich et al., 2005].

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

4.3 Propriétés générales des atomes de Rydberg

4.3.1 Energie des niveaux de Rydberg

L'atome d'hydrogène

L'interaction entre l'électron et le noyau dans l'atome d'hydrogène correspond à un potentiel coulombien. L'énergie potentielle de l'électron vaut alors :

$$V(r) = -\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r} \tag{4.20}$$

où r est la distance entre l'électron et le noyau.

L'énergie de l'électron dans un tel potentiel est quantifiée et vaut :

$$E(r) = -\frac{m_e e^4}{2\hbar^2(4\pi\epsilon_0)^2}\frac{1}{n^2} = -\frac{Ry}{n^2} \tag{4.21}$$

où Ry est la constante de Rydberg et vaut $\approx 13,6\ eV$.

Il existe une infinité de niveaux liés dans un tel potentiel. Les états de Rydberg correspondent à des états dont le nombre quantique principal n est élevé. La signification physique du nombre n a été donnée après l'apparition du modèle de l'atome d'hydrogène proposé par N. Bohr en 1913. Dans ce modèle, le rayon de l'orbitale électronique r, autour du cœur de très grande masse et de charge Ze, est proportionnel au carré du nombre quantique principal n :

$$r = \frac{\hbar^2\, n^2}{4\pi\epsilon_0 Z e^2 m_e} \tag{4.22}$$

Les atomes de Rydberg, correspondant à des atomes très excités, ont donc des tailles très grandes.

Les atomes alcalins

Dans le cas d'atomes alcalins, formés de $N+1$ électrons en interaction avec le cœur atomique, le problème très difficile de trouver les états énergétiques doit être simplifié. La représentation du système en un coeur de N électrons et un électron distant (électron de valence) devient logique à cause de la grande différence entre leurs énergies de liaison. Ainsi le problème devient globalement un problème à un seul électron. Comme le coeur est limité à une petite région de l'espace, le potentiel effectif ressenti par l'électron de valence est principalement le potentiel coulombien (4.20). En première approximation, les états de Rydberg apparaissent donc comme de simples états hydrogénoïdes excités pour lesquels les énergies et les fonctions d'onde sont connues. De plus, comme on travaille avec des nombres quantiques élevés, on s'approche de la limite classique de la mécanique quantique et les images semi-classiques voire classiques deviennent correctes. Le traitement classique d'une particule dans un champ coulombien comme l'électron de l'atome d'hydrogène, conduit à trouver une trajectoire elliptique d'excentricité $\sqrt{1+\frac{2L^2E}{m_e Z^2 e^4}}$. En quantifiant, on remplace L^2, le moment cinétique orbital au carré de l'électron, par $\hbar^2 l(l+1)$ et E par sa valeur donnée par l'expression (4.21) et l'on obtient l'expression de l'excentricité :

$$exc \approx \sqrt{1-\frac{l(l+1)}{n^2}} \tag{4.23}$$

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Les orbites pour l grand sont alors quasi-circulaires et l'électron de valence voit donc un potentiel coulombien avec $Z^{eff} = 1$.
Par contre, les orbites pour l petit se rapprochent du foyer de l'ellipse et peuvent donc pénétrer dans le cœur. La barrière centrifuge n'est plus suffisamment grande pour interdire l'accès à cette région. Les perturbations sont donc d'autant plus importantes que l est petit. On doit donc distinguer les orbites non pénétrantes (grandes valeurs de l) et les orbites pénétrantes (petites valeurs de l) pour lesquelles la vision hydrogénoïde n'est plus valide.

Pour tenir compte des orbites pénétrantes, une théorie, développée surtout par Seaton [Seaton, 1983], a vu le jour : la méthode du défaut quantique. L'interaction entre le cœur et l'électron de valence est limitée à une petite partie de l'espace autour du noyau. En dehors de cette région, le potentiel est coulombien et la fonction d'onde est par conséquent connue.

Pour des états de Rydberg autres que pour l'atome d'hydrogène, quand la distance r entre l'électron et le cœur est plus grande que le rayon du coeur r_c, le potentiel est coulombien. A grandes distances ($r > r_c$), l'électron voit une charge écrantée $Z^{eff} = 1$, identique à celle vue par un électron de Rydberg d'un atome d'hydrogène. Par contre, pour $r < r_c$, le potentiel est généralement plus profond que dans le cas coulombien. Ainsi, lorsqu'une onde incidente coulombienne diffuse sur le coeur, l'onde réfléchie sera déphasée par rapport à une diffusion sur un coeur composé d'un proton (noyau d'hydrogène). Par conséquent, la fonction d'onde de l'électron oscille, aux rayons courts, plus vite que dans le cas de l'hydrogène. A grandes distances, les oscillations de la fonction d'onde reprennent la même fréquence spatiale que celles de l'hydrogène. On peut donc caractériser la fonction d'onde électronique par un déphasage par rapport à la fonction d'onde d'un électron de Rydberg dans l'atome d'hydrogène. Pour tenir compte de ce déphasage dans l'expression de l'énergie des états de Rydberg, on introduit le défaut quantique δ_l. Le déphasage étant quasiment indépendant de l'énergie et donc de n, le défaut quantique le sera tout autant. Le défaut quantique dépend donc principalement du moment cinétique orbital l.
L'énergie des états propres des atomes de Rydberg alcalins s'écrit alors :

$$E_{nl} = -\frac{R_y}{(n-\delta_l)^2} = -\frac{R_y}{n^{*\,2}} \tag{4.24}$$

où $n^* = n - \delta_l$ est le nombre quantique principal effectif.

Les défauts quantiques, dépendant légèrement de n, sont souvent spécifiés pour les états de j différents. Explicitement le défaut quantique d'un état nlj est donné par l'expression [Gallagher, 1994] :

$$\delta_{nlj} = \delta_0(lj) + \frac{\delta_2(lj)}{(n-\delta_0(lj))^2} + ... \tag{4.25}$$

Les paramètres δ_0 et δ_2 pour l'atome de césium sont donnés par [Goy et al., 1982] et reportés dans le tableau suivant :

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

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

4.3.2 Forces d'oscillateur

Les forces d'oscillateur impliquant des états de Rydberg sont des paramètres importants puisqu'elles nous permettent de déterminer les probabilités de transition entre les différents niveaux. Elles sont proportionnelles au carré des éléments de matrice dipolaire $D_{nl}^{n'l'}$:

$$D_{nl}^{n'l'} = qR_{nl}^{n'l'} = q\int_0^\infty r^3 R_{nl}(r)R_{n'l'}(r)dr \tag{4.26}$$

où $R_{nl}(r)$ est la partie radiale de la fonction d'onde de l'état $|nl\rangle$.

En première approximation, pour des transitions entre états de Rydberg voisins ($n \approx n'$), on trouve [Fabre, 1982] :

$$R_{nl}^{n'l'} \approx \frac{3}{2}\, n^{*\,2}\, g_0(\Delta n^*) \tag{4.27}$$

où $\Delta n^* = n^* - n'^*$ et g_0 est une fonction oscillante dont l'amplitude décroît rapidement selon $(\Delta n^*)^{-5/3}$.

Dans le second cas faisant intervenir un état de Rydberg $|nl\rangle$ et un état fortement lié $|n'l'\rangle$, l'élément de matrice radiale possède une dépendance simple selon n :

$$R_{nl}^{n'l'} \propto n^{*\,-3/2} \tag{4.28}$$

On peut dire, en résumé, que pour un flux de radiation électromagnétique résonante, la probabilité de transition entre deux niveaux $|nl\rangle$ et $|n'l'\rangle$ est beaucoup plus importante entre états de Rydberg qu'entre états fortement liés (la probabilité augmente en $n^{*\,4}$). Deuxièmement, la probabilité de transition entre un état fortement lié $|n'l'\rangle$ et un état de Rydberg $|nl\rangle$ est de plus en plus faible pour des niveaux de Rydberg élevés (la probabilité décroît en $n^{*\,-3}$).

4.3.3 Durée de vie

La probabilité de désexcitation spontanée d'un état $|nl\rangle$ vers un autre état $|n'l'\rangle$ ($E_{n'l'} < E_{nl}$) s'écrit [Nosbaum, 1996, Gallagher, 1994] :

$$\gamma_{nl\to n'l'} \propto \frac{\max(l,l')}{2l+1}(E_{nl} - E_{n'l'})^3 (R_{nl}^{n'l'})^2 \tag{4.29}$$

La durée de vie radiative d'un niveau $|nl\rangle$ s'écrit, quant à elle :

$$\tau_{nl} = \left(\sum_{n'l'} \gamma_{nl\to n'l'}\right)^{-1} \tag{4.30}$$

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

On peut voir sur l'équation (4.29) que les valeurs du taux de désexcitation d'un état $|nl\rangle$ vers un autre $|n'l'\rangle$ contient un facteur dépendant de la différence d'énergie entre ces niveaux. Généralement, ce facteur fait que la désexcitation se produit en favorisant les transitions très énergétiques. Pour les états $|nl\rangle$ autres que les états s, la désexcitation se produit majoritairement vers l'état de plus faible énergie $|n'(l-1)\rangle$. Pour un état $|ns\rangle$, la transition la plus probable se fait vers l'état p de plus basse énergie. Dans tous les cas, dans la limite des n élevés, le taux de désexcitation ne dépend que de l'élément de matrice radiale entre les deux états impliqués dans la transition. On a alors finalement une durée de vie du niveau de Rydberg qui va, en première approximation, varier selon $n^{*\,3}$, puisque $R_{nl}^{n'l'}$ varie selon $n^{*\,-3/2}$.

Néanmoins, cette analyse n'est plus valable pour des états de Rydberg de grand moment cinétique orbital l, comme les états circulaires avec $l = n-1$. Dans ce cas l'émission spontanée ne peut peupler que le niveau voisin $|n' = n-1, l' = n-2\rangle$ en émettant un photon de grande longueur d'onde dont la fréquence varie en $n^{*\,-3}$. La durée de vie de tels états est alors proportionnelle à $n^{*\,5}$.

La durée de vie radiative d'état de Rydberg de faible moment cinétique orbital l peut être évaluée par l'expression [Gounand, 1979] :

$$\tau_{nl} = \tau_0 n^{*\,\beta} \quad \text{[ns]} \tag{4.31}$$

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

	s	p	d	f
τ_0	1,43	4,42	0,96	0,69
β	2,96	2,94	2,93	2,94

L'expression de cette durée de vie (4.31) doit être néanmoins corrigée par les effets de relaxation induits par l'interaction de l'atome de Rydberg avec le rayonnement du corps noir [Theodosiou, 1984, Cooke and Gallagher, 1980]. L'importance de cet effet de la radiation thermique sur la durée de vie des état de Rydberg est due à deux choses. Premièrement les différences en énergie ΔE des niveaux de Rydberg sont si petites ($\Delta E < kT$ à 300 K) que le nombre de photons du rayonnement du corps noir à ces énergies est très grand. Deuxièmement, les éléments de matrice dipolaire des transitions entre niveaux de Rydberg sont très importants, ce qui engendre un fort couplage entre les atomes et la radiation thermique. Le résultat de ce couplage important est qu'un échantillon d'atomes initialement préparé dans un seul état de Rydberg va diffuser rapidement vers des niveaux voisins par des transitions dipolaires induites par le rayonnement du corps noir.

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

$$\frac{1}{\tau_{nl}^{tot}} = \frac{1}{\tau_n l} + \frac{1}{\tau_{nl}^{cn}} \tag{4.32}$$

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Le terme τ_{nl}^{cn}, correspondant à l'effet de radiation du corps noir, est donné par [Cooke and Gallagher, 1980] :

$$\frac{1}{\tau_{nl}^{cn}} \approx \frac{4\alpha^3 k_B T}{3n^{*\,2}} \approx 6,79 \times 10^4 \frac{T}{n^{*\,2}} \quad (s^{-1}) \tag{4.33}$$

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

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

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

L'expression (4.33) soulève deux points intéressants. Premièrement, la désexcitation radiative provoquée par le rayonnement du corps noir ne dépend pas de l , mais uniquement de n. Concernant les états de grand l, pour lesquels la durée de vie est très longue, le rayonnement du corps noir devient la source principale de désexcitation [Cooke and Gallagher, 1980]. Dans ce cas particulier, les transitions se font nécessairement vers d'autres états de grand l, aux durées de vie longues. La population totale d'atomes de Rydberg semble tout de même posséder une longue durée de vie.
Deuxièmement, la décroissance en $1/n^{*\,2}$ de l'expression (4.33) fait que, même pour de faibles valeurs de l, la désexcitation d'états de n élevé est dominée par le rayonnement du corps noir et non par la désexcitation spontanée qui, elle, varie comme $1/n^{*\,3}$.

4.3.4 Atomes de Rydberg en champ électrique

Effet Stark sur l'atome d'hydrogène

Un champ électrique statique et uniforme lève la dégénérescence des niveaux d'énergie d'un atome d'hydrogène relativement aux nombres quantiques orbital l et magnétique m. Les états qui ne diffèrent que par le signe du nombre quantique magnétique restent par contre dégénérés. Les niveaux de l'atome d'hydrogène appartenant à un nombre quantique principal n sont donc partagés en $n(n+1)/2$ sous-niveaux dans un champ électrique. Le déplacement Stark dans un atome d'hydrogène est linéaire par rapport au champ électrique, ce qui est une conséquence du caractère permanent du moment dipolaire électrique de l'atome. La façon la plus rigoureuse de traiter l'effet Stark est de poser le problème en coordonnées paraboliques [Landau and Lifchitz, 1966, Bethe and Salpeter, 1957]. En effet dès qu'il y a une direction privilégiée dans un système, en l'occurrence ici la direction du champ électrique, il est plus commode d'utiliser ce genre de coordonnées. On trouve alors, après un calcul de perturbation, l'expression de l'énergie des états :

$$E = -\frac{1}{2n^2} + \frac{3}{2} n(n_1 - n_2)\,\mathcal{E} + \frac{n^4}{16}\left[17n^2 - 3(n_1 - n_2)^2 - 9m^2 + 19\right]\,\mathcal{E}^2 + ... \tag{4.34}$$

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

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Il apparaît dans l'expression (4.34) que c'est le déplacement Stark au deuxième ordre, quadratique en champ électrique, qui lève la dégénérescence en $|m|$.

Les états avec $(n_1 - n_2) > 0$ sont appelés des états bleus car leur énergie augmente avec le champ électrique, tandis que les états rouges sont ceux dont les nombres quantiques paraboliques vérifient $(n_1 - n_2) < 0$.

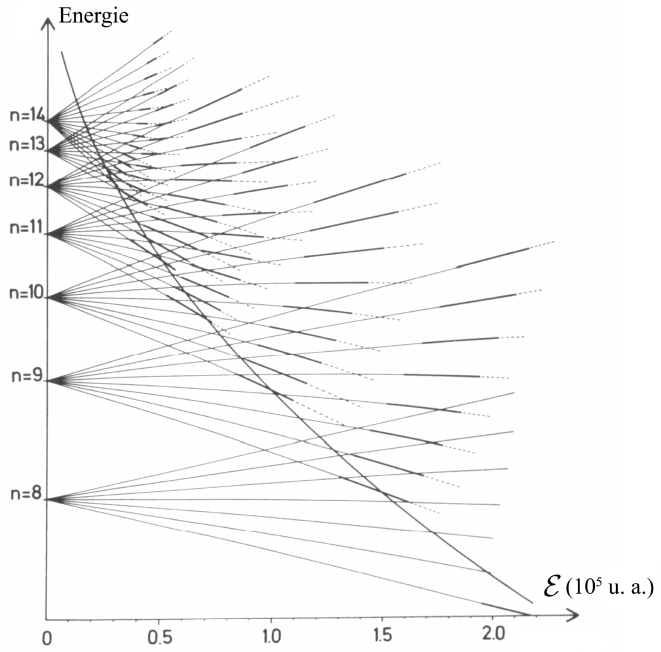

FIG. 4.3 – Diagramme Stark et représentation du champ d'ionisation des états $|m| = 0$ de l'atome d'hydrogène. On peut remarquer que les états subissent un effet Stark linéaire et que pour les champs électriques élevés, les états d'une multiplicité sont amenés à croiser d'autres états d'une multiplicité adjacente. La figure est extraite de [Gallagher, 1994].

On peut voir sur la Fig. 4.3 qu'autour de $n = 10$, c'est l'effet Stark linéaire qui domine, bien que pour les champs électriques importants, il existe une légère courbure des niveaux d'énergie. On peut aussi noter qu'à partir d'un certain champ, les niveaux des multiplicités n et $n + 1$ se croisent, ce qui ne sera pas le cas pour les niveaux d'énergie des atomes alcalins.

Effet Stark sur les atomes alcalins

L'effet Stark sur les atomes alcalins est pour l'essentiel assez similaire à celui agissant sur l'atome d'hydrogène. Le traitement théorique qui permet d'obtenir relativement facilement une solution générale des valeurs propres de l'hamiltonien de l'atome d'hydrogène n'est plus possible pour les atomes alcalins, puisque le potentiel n'est plus dans ce cas purement coulombien. Il faut alors résoudre le problème numériquement [Nosbaum, 1996, Zimmerman et al., 1979]. On peut voir sur la Fig. 4.4 le résultat d'un tel calcul pour la structure Stark de l'atome de césium autour de la multiplicité $n = 15$. Sur ce diagramme Stark, on remarque que les états de la multiplicité $(l > 3)$ varient à peu près linéairement, comme pour l'atome d'hydrogène, pour des champs électriques pas trop élevés. De part et d'autre de la multiplicité, correspondant à des valeurs de n différentes, on peut distinguer les états de faibles l (états s, p, d), qui ont,

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

comme on l'a vu, des défauts quantiques importants. Ces états suivent un déplacement Stark quadratique qui est d'autant plus fort qu'il existe un état proche avec lequel il se couple. Dans le cas du césium, un état ns est trop isolé de l'état avec lequel il est couplé (état np ou $(n+1)p$) pour que le déplacement Stark soit important. Par contre, un état np est très proche d'un état $(n-1)d$, et se trouve donc fortement influencé par celui-ci. Ces deux états vont alors se repousser. Le couplage entre ces deux états fait qu'il n'existe plus, en champ électrique, d'états purement p ou d, car une variation d'énergie au deuxième ordre de la théorie des perturbations entraîne une contamination des fonctions d'onde. Par exemple, l'état propre en champ électrique $|23p+\rangle$, qui est relié adiabatiquement en champ nul à l'état $|23p_{3/2}, |m_j| = +1/2\rangle$, s'exprime ainsi :

$$|23p+\rangle \approx \alpha|23p_{3/2}, |m_j| = +1/2\rangle + \beta|22d_{5/2}, |m_j| = +1/2\rangle \tag{4.35}$$

Une différence donc importante par rapport à l'atome d'hydrogène réside dans le fait que les niveaux d'énergie ayant des valeurs de n différentes ne se croisent plus mais se repoussent mutuellement. Ces niveaux perdent alors le caractère qu'ils avaient en champ faible. On peut voir sur la Fig. 4.4 la présence de nombreux croisements évités, témoignant de ce couplage entre les différents niveaux d'énergie.

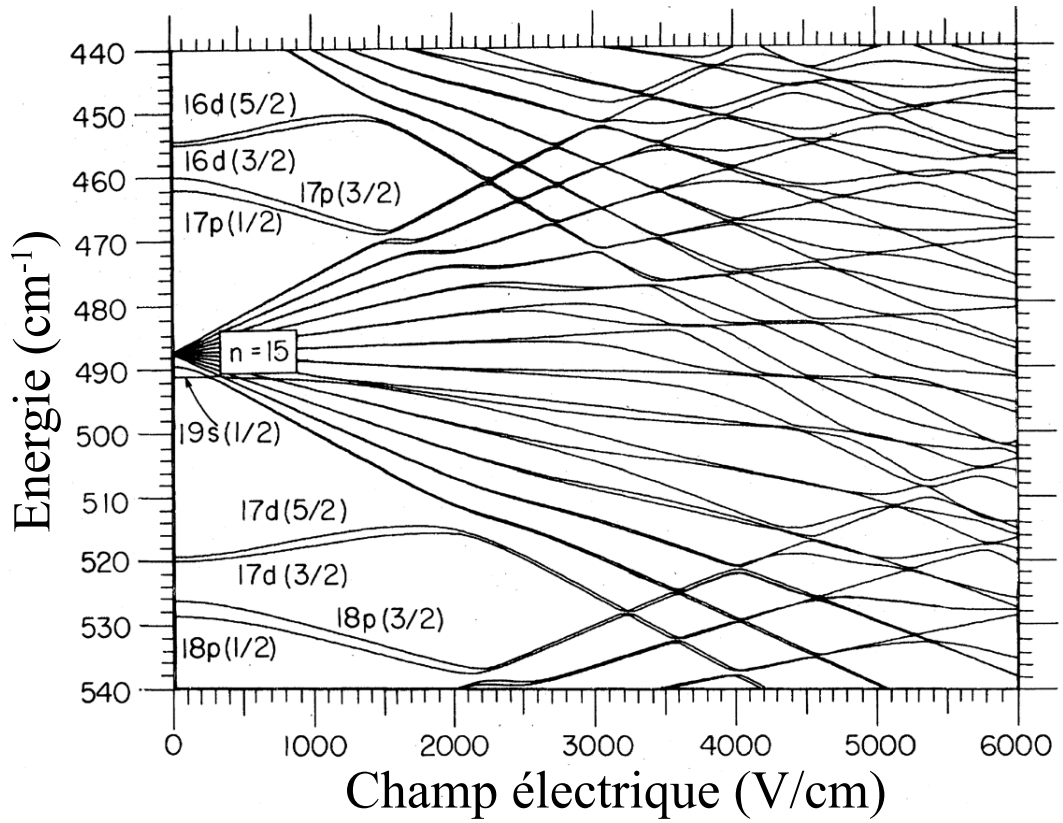

FIG. 4.4 – Etats de Rydberg $n\ l_j\ |m_j| = 1/2$ du césium en présence d'un champ électrique. La figure est extraite de [Zimmerman et al., 1979].

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Détection des états de Rydberg : Ionisation par champ

Nous ne citerons que deux méthodes pour détecter des atomes de Rydberg. La première consiste, après qu'ils aient été excités, à détecter la fluorescence émise, après leur désexcitation, à l'aide de simples photomultiplicateurs. Cette technique est cependant difficile à mettre en oeuvre pour des n élevés. La seconde méthode consiste à détecter les ions ou les électrons produits suite à l'ionisation des atomes de Rydberg. L'électron de valence, dans un atome de Rydberg est très faiblement lié et par conséquent il est très facile d'ioniser l'atome à l'aide d'un champ électrique [Lankjuijzen and Noordam, 1996]. Nous allons nous intéresser à cette deuxième méthode, que nous avons choisie comme technique de détection dans nos expériences ; elle est en général choisie dans la quasi-totalité des expériences d'atomes de Rydberg.

Ionisation par un champ électrique : Nous allons utiliser un modèle simple pour déterminer la limite d'ionisation classique d'un atome de Rydberg dans un champ électrique constant. En raisonnant à une dimension, un électron de Rydberg placé dans un champ électrique $\mathcal{E}$, dirigé suivant la direction z, voit un potentiel

$$V = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 z} + e\mathcal{E}z \tag{4.36}$$

Le potentiel est représenté sur la Fig. 4.5. On peut remarquer qu'en présence d'un champ électrique, la profondeur du puits de potentiel est diminuée d'un côté, permettant ainsi à des électrons d'énergie suffisante de s'en échapper.
Pour un niveau électronique donné, il existe donc une valeur de champ électrique qui permet d'extraire l'électron du puits coulombien. Cette valeur est appelée seuil d'ionisation classique. Puisque ce seuil d'ionisation dépend du niveau électronique considéré, l'ionisation par un champ électrique peut être sélective. L'expression du seuil d'ionisation classique est donnée par :

$$\mathcal{E}_{ion} = \frac{\pi\epsilon_0}{e^3}\frac{Ry^2}{n^{*\,4}} = \frac{1}{16n^{*\,4}} \quad \text{(u.a.)} \tag{4.37}$$

Les états de Rydberg dont l'énergie est inférieure au seuil d'ionisation classique, ne peuvent être ionisés que par effet tunnel.

Dans nos expériences nous utilisons, pour ioniser les atomes de Rydberg, des champs électriques pulsés, ce qui est assez différent du phénomène d'ionisation par un champ électrique constant. En effet, pendant le temps de montée du champ électrique, l'énergie de l'état de Rydberg change et dépend fortement du couplage entre les différents états Stark. Ce comportement peut donner lieu à plusieurs seuils d'ionisation.
La compréhension de cette méthode de détection revient à comprendre comment les états de Rydberg évoluent d'un état sans champ électrique à un état Stark qui atteint le seuil d'ionisation. Comme on l'a déjà évoqué en expliquant le diagramme Stark de la Fig. 4.4, un état Stark évolue en provoquant de nombreux croisements évités dûs au couplage avec les autres états. Lorsque le champ électrique croît, ces croisements évités peuvent être franchis de deux façons différentes selon la vitesse avec laquelle on les traverse (voir Fig. 4.6). Selon qu'on les traverse de façon adiabatique ou diabatique, l'atome sera ionisé pour un champ différent.

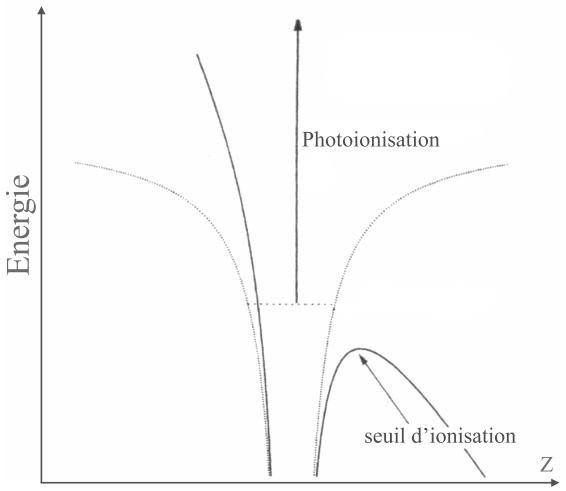

FIG. 4.5 – Potentiel coulombien ressenti par un électron de Rydberg sans (ligne pointillée) et avec (ligne continue) un champ électrique externe. Dans le cas d'une ionisation par un champ électrique constant, le potentiel est abaissé d'un côté, permettant aux électrons dont l'énergie est supérieure au seuil d'ionisation de s'échapper. Dans le cas d'une photoionisation, les photons sont absorbés par l'électron menant ensuite à l'ionisation.

La probabilité de traverser le croisement évité diabatiquement est donnée par la probabilité de transition de Landau-Zener :

$$P_{diab} = \exp\left(-\frac{2\pi\Delta E^2}{\hbar\, dE/dt}\right) \tag{4.38}$$

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

A partir de l'équation 4.38, on comprend que pour des rampes de champ électrique lentes ($\hbar dE/dt < \Delta E^2$) le passage du croisement évité sera adiabatique ; par contre, pour des rampes rapides, le passage sera diabatique (voir Fig. 4.6).

En considérant que nos atomes sont préparés dans un certain état de Rydberg et qu'ensuite, on allume lentement le champ électrique, alors l'état énergétique des atomes va suivre un chemin adiabatique et atteindre la limite classique d'ionisation pour $\mathcal{E} = 1/16n^{*\,4}$. Si la pente de l'impulsion de champ électrique est augmentée, une partie des atomes empruntera un chemin diabatique en traversant les croisements évités toujours plus bas en énergie, et iront s'ioniser pour un champ électrique plus élevé.
Ce comportement adiabatique/diabatique de l'ionisation a été mis en évidence par [Neijzen and Dönszelmann, 1982] (voir Fig. 4.7). Dans l'expérience, une impulsion de champ électrique fut appliquée au sein d'un gaz d'atomes de Rydberg dans l'état $66p$ de l'indium. Pour des temps de montée longs, l'ionisation se produit principalement de manière adiabatique pour un champ $\mathcal{E} = 1/16n^{*\,2}$(chemin (1) sur la Fig. 4.7). Lorsque le temps de montée est réduit, la population de l'état $66p$ fait un passage adiabatique en rencontrant la multiplicité puis effectue un chemin diabatique (chemin (2) sur la Fig. 4.7) jusqu'à l'ionisation qui se produit pour un champ électrique plus élevé, $\mathcal{E} = 1/9n^{*\,4}$.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

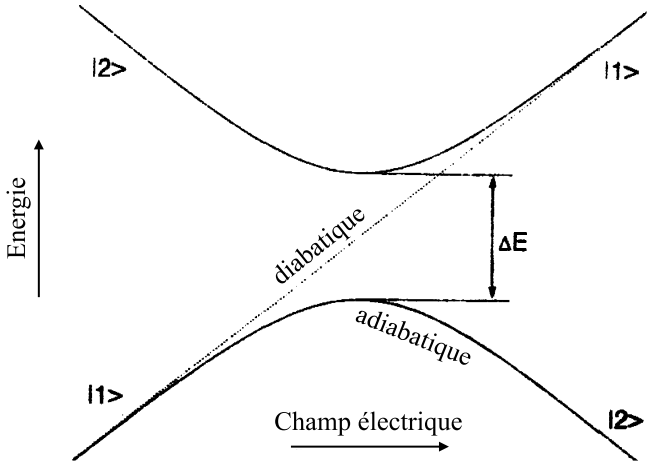

FIG. 4.6 – Un croisement Landau-Zener peut être traversé de deux façons différentes : avec des temps de montée très courts, l'impulsion de champ électrique permet un passage diabatique du croisement évité (ligne pointillée), et le caractère de l'état n'est pas changé. Pour des temps de montée longs, le croisement est traversé adiabatiquement (ligne continue), changeant le caractère de l'état de $|1\rangle$ vers $|2\rangle$ ou l'inverse.

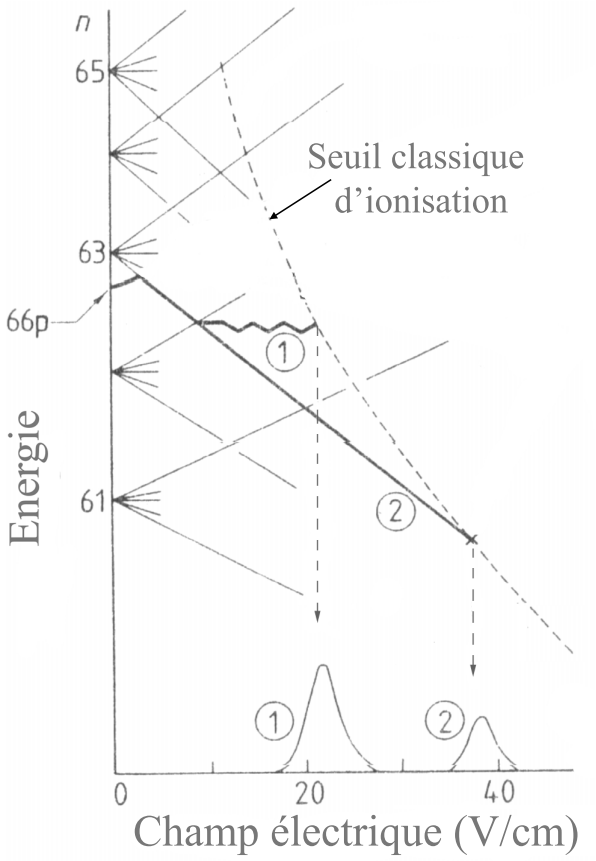

FIG. 4.7 – Représentation des chemins d'ionisation adiabatique (1) et diabatique (2) pour l'état $66p$ de l'indium. Pour une impulsion de champ électrique diabatique, les atomes de Rydberg sont ionisés pour une valeur de champ électrique plus élevé que dans le cas adiabatique.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Polarisabilité

La réalisation d'une spectroscopie haute résolution d'états de Rydberg nécessite un contrôle très rigoureux de toute perturbation pouvant être la cause d'élargissement ou de déplacement de niveaux de Rydberg. La cause principale provient de l'interaction de l'atome avec une perturbation de nature électrostatique. Pour un champ électrostatique $\mathcal{E}$ faible, le niveau d'énergie d'un atome dans un état de moment angulaire total J et de projection m_J subit un déplacement en énergie donné par :

$$\Delta E_{St} = -\frac{1}{2}\left[\alpha_0 + \alpha_2 \frac{3m_J^2 - J(J+1)}{J(2J-1)}\right]\mathcal{E}^2 \tag{4.39}$$

où α_0 et α_2 sont respectivement les polarisabilités scalaire et tensorielle, qui s'écrivent en fonction de $|R_{nl}^{n'l'}|^2/(E_{nl} - E_{n'l'})$.

Les contributions principales de ce décalage Stark sont dues aux niveaux $n' \approx n$ pour lesquels la différence d'énergie varie comme ${n^*}^{-3}$ et l'élément de matrice est proportionnel à ${n^*}^2$. Les polarisabilités varient donc selon ${n^*}^7$, ce qui implique que les déplacements Stark dans les atomes de Rydberg sont plus importants de plusieurs ordres de grandeurs comparés aux atomes dans des états profonds.

4.3.5 Récapitulatif des principales propriétés des atomes de Rydberg

Le tableau ci-dessous récapitule la liste des propriétés essentielles des atomes de Rydberg et les valeurs pour un état $n \approx 30$ de l'atome de césium.

Propriété	Dépendance avec n^*	$30p$ du Cs
Energie de liaison	${n^*}^{-2}$	150 cm^{-1}
Intervalle énergétique entre niveaux consécutifs	${n^*}^{-3}$	5 cm^{-1}
Rayon orbital	${n^*}^2$	10^3 Å
Section efficace géométrique	${n^*}^4$	10^6 Å^2
Moment dipolaire électrique	${n^*}^2$	10^3 Å $\cdot$ q
Polarisabilité en champ faible ($n \approx 30$)	${n^*}^7$	10 MHz/(V/cm)^2
Durée de vie radiative	${n^*}^3$	75 μs
Champ d'ionisation classique	${n^*}^{-4}$	200 V/cm

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

4.4 Evolution spontanée d'un gaz de Rydberg gelé vers un plasma ultrafroid

Pour une densité initiale d'atomes de Rydberg suffisamment élevée, et pour des atomes de nombre quantique principal suffisamment grand, on observe après quelques microsecondes une brusque ionisation de l'ensemble des atomes de Rydberg. Bien qu'à l'origine liés par plusieurs dizaines de cm^{-1}, ce qui correspond à un seuil d'ionisation par champ électrique de plus de 100 V/cm, les électrons sont alors extraits du système par des champs électriques de quelques V/cm seulement. On peut détecter les électrons ainsi créés pendant plus de 30 μs, ce qui indique que le gaz d'atomes de Rydberg s'est transformé en un plasma approximativement neutre. La température du système est si froide que les électrons arrachés aux atomes de Rydberg peuvent rester piégés pendant des temps très longs.

Les gaz d'atomes de Rydberg et les plasmas ultrafroids, produits par excitation laser pulsée d'un nuage d'atomes froids d'un piège magnéto-optique, ont été, ces dernières années, le sujet de nombreux travaux. Ces systèmes permettent l'étude d'une variété riche de collisions qui sont à l'origine, entre autres, de l'évolution d'un gaz d'atomes froids de Rydberg vers un plasma [Robinson et al., 2000, Laburthe-Tolra, 2001], de la formation d'atomes de Rydberg par recombinaison à trois corps dans un plasma ultrafroid [Killian et al., 2001], d'un effet de "l-mixing" [Dutta et al., 2001] dû à l'interaction entre des électrons et le gaz froid d'atomes de Rydberg. La dynamique de l'expansion des plasmas froids a aussi été un point sur lequel de nombreuses études ont été effectuées théoriquement [Robicheaux and Hanson, 2002, Mazevet et al., 2002, Kuzmin and O'Neil, 2002] mais également expérimentalement [Feldbaum et al., 2002]. Un des aspects qui restait encore peu compris concerne l'initiation du processus d'évolution du gaz de Rydberg vers la formation d'un plasma [Li et al., 2004]. Ce point a fait en partie l'objet de cette thèse.

Le scénario proposé [Robinson et al., 2000] pour décrire cette évolution est le suivant (résumé sur la Fig. 4.8). Après avoir excité des atomes froids vers des états de Rydberg, une petite fraction de ces atomes très excités s'ionise. Ce processus d'ionisation est initié d'une part par des photons du rayonnement du corps noir qui induisent des transitions des états de Rydberg vers le continuum, et d'autre part, par des collisions ionisantes avec des atomes de Rydberg chauds (produits après excitation d'atomes du gaz résiduel vers un état de Rydberg). Les collisions froides entre atomes de Rydberg semblaient également pouvoir jouer un rôle dans cette première étape vers la formation d'un plasma ; rôle qui n'avait cependant pas encore été mis en évidence.
Les électrons produits lors du processus d'ionisation quittent alors progressivement le volume du piège magnéto-optique. Les ions restants commencent dans le même temps à s'accumuler pour former une charge d'espace positive, suffisamment importante pour piéger les électrons émis par la suite. La profondeur du potentiel vu par un électron dans ce genre de nuage ionique gaussien est donnée par :

$$\sqrt{\frac{2}{\pi}}\frac{N_i\, e}{4\pi\epsilon_0\sigma} \quad \text{(eV)} \tag{4.40}$$

où N_i est le nombre d'ions dans le plasma, e la charge de l'électron et σ le rayon rms du nuage d'ions.

Quand la profondeur du piège devient plus grande que l'énergie cinétique des électrons libres, le nuage d'ions constitue un véritable piège pour les électrons. Ce mécanisme a

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

été pour la première fois mis en évidence lors de la formation d'un plasma froid de Xe [Killian et al., 1999], après photoionisation directe d'un gaz d'atomes issus d'un MOT.
Une fois que les premiers électrons sont piégés, ils vont alors fortement interagir avec les atomes de Rydberg, qui vont s'ioniser rapidement par collisions électron-atome de Rydberg. Nous entrons alors dans un *régime d'avalanche*, qui permet d'ioniser la majeure partie des atomes de Rydberg en un temps très court. Sans ce phénomène de piégeage d'électrons, les électrons s'échapperaient rapidement du système, en quelques nanosecondes, sans interagir avec les atomes de Rydberg.
Les collisions électron-atome de Rydberg, qui entretiennent le régime d'avalanche, ne sont pas uniquement ionisantes. Ces collisions peuvent être également des réactions quasi-élastiques avec changement de l ou inélastiques avec changement de n. Pour des densités initiales d'atome de Rydberg élevées, la plupart de ces atomes sont ionisés. Par contre, pour des densités plus faibles (10^8 cm^{-3} pour $n \approx 40$), l'effet des collisions non-ionisantes entre électrons et atomes de Rydberg peut être mis en évidence [Dutta et al., 2001].
Les collisions provoquant un changement d'état l, couramment appelées l-mixing, permettent de créer des états de grand l aux durées de vie très longues, de l'ordre de 10 ms [Dutta et al., 2001].

La dernière étape d'évolution du plasma froid réside dans son expansion spatiale. Une fois les électrons piégés, ils se déplacent au sein du potentiel créé par les ions et exercent une pression sur ces derniers de façon analogue à un gaz qui exerce une pression sur les parois d'une boîte le confinant. Les ions se déplacent alors, et la totalité du plasma commence à s'étendre. Des recombinaisons peuvent alors se produire pour créer de nouveaux atomes de Rydberg.

Nous allons maintenant présenter brièvement une partie des travaux effectués pendant ma thèse, qui visaient à mieux comprendre la première étape de l'évolution d'un gaz d'atomes de Rydberg gelé vers un plasma ultrafroid, c'est-à-dire l'initiation du processus d'ionisation.
On pourra se référer aux articles [Li et al., 2004, Walz-Flannigan et al., 2004] pour une revue détaillée de toutes les étapes menant à la formation de plasmas ultrafroids à partir d'un gaz d'atomes de Rydberg.

4.4.1 Initiation du processus d'ionisation

Nous allons décrire, dans cette section, une expérience [Li et al., 2004] que nous avons réalisée et qui vise à mieux comprendre comment se produisent les premiers processus d'ionisation du gaz de Rydberg avant de se transformer en un plasma ultrafroid. Cette expérience s'inscrit dans le cadre d'une collaboration avec D. Tate et l'équipe expérimentale de T. F. Gallagher de l'université de Virginie (USA). Ces derniers ont également étudié expérimentalement l'évolution d'un gaz de Rydberg froid mais en utilisant des atomes de rubidium. Nous ne présenterons ici que les résultats que nous avons obtenus pendant ma thèse sur l'atome de césium.

Approche expérimentale

Excitation des états de Rydberg : L'expérience débute avec un piège magnéto-optique de césium, où l'on piège quelques 10^7 atomes sur un volume sphérique de diamètre d'environ 0,6 mm. La température de ces atomes est de l'ordre de la température Doppler, c'est-à-dire

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

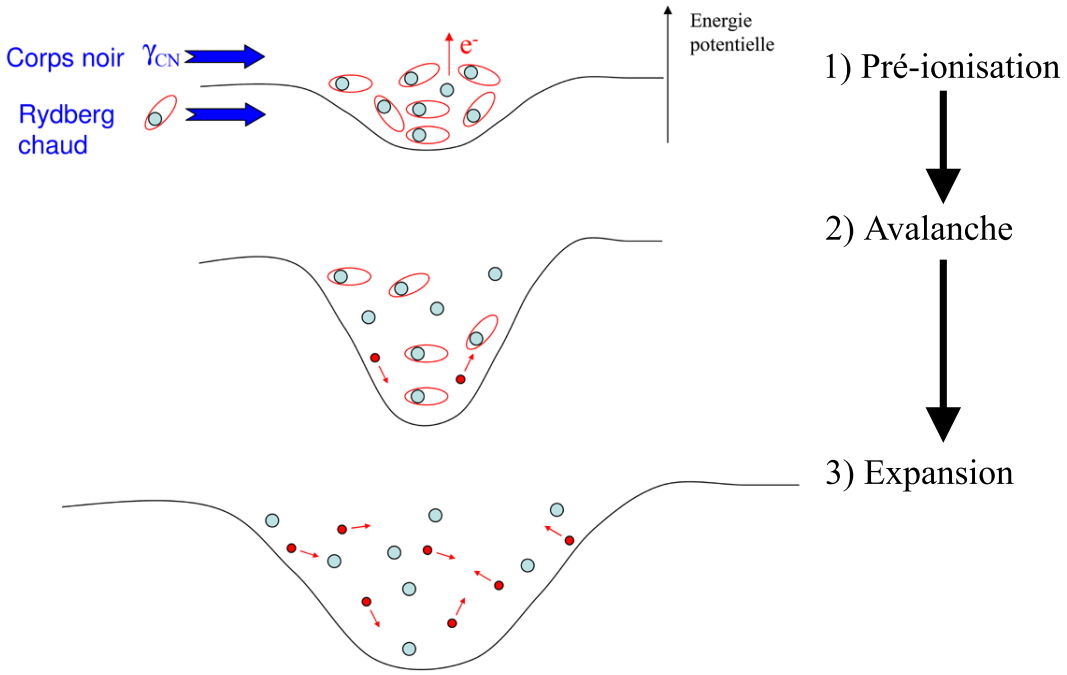

FIG. 4.8 – Résumé des différentes étapes menant à la formation d'un plasma froid. La première étape est décrite par l'ionisation initiale du gaz d'atomes de Rydberg froids, due au rayonnement du corps noir ainsi qu'aux collisions de l'échantillon avec des atomes de Rydberg chauds. Un phénomène d'avalanche d'ionisation se produit ensuite, pendant lequel les électrons, piégés par le potentiel ionique, ionisent le gaz d'atomes de Rydberg par collision. Une fois le plasma formé, il va subir une expansion principalement à cause de la pression qu'exercent les électrons sur les ions.

environ 140 μK. Les atomes de césium, dans l'état $6p_{3/2}$, sont excités vers les états de Rydberg ns et nd à l'aide d'un laser à colorant pulsé [2]. Le colorant utilisé est la coumarine 500, qui nous permet d'atteindre, pour ces expériences, des longueurs d'onde aux alentours de 511 nm. Ce sont des impulsions de 9 ns, émises avec un taux de répétition de 10 Hz, et d'énergie 100 μJ. La largeur spectrale du laser est d'environ 0,05 cm^{-1} (1,5 GHz). Le laser est focalisé sur le nuage atomique de façon à le recouvrir totalement, permettant la production d'un nombre d'atomes de Rydberg d'environ 5×10^5.

Dans nos conditions expérimentales, on trouve toujours une part d'atomes chauds dans l'état $6p_{3/2}$, provenant de l'excitation d'atomes du gaz résiduel qui passent à travers les faisceaux lasers du MOT [3]. Ces atomes se trouvent eux aussi excités vers les états de Rydberg puisque la largeur spectrale du laser pulsé est bien plus grande que l'effet Doppler ($\approx$ 400 MHz) pour de tels atomes chauds. On estime qu'aux alentours d'1 % des atomes de Rydberg produits sont chauds.
Pour éviter l'excitation de tels atomes, on coupe les faisceaux laser du piège magnéto-optique puis ceux du laser repompeur environ 20 μs avant l'arrivée de l'impulsion laser d'excitation Rydberg. Ce temps est suffisamment long pour que les atomes chauds et froids de

[2] Le laser à colorant a déjà été décrit au chapitre 3, dans l'expérience du piégeage dipolaire de molécules ultrafroides.

[3] Les atomes du gaz résiduel dans l'état $(6s_{1/2}, f = 4)$ sont excités par les lasers du MOT vers l'état $6p_{3/2}$, alors que ceux dans l'état $(6s_{1/2}, f = 3)$ sont excités vers $6p_{3/2}$ en passant à travers les lasers repompeurs du piège magnéto-optique.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

césium, dans l'état $6p_{3/2}$, se désexcitent vers l'état fondamental $(6s_{1/2}, f = 4)$. Les atomes froids sont ensuite pompés vers le niveau $6p_{3/2}$ en utilisant un faisceau laser de faible puissance, issu d'une diode, dont la fréquence est résonante avec la transition atomique $(6s_{1/2}f = 4 \longrightarrow 6p_{3/2}f' = 5)$. Il faut bien remarquer que ce faisceau laser est exactement résonant et non décalé vers le rouge des transitions atomiques, comme les lasers du MOT. Ce faisceau laser résonant est envoyé sur le nuage atomique 500 ns avant l'impulsion du laser à colorant. Les atomes froids peuvent être excités par le faisceau résonant alors que seuls les atomes chauds, dont la vitesse est perpendiculaire à la direction de propagation du laser, peuvent l'être. Avec cette méthode, l'excitation d'environ 98 % des atomes de Rydberg chauds peut être évitée.

Nous avons bien fait attention à ne produire directement aucun photoion avec le laser pulsé (l'émission spontanée amplifiée (ASE) a été réduite à moins de 1 % du signal laser total). En effet, de tels ions pourraient initier l'évolution du nuage de Rydberg vers la formation du plasma.

Détection des atomes de Rydberg et du plasma : L'excitation des atomes de Rydberg se produit entre deux grilles métalliques à travers lesquelles on peut appliquer un champ électrique. Pour détecter ces atomes de Rydberg, on produit une impulsion de champ électrique d'une amplitude pouvant atteindre quelques kV/cm avec un temps de montée de l'ordre de la microseconde. Ce champ nous permet d'ioniser les atomes de Rydberg et d'accélérer par la même occasion les ions produits vers des galettes micro-canaux. L'intervalle de temps entre l'impulsion laser et l'impulsion de champ électrique peut être varié de façon à laisser évoluer le système Rydberg-plasma, à partir de 100 ns jusqu'à 1 ms après l'excitation des états de Rydberg. L'impulsion de champ électrique nous permet également de pousser les électrons ou les ions du plasma vers les galettes micro-canaux. Ce signal d'électrons et d'ions, qui témoigne de la formation d'un plasma, est séparé temporellement du signal provenant de l'ionisation des atomes de Rydberg, en arrivant plus tôt sur les détecteurs (voir encart de la Fig. 4.9).

Extraction des seuils de densité de Rydberg pour la formation d'un plasma : L'évolution temporelle du système dépend de la densité initiale d'atomes de Rydberg. Les fluctuations de modes du laser à colorant conduisent à une variation de coup à coup importante du nombre d'atomes de Rydberg formés initialement. Pour réaliser une étude quantitative de l'évolution temporelle du gaz de Rydberg, nous avons utilisé les fluctuations du laser en notre faveur. Après avoir fixé temporellement le déclenchement de l'impulsion électrique d'ionisation, nous ajustons deux intégrateurs à portes ("Box-Car") de façon à recueillir, dans l'une, le signal provenant des ions du plasma, et dans l'autre, le signal provenant de l'ionisation des atomes de Rydberg par le champ électrique (voir encart de la Fig. 4.9). Nous enregistrons alors simultanément les deux voies pour chaque impulsion du laser. On représente ensuite, pour chaque coup du laser pulsé, la valeur du signal des ions du plasma correspondant au nombre initial d'atomes de Rydberg excités ($\approx$ la somme du signal des deux intégrateurs à porte)(voir Fig. 4.9). Chaque point de la Fig. 4.9 correspond à une impulsion du laser à colorant. Les fluctuations du laser nous permettent donc de faire varier la densité d'atomes de Rydberg de façon aléatoire et d'obtenir des courbes d'où l'on peut extraire le seuil de densité d'atomes de Rydberg initial pour produire un plasma.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

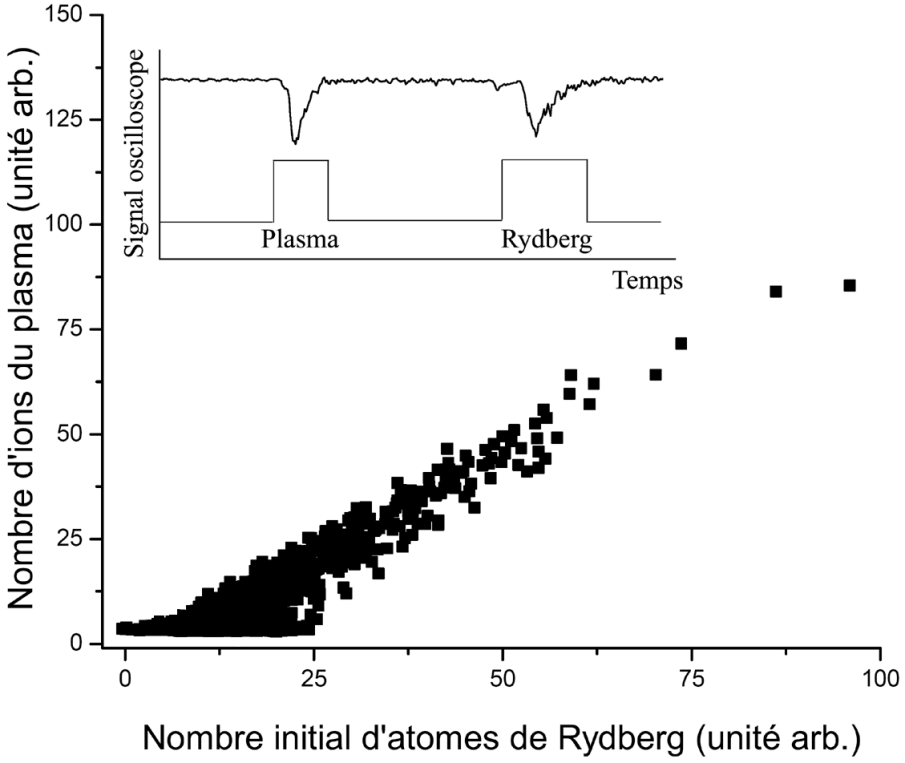

FIG. 4.9 – Signal ionique obtenu 10 μs après excitation de l'état $42d$ du césium, en fonction du nombre d'atomes excités. Cette figure met en évidence l'existence d'un seuil en densité pour l'ionisation des atomes de Rydberg. En haut, à gauche de la figure, est représenté le signal détecté et visualisé à l'oscilloscope. Le pic de gauche correspond aux ions du plasma et le pic de droite aux atomes de Rydberg. Chacun de ces signaux est enregistré par une porte intégratrice.

Influence du gaz chaud dans la formation du plasma

Dans les premières expériences portant sur les plasmas froids, l'ionisation initiale des atomes de Rydberg fut attribuée à leur photoionisation par le rayonnement du corps noir et à des collisions avec des atomes de Rydberg chauds. Pour distinguer l'influence de chacun de ces effets, nous avons étudié le comportement du phénomène d'ionisation en fonction du nombre quantique principal n de l'état de Rydberg excité. Plus particulièrement, nous avons mesuré le nombre d'atomes de Rydberg seuil, N_S, nécessaire pour initier le processus d'avalanche d'ionisation, et ceci pour différents n. Les données ont été prises pour des états d compris entre le niveau $26d$ et $55d$, avec un mélange initial d'atomes de Rydberg froids et chauds, et après un temps d'évolution compris entre 2 et 20 μs (voir Fig. 4.10a)). Nous avons également observé l'évolution spontanée d'atomes de Rydberg dans des états s ($42s$ à $55s$) vers l'état de plasma, ce qui n'avait pas été observé dans les premières expériences [Robinson et al., 2000]. Ces données sont aussi reportées sur la Fig. 4.10a), uniquement pour un temps d'évolution de 5 μs.

On peut remarquer sur la Fig. 4.10a) que la façon dont le seuil N_S décroît avec n est relativement indépendante du temps d'interaction.
Nous avons représenté sur la Fig. 4.10b) le même type de données, mais cette fois-ci en comparant le comportement du seuil N_S d'un échantillon d'atomes de Rydberg purement froids avec celui d'un échantillon d'une mixture d'atomes chauds et froids. Ces deux types

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

de mesures ont été réalisées après un temps d'évolution de 10 μs, intervalle de temps entre l'impulsion laser et l'impulsion de champ électrique. Ces données ont été ajustées par une fonction du type $n^{*-\alpha}$, où n^* est le nombre quantique principal effectif et α, un paramètre à déterminer. Le comportement du seuil en fonction de n, pour un mélange d'atomes chauds et froids, décroît selon $N_S \propto n^{*-2,1}$, et selon $N_S \propto n^{-3,2}$ pour un gaz d'atomes de Rydberg purement froid. On peut aussi remarquer que le nombre d'atomes de Rydberg initialement nécessaire pour former le plasma est grossièrement un facteur 2 plus important dans le cas d'un système composé uniquement d'atomes de Rydberg froids.
Nous pouvons maintenant comparer ces observations expérimentales aux résultats attendus pour une ionisation initiale due au rayonnement du corps noir et aux collisions avec des atomes de Rydberg chauds.

Considérons, dans un premier temps, l'ionisation induite par le rayonnement du corps noir. A l'aide d'un modèle décrit dans [Li et al., 2004], on trouve que l'ionisation induite uniquement par le rayonnement du corps noir aurait pour conséquence un comportement selon $N_S^{CN} \propto n^{*1/4}$ ce qui n'est pas du tout en accord avec le résultat expérimental $N_S \propto n^{*-2,1}$. En d'autres termes, étant donné que nous avons de bonnes raisons (nous les évoquerons dans la suite) de penser que le rayonnement du corps noir contribue au processus initial d'ionisation, il apparaît clairement qu'il ne constitue pas la source principale de l'ionisation. Alors que la photoionisation par le rayonnement du corps noir décroît avec n, la section efficace d'ionisation par collision devrait augmenter, quant à elle, comme la section efficace géométrique $\sigma_g = \pi(a_0 n^2)^2$. Nous verrons qu'une telle dépendance est bien plus probable de mener au comportement expérimental de N_S sur la Fig. 4.10b). Il est utile de calculer la valeur attendue du seuil N_S, résultant de collisions entre les atomes de Rydberg froids et chauds. A l'aide une nouvelle fois d'un modèle simple [Li et al., 2004], on trouve un comportement en $N_S^{Coll} \propto n^{*-3}$, ce qui est dans ce cas assez proche de la dépendance en $n^{*-2,1}$ trouvée expérimentalement. Cette analyse suggère que lorsque les atomes de Rydberg chauds sont présents, les collisions entre atomes de Rydberg froids-chauds sont le processus dominant lors de la première étape d'ionisation. Cependant, même lorsqu'il n'y a pas d'atomes de Rydberg chauds, un plasma se forme pour des états de n élevé. Les mesures de N_S de la Fig. 4.10b) montrent une dépendance du seuil en $n^{*-3,2}$ ce qui est cohérent avec l'existence de phénomènes collisionnels dont la section efficace varie en n^4.

Nous n'avons aucune donnée supplémentaire nous permettant d'identifier clairement le mécanisme, mais plusieurs explications sont possibles [Li et al., 2004, Walz-Flannigan et al., 2004] pour décrire nos observations, représentées sur la Fig. 4.10b). Elles font toutes intervenir les collisions froides entre atomes de Rydberg. L'explication selon laquelle les interactions à longue distance, de type dipôle-dipôle, peuvent attirer deux atomes de Rydberg l'un vers l'autre et provoquer leur ionisation par collision, est finalement celle qui se sera démontrée par les travaux de [Li et al., 2005]. Ce mécanisme avait été auparavant déjà mentionné pour expliquer l'avalanche d'ionisation dans un échantillon dense et chaud d'atomes de Rydberg de césium issus d'un jet [Vitrant et al., 1982].

Les travaux expérimentaux que l'on a effectués à la suite de cette étude ont donc tout naturellement consisté à caractériser les interactions qui ont lieu dans un gaz froid de Rydberg. Pour cela, nous avons utilisé une spectroscopie optique de haute résolution. Au delà de la contribu-

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

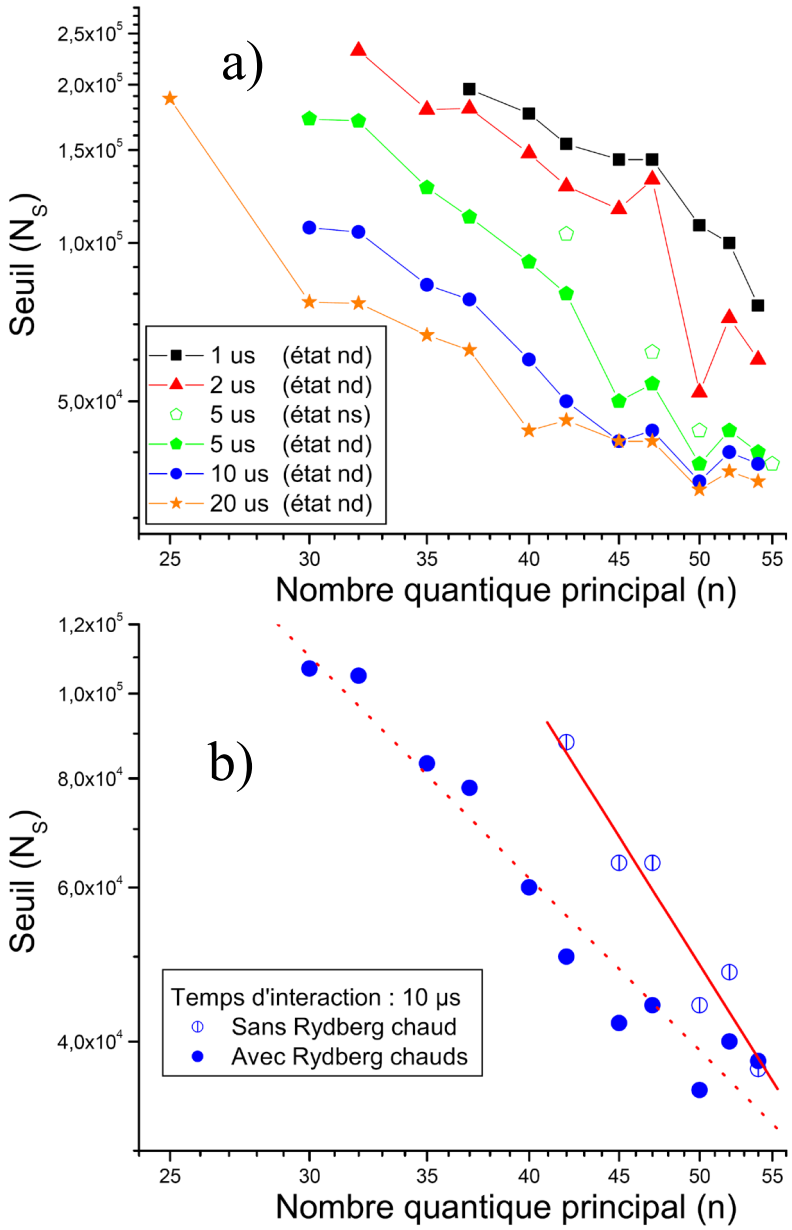

FIG. 4.10 – a) (Echelle Log-Log) Nombre seuil d'atomes de Rydberg N_S nécessaire pour initier la formation d'un plasma, pour les états de $25d$ à $54d$ et de $42s$ à $55s$, dans un échantillon avec environ 1 % d'atomes de Rydberg chauds (300 K). Ces données ont été obtenues pour différents temps d'évolution entre l'impulsion laser et l'impulsion de champ électrique (1 μs, 2 μs, 5 μs, 10 μs et 20 μs pour les états d et uniquement 5 μs pour les états s). b) (Echelle Log-Log) Variation de N_S en fonction du nombre quantique de l'état d excité, pour un temps d'évolution de 10 μs, dans le cas d'un échantillon d'atomes de Rydberg purement froids (*sans atomes de Rydberg chauds*) et dans le cas d'un mélange d'atomes froids et chauds d'atomes de Rydberg (*avec atomes chauds*). On peut remarquer que le nombre seuil d'atomes de Rydberg est deux fois plus élevé dans le cas d'un échantillon purement froid. Nous avons également représenté un ajustement de N_S par une fonction exponentiellement décroissante, qui nous indique un comportement $N_S \propto n^{-3,2}$ pour un échantillon purement froid et $N_S \propto n^{-2,1}$ pour une mixture d'atomes chauds et froids.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

tion que ces travaux peuvent apporter à la compréhension de l'évolution d'un gaz de Rydberg, ils peuvent nous permettre d'envisager l'utilisation des fortes interactions qui existent entre ces atomes pour la conception de nombreuses applications dans le domaine de l'information quantique [Jaksch et al., 2000, Lukin et al., 2001, Protsenko et al., 2002, Ryabtsev et al., 2005].

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

4.5 Spectroscopie haute résolution d'un gaz d'atomes de Rydberg froids : interaction ions-atomes de Rydberg

4.5.1 Interactions dipôle-dipôle au sein d'un gaz d'atomes de Rydberg froids

Interactions de Van der Waals

Entre deux atomes neutres, les forces d'interaction à longue portée, c'est-à-dire lorsque l'interaction d'échange devient négligeable, sont de type électrostatiques. L'énergie d'interaction de ces deux atomes peut donc être développée en puissance de $1/R$. Nous n'allons considérer dans ce qui suit que les interactions de type dipôle-dipôle qui dominent à longue distance. Ces forces sont regroupées sous le nom de forces de Van der Waals, même si ce nom est souvent employé uniquement pour qualifier les forces dispersives de London, qui font intervenir l'interaction dipôle induit-dipôle induit entre deux particules neutres non polaires.
L'expression classique de l'interaction dipôle-dipôle (en unités atomiques) est donnée par :

$$\mathcal{V}_{dd}^{cl} = \frac{\boldsymbol{\mu_1}\boldsymbol{\mu_2} - 3(\boldsymbol{\mu_1}\cdot\hat{R})(\boldsymbol{\mu_2}\cdot\hat{R})}{R^3} \tag{4.41}$$

où $\boldsymbol{\mu_1}$ et $\boldsymbol{\mu_2}$ sont les moments dipolaires des atomes 1 et 2, $\hat{R}$ est le vecteur unitaire suivant la direction reliant les deux atomes.

Si les deux moments dipolaires sont alignés suivant une même direction (moments dipolaires alignés suivant la direction d'un champ électrique, ou alors moments dipolaires de transition induits par laser), alors en définissant l'angle θ entre cette direction et $\hat{R}$, on peut réécrire l'interaction sous la forme :

$$\mathcal{V}_{dd}^{cl} = \frac{\mu_1\mu_2(1-3\cos^2\theta)}{R^3} \tag{4.42}$$

Au premier ordre de la théorie des perturbations, l'interaction dipôle-dipôle est donnée par la valeur moyenne de l'opérateur $V_{dd} = \frac{e^2}{R^3}(X_1X_2 + Y_1Y_2 - 2Z_1Z_2)$ avec $\hat{R} = R\hat{e}_Z$:

$$V_{dd}^1 = \langle\varphi_{\alpha_k}^A;\varphi_{\alpha_k}^B|\, V_{dd}\,|\varphi_{\alpha_k}^A;\varphi_{\alpha_k}^B\rangle \tag{4.43}$$

où $|\varphi_{\alpha_k}^A\rangle$ et $|\varphi_{\alpha_k}^B\rangle$ sont les états dans lesquels se trouvent respectivement l'atome A et l'atome B, α_k, désignant les nombres quantiques caractérisant l'état atomique.

Dans le cas général où les atomes se trouvent dans le même état de l pur, alors cette quantité (4.43) est toujours nulle. En effet, V_{dd}^1 fait intervenir des produits d'éléments matriciels de la forme $\langle\varphi_\alpha^A|\, X_1\,|\varphi_\alpha^A\rangle\langle\varphi_\alpha^B|\, X_2\,|\varphi_\alpha^B\rangle$ qui sont nuls car les opérateurs position sont impairs. Nous discuterons plus loin les cas où l'interaction dipôle-dipôle ne sera pas nulle au premier ordre mais sera égale à C_3/R^3.

Au deuxième ordre des perturbations, l'énergie d'interaction dipôle-dipôle s'écrit :

$$V_{dd}^2 = \sum_{i,j\neq k} \frac{|\langle\varphi_{\alpha_i}^A;\varphi_{\alpha_j}^B|\, V_{dd}\,|\varphi_{\alpha_k}^A;\varphi_{\alpha_k}^B\rangle|^2}{2E_k - (E_i+E_j)} \tag{4.44}$$

où E_k désigne l'énergie de l'état $|\varphi_{\alpha_k}\rangle$.

Comme l'opérateur $V_{dd} \propto 1/R^3$, alors V_{dd}^2 est proportionnel à $1/R^6$. Si l'on considère l'état $|\varphi_{\alpha_k}\rangle$ comme étant l'état fondamental de chaque atome, alors tous les dénominateurs de l'expression 4.44 sont négatifs. L'interaction dipôle-dipôle donnera naissance, dans ce cas précis, à une énergie négative du système à deux atomes $V_{dd}^2 = -C_6/R^6$ ($C_6 > 0$).
La force qui découle de l'interaction dipolaire, nulle au premier ordre de la théorie des perturbations mais non nulle au deuxième ordre, est appelée force de London. Nous allons en donner une interprétation physique simple [Cohen-Tannoudji et al., 1996]. A un instant donné, le moment dipolaire électrique de chaque atome est nul en moyenne, ce qui ne veut pas dire qu'une mesure individuelle d'une composante de ce moment dipolaire donnera un résultat nul[4].
En première approximation, on peut négliger l'influence d'un dipôle sur le mouvement de l'autre. Les moments dipolaires de chaque atome vont donc fluctuer aléatoirement et indépendamment l'un de l'autre, et l'interaction moyenne entre eux sera nulle (L'opérateur V_{dd} n'a donc, dans ce cas, pas d'effet au premier ordre).
Cependant, les deux dipôles ne sont en réalité pas complètement indépendants. Considérons en effet le champ électrostatique créé par le dipôle A au niveau de B. Ce champ suit les fluctuations du dipôle A. Le dipôle qu'il induit en B est donc corrélé au dipôle A, de sorte que le champ électrostatique qui "revient" en A n'est plus sans corrélation avec le mouvement du dipôle A. Ainsi, bien que le mouvement du dipôle A soit aléatoire, son interaction avec son propre champ qui lui est "réfléchi" par B n'est pas nulle en valeur moyenne. C'est là l'interprétation physique de l'effet de V_{dd} au deuxième ordre.

Nous allons maintenant passer en revue trois cas qui nous permettent d'obtenir une interaction dipôle-dipôle variant en C_3/R^3. Ce type d'interaction permet les couplages les plus importants à grande distance, entre deux atomes neutres.
Dans la suite, lorsque nous parlerons d'interaction de type Van der Waals, nous nous référerons à des interactions dipôle-dipôle variant en C_6/R^6. Par contre, si nous évoquons simplement des interactions de type dipôle-dipôle alors nous désignerons des interactions en C_3/R^3.

Interactions dipôle-dipôle en C_3/R^3

Nous avons la possibilité, dans nos expériences, de nous mettre dans des conditions où les atomes de Rydberg peuvent interagir par interaction dipôle-dipôle en C_3/R^3. Nous allons décrire ces possibilités.

- La première technique consiste à exciter des atomes de Rydberg en présence d'un champ électrique homogène. En effet, les atomes peuvent acquérir un moment dipolaire permanent lorsqu'ils sont excités en présence d'un champ électrique, qui mélange des états de moments angulaires différents [Bethe and Salpeter, 1957]. Nous avons déjà mentionné un tel comportement en donnant l'exemple de l'état $|23p_{3/2}\rangle$ qui acquiert, en champ électrique, un caractère d, en se mêlant à l'état $|22d_{5/2}\rangle$. C'est cette distorsion du nuage électronique par le champ électrique qui donne naissance au moment dipolaire permanent de l'atome de Rydberg. L'exploitation de ce phénomène a été proposée pour la réalisation de portes quantiques, en utilisant l'interaction dipôle-dipôle, variant en C_3/R^3 [Jaksch et al., 2000].

[4] Si l'on fait une telle mesure, on trouve en général une valeur non-nulle ; on aura cependant la même probabilité de trouver la valeur opposée.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Nous avons réalisé une série d'expériences, que nous détaillerons dans la suite et qui visaient à sonder les interactions entre atomes de Rydberg np en présence d'un champ électrique.

- Le deuxième procédé pouvant être utilisé pour créer un gaz d'atomes de Rydberg interagissant en C_3/R^3 est réalisé cette fois en l'absence de champ électrique. Nous allons expliquer l'origine de cette interaction dipôle-dipôle que l'on qualifie de résonante [Li, 2005]. Dans un gaz, à champ électrique nul, les atomes dans des états de parité définie n'ont pas de moment dipolaire permanent, mais seulement un moment dipolaire de transition. Si deux atomes sont dans des états de parité opposée, entre lesquels il peut y avoir une transition dipolaire (par exemple un état s et un état p), on peut alors former, à partir de ces deux atomes, deux états moléculaires, sp et ps, dégénérés pour une distance interatomique infinie. Par contre, pour des distances interatomiques finies, ces états moléculaires sont séparés par l'interaction dipôle-dipôle dite résonante.
Le moment dipolaire de transition μ des atomes est donné par l'élément matriciel $\langle s|\mu_z|p\rangle$, où z est la direction de polarisation du faisceau laser d'excitation. Les états propres du système à deux atomes sont alors les deux états $\Psi_\pm = (|sp\rangle \pm |ps\rangle)/\sqrt{2}$. Les deux valeurs propres de l'hamiltonien du système sont $E_\pm = \pm V_{dd}$. Lorsque V_{dd} est positif (négatif),[5] $+V_{dd}$ ($-V_{dd}$) représente l'énergie de l'état répulsif symétrique (antisymétrique) et $-V_{dd}$ ($+V_{dd}$) représente l'énergie de l'état répulsif antisymétrique (symétrique). Nous avons représenté sur la Fig 4.11 les courbes de potentiel moléculaire correspondant aux cas où les dipôles sont les configurations extrêmes $\theta = 0$ (Fig. 4.11a))et $\theta = \pi/2$ (Fig. 4.11b)). Dans tous les cas, sur la branche de potentiel de plus haute énergie, la force interatomique est répulsive, tandis que sur la branche de potentiel de plus basse énergie, la force interatomique est cette fois attractive.

Cependant, tous les états moléculaires formés à partir d'états de Rydberg quelconques ne sont pas forcément dégénérés à l'infini, comme c'est le cas pour le système à deux atomes $sp-ps$. Dans ces cas non dégénérés, la nature de l'interaction dépend de la distance interatomique. Si l'on considère par exemple une paire d'atomes dans un état dd, ce système est couplé par interaction dipolaire à des états pf. A l'infini, les deux systèmes dd et pf ne sont pas dégénérés à l'infini et sont distants d'une énergie Δ (voir Fig. 4.12). Les moments dipolaires qui vont intervenir pour décrire l'interaction sont les moments de transition dipolaire μ_{dp} et μ_{df}. Les valeurs propres de l'hamiltonien sont alors données par :

$$E_{1,2} = \frac{\Delta \pm \sqrt{\Delta^2 + 4V_{dd}^2}}{2} \tag{4.45}$$

A longues distances, pour lesquelles l'interaction dipolaire est bien plus faible que le décalage énergétique à l'infini ($V_{dd} \ll \Delta$), les valeurs propres peuvent être approximées par :

$$E_1 = \Delta + \frac{V_{dd}^2}{\Delta} \tag{4.46}$$

$$E_2 = -\frac{V_{dd}^2}{\Delta} \tag{4.47}$$

Dans le cas où $V_{dd} \ll \Delta$, l'énergie de chaque branche moléculaire répulsive et attractive est déplacée d'une quantité $\pm V_{dd}^2/\Delta$. Le décalage Δ variant en $1/n^3$ et V_{dd} en n^4, on a donc

[5] Le signe de V_{dd} dépend de l'angle θ entre l'axe reliant les deux atomes et la direction dans laquelle pointent les moments dipolaires des atomes. La valeur négative maximale ($V_{dd} = -2\mu_1\mu_2/R^3$) est obtenue pour $\theta = 0$, et la valeur positive maximale ($V_{dd} = \mu_1\mu_2/R^3$) pour $\theta = \pi/2$.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

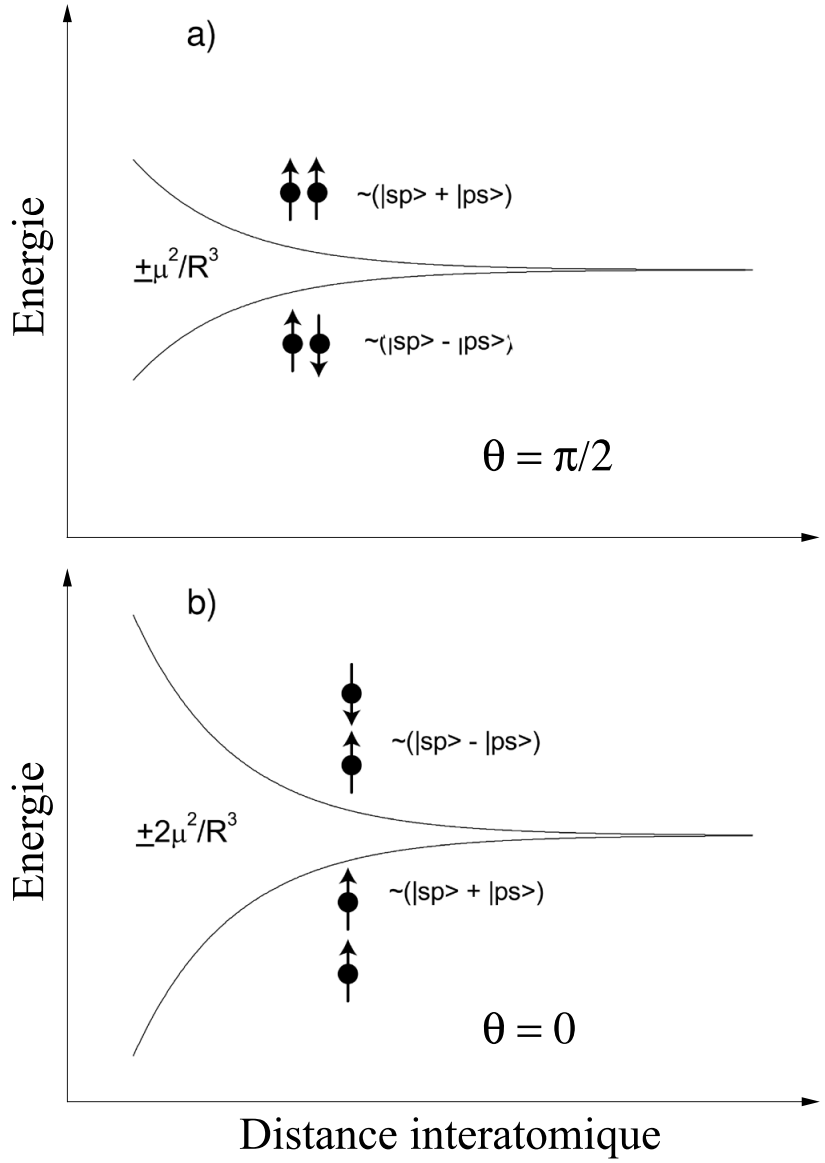

FIG. 4.11 – Couplage dipôle-dipôle entre deux états moléculaires d'une paire d'atomes sp, dans le cas $\theta = \pi/2$ (a)) et $\theta = 0$ (b)). Les moments dipolaires induits sont indiqués par des flèches. Sur les courbes de potentiel du haut, les deux dipôles sont parallèles et l'interaction entre les deux atomes est répulsive. Par contre, sur les courbes de potentiel du bas, les deux dipôles sont antiparallèles et l'interaction est attractive. La courbe de potentiel répulsive est écartée de la courbe attractive d'une quantité $2\mu^2/R^3$ dans le cas $\theta = \pi/2$ et $4\mu^2/R^3$ dans le cas $\theta = 0$. Les deux états moléculaires, sp et ps étant dégénérés pour une distance interatomique infinie ($\Delta = 0$), l'interaction est uniquement de type dipôle-dipôle résonant en $1/R^3$. La figure est extraite de [Li, 2005].

une énergie d'interaction sur la courbe attractive ou répulsive qui varie en n^{11}/R^6 à longue distance. Cette énergie d'interaction est de type Van der Waals, qui est, comme on l'a vu précédemment, calculable au second ordre des perturbations.

Cependant pour de petites distances interatomiques, le couplage dipôle-dipôle V_{dd} devient

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

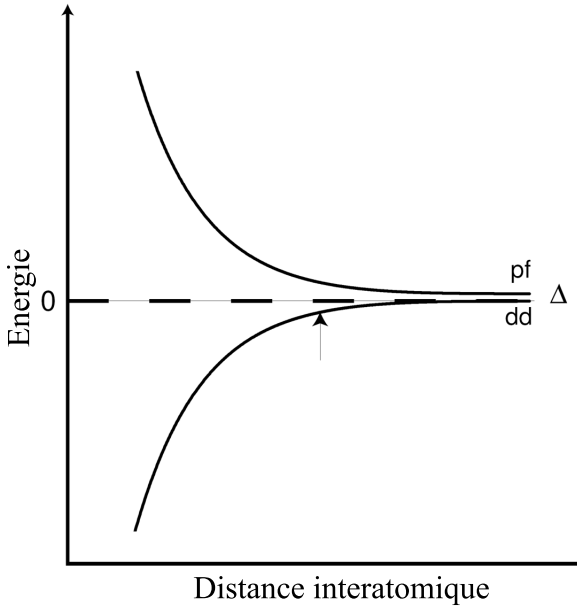

FIG. 4.12 – Représentation des états moléculaires couplés dans le cas d'un couplage entre des états dd et pf. La nature de l'interaction entre les deux atomes, dont les états moléculaires connaissent, à l'infini, un décalage énergétique Δ, dépend de la distance interatomique. Pour des grandes distances, où le décalage est plus grand que le couplage dipolaire, l'interaction est de type Van der Waals, en $1/R^6$. Pour de faibles distances interatomiques, le couplage dipolaire est plus grand que le décalage et l'interaction est essentiellement dominée par l'interaction dipôle-dipôle résonante, en $1/R^3$. La position pour laquelle le couplage dipolaire est égal au décalage, $V = \mu_1\mu_2/R^3 = \Delta$ est indiquée sur la figure par une flèche. La figure est extraite de [Li, 2005].

plus grand que le décalage Δ ($V_{dd} \gg \Delta$), et les valeurs propres de l'hamiltonien du système sont données approximativement par $E_{1,2} = \pm V_{dd}$. Les états moléculaires sont alors décalés à cause de l'interaction d'une quantité $\pm V_{dd} \propto n^4/R^3$. Ce décalage est donc dû essentiellement au caractère résonant de l'interaction dipôle-dipôle variant en C_3/R^3.

La domination de l'interaction de Van der Waals par rapport à l'interaction dipôle-dipôle résonante se produit lorsque le couplage dipolaire V_{dd} devient inférieur au décalage Δ ($V_{dd} \propto n^4/R^3 < \Delta \propto \delta/n^3$ où δ est le défaut quantique effectif). Ainsi, la distance interatomique $R_{VdW} = (n^7/\delta)^{1/3}$, pour laquelle se produit ce changement de type d'interaction, est différente suivant les états à deux atomes considérés.
Dans le cas particulier où les deux états moléculaires sont dégénérés (par exemple les états $sp - ps$), lorsque les deux atomes sont infiniment éloignés ($\Delta = 0$), alors la nature de l'interaction est de type dipôle-dipôle résonante, et varie en $1/R^3$.
Comme on peut le voir sur la Fig. 4.12 , la partie Van der Waals du potentiel est assez plate comparée à la partie dipôle-dipôle. C'est alors uniquement lorsque les deux atomes sont dans la région où l'interaction dipôle-dipôle domine qu'ils seront accélérés violemment l'un vers l'autre et qu'ils entreront en collision.

- La troisième idée, que nous avons mise en pratique pour étudier l'interaction dipôle-dipôle dans un gaz de Rydberg froid, est détaillée dans la section 4.6. Le principe est le même que celui développé précédemment pour expliquer l'apparition d'une interaction dipôle-dipôle résonante entre deux atomes. Cependant, l'interaction se fait cette fois en présence d'un

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

champ électrique homogène. A l'aide de ce champ électrique, on peut déplacer par effet Stark les niveaux d'énergie des atomes de Rydberg de façon à produire, pour un champ électrique particulier, une dégénérescence de deux états à deux atomes. Cela revient à forcer, pour une certaine valeur de champ électrique, le désaccord Δ à s'annuler. Nous sommes alors dans le cas où l'interaction est constamment de type dipôle-dipôle résonante.

La dépendance angulaire, en θ, de l'interaction dipôle-dipôle n'a pas été abordée en détail jusqu'à présent car elle ne présentera pas un intérêt crucial dans la description de nos expériences. On peut trouver dans l'article [Carroll et al., 2004] une étude des effets de l'orientation des dipôles sur l'interaction dipôle-dipôle entre atomes de Rydberg.

Nous allons maintenant présenter le dispositif expérimental qui nous a permis d'étudier les propriétés spectroscopiques d'un échantillon d'atomes de Rydberg froids.

4.5.2 Schéma d'excitation et dispositif expérimental

Excitation des états de Rydberg

Le point de départ de nos expériences consiste à refroidir un échantillon d'atomes de césium dans un piège magnéto-optique, décrit déjà dans le chapitre 3 et représenté sur la Fig. 4.13. La température des atomes, au nombre d'environ 10^7, est de l'ordre de 130 μK. Une fois refroidis, ces atomes, dans les états $6s_{1/2}$ et $6p_{3/2}$, sont excités vers des états de Rydberg. La méthode classique est d'utiliser un laser à colorant pulsé pour réaliser cette excitation. Cependant, la largeur spectrale de ce genre de laser est tellement importante (quelques GHz) qu'il est impossible d'espérer réaliser une spectroscopie haute résolution des états de Rydberg. En effet, nous espérons mettre en évidence les interactions entre atomes de Rydberg en analysant, entre autres, les largeurs de raie d'excitation. L'élargissement de ces raies, dû à l'interaction dipôle-dipôle, devrait être de l'ordre du MHz, ce qui est trois ordres de grandeur inférieur à la largeur spectrale des lasers pulsés à notre disposition.
Nous avons donc imaginé une méthode originale (voir Fig. 4.14) pour l'excitation des atomes de Rydberg, en combinant l'utilisation d'un laser Ti:Sa continu et d'un laser à colorant pulsé. Ces lasers ont été décrits en détail au chapitre 3 et nous en rappellerons donc ici seulement leurs principales caractéristiques.

Le laser à colorant (Continuum ND6000) utilisé pour ce schéma d'excitation (voir Fig. 4.14) est un laser pulsé de largeur spectrale $\sim$ 0,05 cm^{-1} (1,5 GHz) et de durée d'impulsion $\sim$ 9 ns. Le colorant utilisé pour l'expérience est de la coumarine 450, pompée par un laser Nd : YAG triplé en fréquence (355 nm). La puissance maximale par impulsion est d'environ 100 μJ.
La fréquence du laser pulsé est accordée sur la fréquence de transition atomique $6s \longrightarrow 7p_{3/2}$, à environ 455,8 nm.

Le laser Ti :Sa est un laser continu monomode (Coherent Ring 899) pompé par un laser Argon. Le laser couvre des longueurs d'onde comprises entre environ 700 et 1000 nm et sa largeur spectrale est de l'ordre du MHz. Il peut être balayé en fréquence sur des plages de 30 GHz sans saut de mode. La puissance maximum du laser, au niveau du piège magnéto-optique, est de l'ordre de 400 mW.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

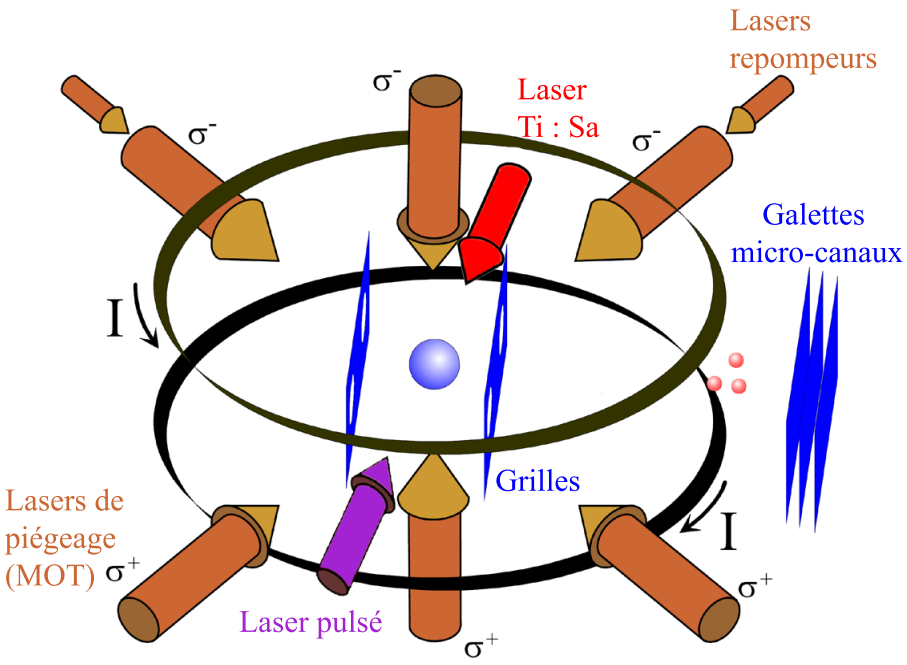

FIG. 4.13 – Représentation globale du dispositif expérimental. Nous avons représenté les éléments du piège magnéto-optique (lasers du MOT, lasers repompeurs et bobines de champ magnétique) ainsi que les lasers d'excitation Rydberg (laser à colorant pulsé et laser continu Ti :Sa). Le MOT est entouré de deux grilles accélératrices, percées de trous laissant passer les faisceaux horizontaux du piège. Les atomes de Rydberg sont ionisés par une impulsion de champ électrique appliquée entre les grilles. Les ions produits sont accélérés par ce même champ et détectés par des galettes micro-canaux.

La fréquence absolue du Ti:Sa est mesurée à l'aide d'un lambdamètre fibré (Angstrom WS-8), étalonné préalablement sur une transition d'absorption saturée d'énergie précisément connue. Le laser Ti :Sa est utilisé à des longueurs d'onde aux alentours de 790 nm, accordé sur les transitions entre l'état $7s_{1/2}f = 4$ et les états de Rydberg np.

Après avoir été excités du niveau $6s_{1/2}$ vers le niveau $7p_{3/2}$ par le laser pulsé, les atomes se désexcitent ensuite spontanément en partie vers l'état $7s$ ($f = 3$ et $f = 4$ de façon équiprobable), avec un rapport de branchement d'environ 44 % [Kurucz and Bell, 1995]. La durée de vie du niveau $7p_{3/2}$ est de l'ordre de 110 ns. Une fois dans l'état $7s$, le laser continu excite les atomes de l'état $7s_{1/2}f = 4$ vers les états de Rydberg np. La durée de vie du niveau $7s$ est très courte, de l'ordre de 56,5 ns. Ce schéma d'excitation (voir Fig. 4.14) nous permet, dans le meilleur des cas, de convertir environ 1 % des atomes du MOT en atomes de Rydberg, ce qui représente aux alentours d'un million d'atomes.
La spectroscopie des états de Rydberg est réalisée en balayant le laser continu Ti :Sa à une vitesse de l'ordre de 2 MHz/s. Les séquences d'excitation sont répétées à une cadence de 10 Hz, imposées par la fréquence du laser pulsé. Un intervalle de 1 MHz sur le spectre d'excitation est donc constitué d'environ cinq points. Pour améliorer la précision de la spectroscopie, chaque spectre que nous représenterons dans cette thèse sera en réalité le résultat de quatre à cinq spectres successifs, représenté après un filtrage basse-bas (*FFT Filter Smoothing* sous ORIGIN®) des données.
Lors de la spectroscopie des états de Rydberg, le champ magnétique du MOT est coupé pour éviter tout effet Zeeman sur les états énergétiques des atomes de Rydberg.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

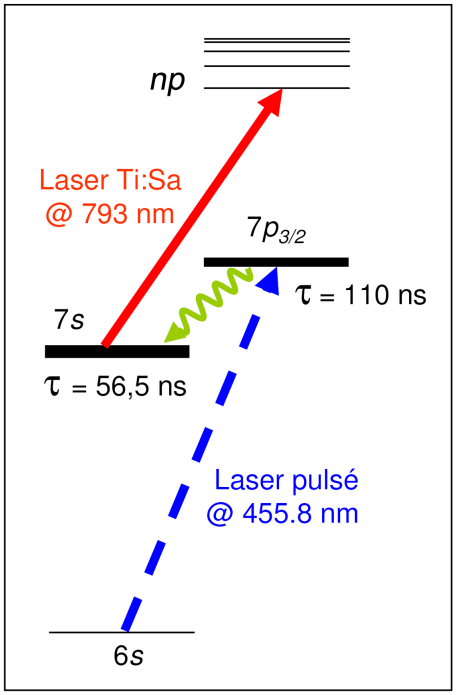

FIG. 4.14 – Schéma d'excitation vers les états de Rydberg. Ce schéma combine l'action d'un laser à colorant pulsé et d'un laser continu Ti:Sa. Dans un premier temps, le laser pulsé excite les atomes du MOT de l'état $6s$ vers l'état $7p$. Ces atomes se désexcitent ensuite spontanément vers l'état $7s$. Le Ti :Sa réalise alors la spectrosocopie des états de Rydberg en excitant les atomes du niveau $7s$ vers un niveau np.

Modèle simplifié du schéma d'excitation

Notre schéma d'excitation peut être modélisé par un système à trois niveaux atomiques, $7p$, $7s$ et np, dont l'évolution de population, $\dot{N}$, est donnée par les équations suivantes :

$$\begin{cases} \dot{N}_{7p}(t) = -A_{7p}N_{7p}(t) & \\ \dot{N}_{7s}(t) = +A_{7s}N_{7s}(t) + A_{7p}N_{7p}(t) & +B_{7s-np}\,\varphi(\nu)\,w[N_{np}(t) - N_{7s}(t)] \\ \dot{N}_{np}(t) = -A_{np}N_{np}(t) & +B_{7s-np}\,\varphi(\nu)w[N_{7s}(t) - N_{np}(t)] \end{cases} \tag{4.48}$$

où $A_{7p} = 1/\tau_{7p}$, $A_{7s} = 1/\tau_{7s}$, $A_{np} = 1/\tau_{np}$ sont les taux de désexcitation spontanée des trois niveaux atomiques ; $B_{7s-np} = d^2_{7s-np}/2\epsilon_0\hbar^2$ est le coefficient d'absorption et d'émission induite entre les niveaux $7s$ et np, relié au moment dipolaire de transition d_{7s-np} ; $\varphi(\nu) = 2\tau_{7s}/[1 + (2\pi\tau_{7s}\nu)^2]$ est la forme de raie normalisée et, $w = I/c$, la densité d'énergie du faisceau, proportionnelle à l'intensité I.

Dans ce modèle, l'excitation pulsée $6s \longrightarrow 7p$ est considérée comme origine des temps, et la population transférée vers l'état $7p$ est prise égale à 1. En prenant en compte nos conditions expérimentales, ce modèle nous permet de déterminer la dynamique de transfert de population entre les trois états mis en jeu. Nous avons représenté les résultats du modèle sur la Fig. 4.15. On prédit ainsi, qu'au maximum, environ 17 % des atomes excités dans l'état $7p$ sont transférés dans l'état de Rydberg $23p$, après un temps optimal d'environ 130 ns. Cette prédiction ne diffère que d'un facteur 3 avec nos observations expérimentales puisque nous détectons le maximum d'atomes de Rydberg environ 400 ns après l'excitation pulsée. Cette différence peut

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

provenir de la présence d'ions lors de l'excitation des états de Rydberg. Nous reviendrons sur ce point par la suite.

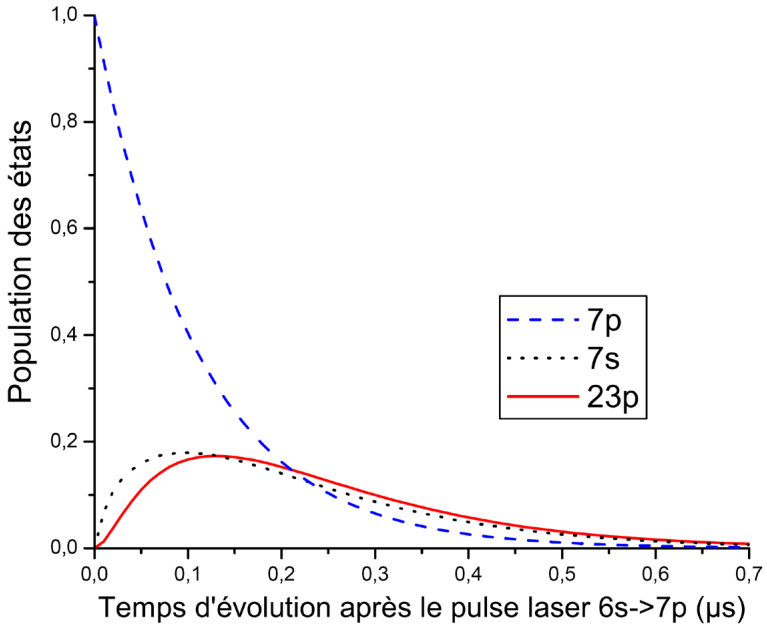

FIG. 4.15 – Evolution de la population des états $7p$, $7s$ et $23p$ dans le modèle décrit par les équations (4.48). La puissance du laser continu est prise égale à 200 mW et le waist du faisceau à 300 μm. Le moment dipolaire de transition, $d_{7s-23p} = -2,00843 \times 10^{-2}$ (u. a.), est extrait d'un calcul théorique réalisé par A. Bleton [Bleton, 1996]. La population initiale de l'état $7p$, $N_{7p}(0)$, est prise égale à 1. On peut remarquer que le maximum du transfert de population de l'état $7p$ vers l'état $23p$ atteint environ 17 % après un temps d'évolution d'environ 130 ns.

Détection ionique des atomes de Rydberg

Une fois les atomes de Rydberg formés, ils sont détectés sélectivement par ionisation à l'aide d'une rampe de champ électrique, dont le temps de montée est de l'ordre de la microseconde. La rampe de champ électrique est appliquée sur une des deux grilles (distantes d'environ 15,7 mm) entourant le piège magnéto-optique (voir Fig. 4.13), de façon à pousser les ions produits vers les détecteurs ioniques. En augmentant, l'amplitude du champ électrique atteint les seuils d'ionisation d'états de Rydberg de plus en plus profonds. Nous pouvons appliquer des champs électriques suffisamment intenses pour ioniser des niveaux aussi profonds que $22d$, ce qui correspond à un seuil d'ionisation de l'ordre de 2 kV/cm.
Les ions produits sont donc accélérés vers des galettes micro-canaux, en passant par une zone de temps de vol de 6 cm, où ne règne aucun champ électrique. Le signal résolu en temps en sortie des galettes est amplifié, visualisé sur un oscilloscope et enregistré par des intégrateurs à portes (box-car).
Le délai entre l'excitation des atomes en état de Rydberg et leur ionisation par le champ électrique peut être contrôlé rigoureusement à l'aide de boîtes à retard d'une extrême précision, de l'ordre de la nanoseconde.

Les grilles entourant le MOT permettent, outre la réalisation de l'impulsion de champ électrique, de créer un champ électrique constant et homogène. Les atomes froids de césium

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

peuvent être ainsi excités vers des états de Rydberg en présence d'un champ électrique.

4.5.3 Etude des raies d'excitation d'états de Rydberg

Les expériences que l'on vise à réaliser devraient nous permettre d'obtenir des spectres dont les caractéristiques témoigneraient des interactions entre atomes de Rydberg. En effet, on s'attend à des effets d'élargissement de raie [Raimond et al., 1981, Singer et al., 2004, Afrousheh et al., 2004] ou de saturation d'excitation (blocage dipolaire) [Tong et al., 2004, Singer et al., 2004] pour de grandes densités d'atomes, et donc pour des intensités laser élevées.

La première des choses est donc d'étudier l'effet de l'intensité des différents laser d'excitation sur la forme des raies d'excitation.

Spectres en champ électrique nul

Les premières expériences consistaient à réaliser la spectroscopie des états de Rydberg à champ électrique nul. Ces études préliminaires nous permettent de mieux comprendre les caractéristiques de notre schéma d'excitation.
Trois paramètres sont déterminants dans le processus d'excitation des états de Rydberg : l'intensité du laser pulsé, celle du laser Ti:Sa, et le délai entre l'excitation et l'ionisation des atomes de Rydberg.
L'intensité du laser pulsé peut être modifiée à l'aide d'une palette de densités optiques disposées en sortie du laser. L'intensité du laser continu est, elle, contrôlée en utilisant l'action combinée d'une lame $\lambda/2$ et d'un cube polariseur. Ce faisceau laser traverse un modulateur acousto-optique qui nous permet de contrôler précisément la durée d'illumination des atomes. La période d'interaction entre les atomes de Rydberg est imposée en déplaçant temporellement l'impulsion électrique d'ionisation par rapport à l'impulsion d'excitation laser.

Nous avons représenté sur les figures 4.16, plusieurs spectres d'excitation des états $37p_{3/2}$, pour différentes intensités des lasers d'excitation. Le temps compris entre l'impulsion d'excitation vers l'état $7p$ et l'ionisation des atomes de Rydberg est d'environ 400 ns. En tenant compte des durées de vie des états $7p$ (110 ns) et $7s$ (55 ns), les atomes de Rydberg interagissent donc pendant environ 200 ns avant d'être détectés.

Les Fig. 4.16a), b) et c) correspondent respectivement à des spectres réalisés pour des énergies du laser pulsé d'environ 15 μJ , 4,5 μJ et 0,25 μJ. Pour chacune de ces énergies du laser pulsé, nous avons représenté cinq spectres obtenus pour différentes puissances du laser Ti:Sa, allant de 415 mW à 30 mW.

- La première des remarques que l'on peut faire à propos de ces spectres concerne l'évolution des largeurs des raies d'excitation. Plus l'énergie du laser pulsé est importante et plus la raie est spectralement large. Cet élargissement se produit de façon asymétrique du côté rouge de la transition. L'origine de cet élargissement provient de la présence d'ions lors de l'excitation des atomes, initialement dans l'état $7s$. Les ions sont assimilés à une charge d'espace positive, dont le champ électrique induit un déplacement Stark des états de Rydberg. Plus les atomes excités sont proches du maximum du champ électrique et plus les niveaux de Rydberg sont déplacés vers le rouge. Ainsi il se crée une bande de niveaux d'énergie vers le rouge de l'état de Rydberg non perturbé, qui provoque un élargissement asymétrique du

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

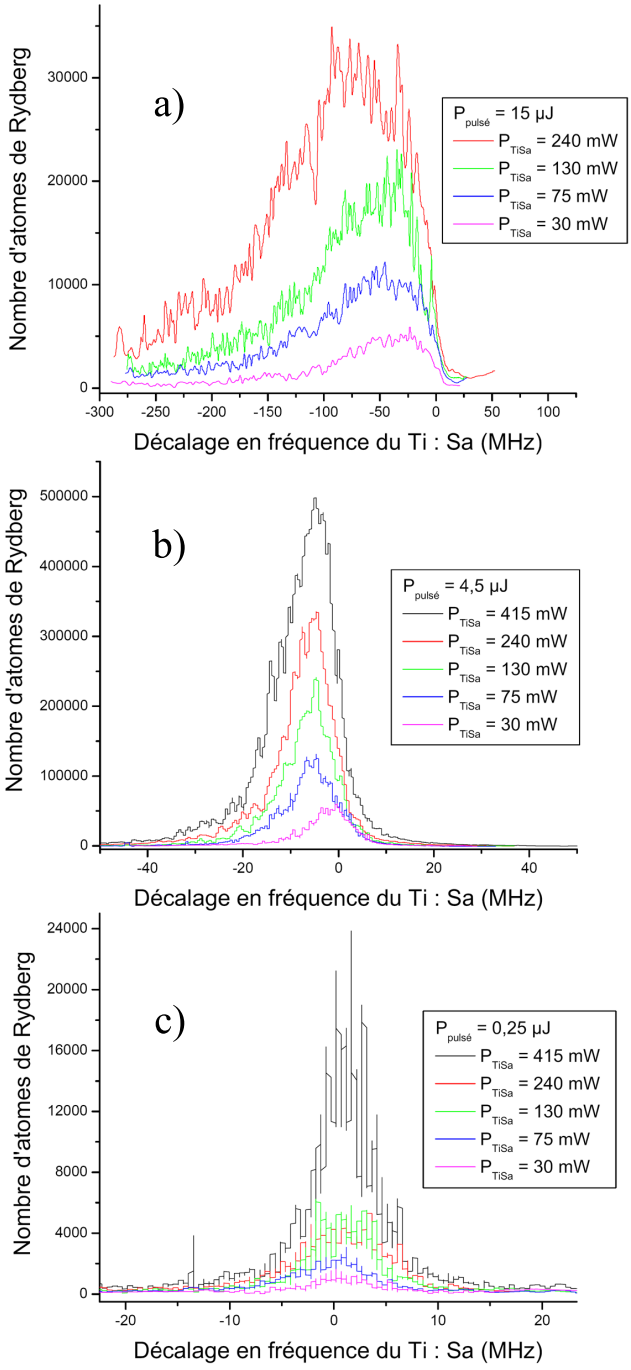

FIG. 4.16 – Spectres de l'état $37p$ en champ électrique nul, pour différentes puissances du laser pulsé (15 μJ : figure a), 4,5 μJ : figure b) et 0,25 μJ : figure c)) et du laser continu (415 mW, 240 mW, 130 mW, 75 mW et 30 mW). Remarquons que l'échelle des fréquences est différente suivant le cas a), b) ou c). Le 0 de l'axe des abscisses correspond à une fréquence du laser Ti:Sa de 12772,7776 cm^{-1}. Ces figures mettent en évidence l'effet de photoions produits par le laser pulsé, qui élargissent d'autant plus les raies d'excitation que la puissance du laser pulsé est élevée. Un décalage Stark des raies, induit par le champ électrique des photoions, est également mis en évidence. Les mesures effectuées pour les différentes puissances du Ti:Sa semblent montrer que l'excitation par le laser continu n'est pas saturée (voir Fig. 4.18).

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

spectre d'excitation.
Ces ions sont produits par l'excitation pulsée à deux photons des atomes de l'état $6s$ vers le continuum, en passant par l'état résonant $7p$. Ils sont facilement détectables puisqu'ils sont accélérés vers les galettes micro-canaux dès l'apparition de l'impulsion de champ électrique d'ionisation. En mesurant le signal du détecteur sur un oscilloscope, les ions correspondent à un pic juste avant le signal provenant de l'ionisation des atomes de Rydberg. On peut donc, en plaçant une porte intégratrice ("boxcar") sur ce pic, avoir une idée du nombre d'ions produits lors de l'excitation. Nous appellerons désormais photoions, les ions créés par excitation laser.
La largeur des raies atteint aux alentours d'une centaine de MHz pour une énergie de l'ordre 15 μJ, ce qui correspond à environ 10^4 ions produits. Nous avons représenté sur la Fig. 4.17 le nombre de photoions produits en fonction de l'énergie du laser pulsé. Le processus d'ionisation étant une réaction à deux photons ([Cohen-Tannoudji et al., 1988] p 204), la quantité de photoions produite doit varier comme le carré de l'énergie du laser. Cependant, à moins de diminuer fortement la puissance du faisceau, la transition $6s \longrightarrow 7p$ est saturée et le nombre de photoions varie alors linéairement, ce qui est généralement le cas dans nos expériences (voir Fig. 4.17).

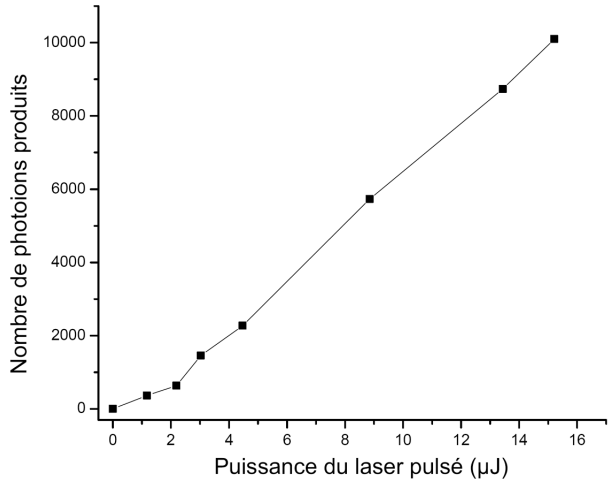

FIG. 4.17 – Nombre de photoions produits en fonction de la puissance du laser à colorant pulsé. On peut remarquer une dépendance quadratique du nombre d'ions produits pour les puissances laser faibles, ce qui reflète le caractère à deux photons du processus de photoionisation ($6s \longrightarrow 7p \longrightarrow Cs^+$). Pour les puissances élevées, la transition $6s \longrightarrow 7p$ est saturée et la variation du nombre de photoions devient linéaire.

Pour réaliser une spectroscopie très fine des états de Rydberg et pouvoir distinguer les effets d'interaction entre atomes de Rydberg, il faut abaisser au maximum ce nombre d'ions. Les spectres de la Fig. 4.16c) sont réalisés avec un nombre négligeable de photoions (non visibles sur le signal de détection). Les raies d'excitation redeviennent alors symétriques, avec des largeurs inférieures à 10 MHz.
La présence de photoions, même si leur nombre peut être considérablement réduit, est un problème **majeur** qui a des effets dramatiques dans les études que nous entreprenons. En diminuant leur quantité, il ne faut pas oublier que nous abaissons également la densité d'atomes de Rydberg ; la possibilité d'observer les effets d'interaction dipôle-dipôle est alors fortement réduite.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Dans la suite du manuscrit, nous étudierons en détail l'effet des ions sur la spectroscopie des états de Rydberg. Ce travail se révèle d'une grande importance car, comme nous le verrons, l'apparition d'ions peut avoir plusieurs origines ; leur effet demeurant tout aussi néfaste. Notons dès à présent que nous avons également observé la production d'ions provenant de l'excitation par le Ti:Sa d'atomes du niveau $7p$ vers le continuum.

- Une deuxième remarque que l'on peut faire à propos des spectres des figures 4.16, concerne l'effet du Ti:Sa sur le profil des raies. Si l'on veut étudier les effets de densité sur les élargissements de raie en variant la puissance du Ti :Sa, il faut être bien sûr qu'ils ne proviennent pas d'un effet de saturation de la transition $7s \longrightarrow np$. On peut voir sur la Fig. 4.18 les résultats d'ajustements des profils de raie par une fonction lorentzienne, pour la puissance du laser pulsé de 4,5 μJ. Les paramètres de l'ajustement qui y sont représentés correspondent à la largeur et l'amplitude des raies. On peut constater sans ambiguïté que l'amplitude de l'excitation ne cesse d'augmenter avec la puissance du laser continu, alors que la largeur reste plus ou moins constante. Nous sommes donc dans un régime où la transition n'est pas saturée. Rappelons que le laser Ti:Sa est très peu focalisé, sur un waist d'environ 300 μm. Nous sommes amenés, dans certaines situations expérimentales, à bien plus focaliser le laser et nous observons alors clairement les effets d'une telle saturation de transition.
La largeur minimale de la transition $7s \longrightarrow 37p$ que nous avons pu mesurer, en minimisant tous les effets d'élargissement, est d'environ 7 MHz, et devrait représenter la largeur naturelle de la transition plus la largeur spectrale du laser Ti:Sa, d'environ 1 MHz. La largeur naturelle est donnée uniquement par la durée de vie de l'état $7s$ ($\tau \approx 56$ ns) puisque celle de l'état $37p$ est de trois ordres de grandeurs plus élevée ($\tau \approx 130$ μs), ce qui nous donne une largeur de transition d'environ 3 MHz.

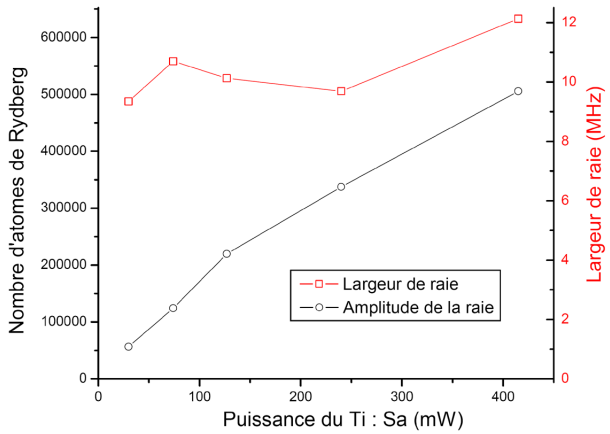

FIG. 4.18 – Amplitudes et largeurs des raies d'excitation $37p$ pour une puissance du laser pulsé de 4,5 μJ et 5 puissances du laser Ti:Sa (415mw, 240 mW, 130 mW, 75 mW et 30 mW). Les données présentées sont déduites d'un ajustement des profils de raie par une fonction lorentzienne. Cette figure nous renseigne sur le caractère non saturé de la transition $7s \longrightarrow 37p$.

Les largeurs les plus faibles que nous ayons mesurées atteignaient environ 7 MHz. L'origine de cette différence n'a pas été jusqu'à maintenant clairement identifiée. Il faut néanmoins admettre que notre mesure de fréquence du laser Ti :Sa ne permet pas d'atteindre une précision inférieure à 3 MHz. Ainsi, les largeurs minimum obtenues sont tout

de même compatibles avec la largeur naturelle du niveau $7s$. Il est à noter que la structure hyperfine du niveau de Rydberg tend à élargir la raie d'excitation, atteignant 2,23 MHz pour l'état $23p_{1/2}$ [Goy et al., 1982]. Ceci peut expliquer les largeurs minimum observées.

Nous allons maintenant tenter de mettre en évidence les effets d'interaction entre atomes de Rydberg en présence d'un champ électrique et déterminer la contribution des ions au profil des spectres réalisés dans ces conditions expérimentales.

Spectres en champ électrique

Comme nous l'avons déjà mentionné précédemment, un atome de Rydberg dans un état np va acquérir, en présence d'un champ électrique, un caractère d qui lui confère un moment dipolaire. En réalisant la spectroscopie de cet état perturbé, des effets d'élargissement de raies d'excitation pourraient apparaître et témoigner de l'interaction dipôle-dipôle entre les atomes.

Nous nous attendions à mettre en évidence un effet d'élargissement des raies qui témoignerait de l'interaction entre les atomes de Rydberg.

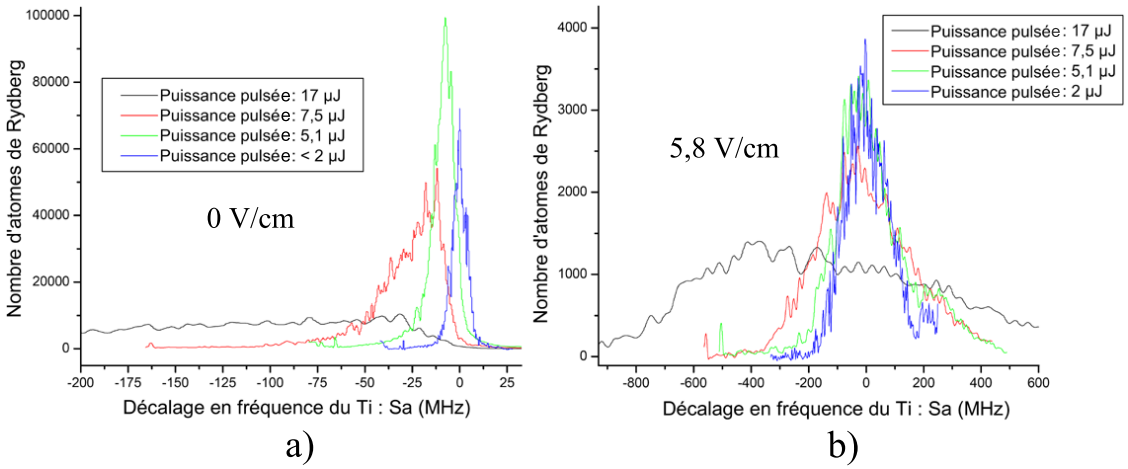

FIG. 4.19 – Spectres de l'état $37p$ en champ nul (a)) et à 5,8 V/cm (b)), pour plusieurs puissances du laser pulsé et une puissance du Ti:Sa fixée à 240 mW. Alors qu'à champ nul, les raies d'excitation sont élargies du côté rouge de la transition à cause des photoions, en présence d'un champ électrique, les raies sont encore plus larges et deviennent globalement symétriques, avec un léger épanchement, cette fois-ci du côté bleu de la transition. Cet épanchement peut être également expliqué par la présence de photoions déplacés par le champ électrique homogène (voir texte).

Nous avons représenté, sur la Fig. 4.19b), la spectroscopie de l'état de Rydberg $37p_{3/2}|m| = 1/2$ pour différentes énergies du laser pulsé, et pour un champ électrique homogène d'environ 5,8 V/cm ; la puissance du laser Ti:Sa est, quant à elle, fixée à environ 240 mW. Nous avons également représenté sur la Fig. 4.19a), à titre de comparaison, la même expérience à champ électrique nul.

On peut remarquer un élargissement des raies d'excitation très important en présence du champ électrique. Pour une énergie du laser pulsé d'environ 5 μJ, correspondant à environ 2000 photoions provenant du laser pulsé, la largeur de la raie passe d'environ 10 MHz à 0 V/cm, à 200 MHz à 5,8 V/cm.

Comme on peut le constater, l'élargissement des raies à 5,8 V/cm ne se produit plus de façon

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

prononcée du côté rouge de la transition. On peut même observer que, pour certaines énergies du laser d'excitation, l'asymétrie s'est déplacée du côté bleu de la raie. Cette asymétrie peut provenir du déplacement, induit par le champ électrique statique, des ions produits lors de l'excitation des atomes de Rydberg. Ces ions créent alors un champ électrique qui s'oppose à ce dernier. Les atomes de Rydberg de l'échantillon voient donc un champ électrique inférieur à celui imposé entre les grilles, ce qui crée une asymétrie du côté bleu de la raie lors de l'excitation de l'état $7s$ par le Ti:Sa.
Plus la puissance du laser pulsé est grande et plus l'élargissement est important, et ceci à 5,8 V/cm comme à 0 V/cm. Il est donc très probable que l'élargissement en champ électrique provienne également de la présence de photoions (voir Fig. 4.21). Il nous a été impossible d'observer un effet de densité d'atomes sur le profil des raies indépendamment de celui produit par les photoions. Un élargissement des raies provenant de l'augmentation de la densité d'atomes serait une signature des effets de l'interaction dipôle-dipôle. La première approche que l'on a suivie consistait à réduire fortement la puissance de laser pulsé de façon à annuler la production des photoions, puis à étudier la forme des raies en fonction de la puissance du Ti:Sa. Cependant nous avons là encore observé la formation de photoions, mais cette fois-ci, leur quantité dépendait de l'intensité du Ti:Sa. Ils proviennent essentiellement de l'ionisation des atomes dans l'état $7p$, préalablement excités par le laser pulsé.

Nous avons réalisé un autre type d'expérience qui consistait à comparer l'évolution de l'élargissement des raies d'excitation en champ électrique pour différents nombres quantiques principaux, n, des atomes de Rydberg. L'effet de l'interaction dipôle-dipôle devenant de plus en plus important avec n, nous nous attendons à observer des largeurs de raie elles aussi de plus en plus importantes.

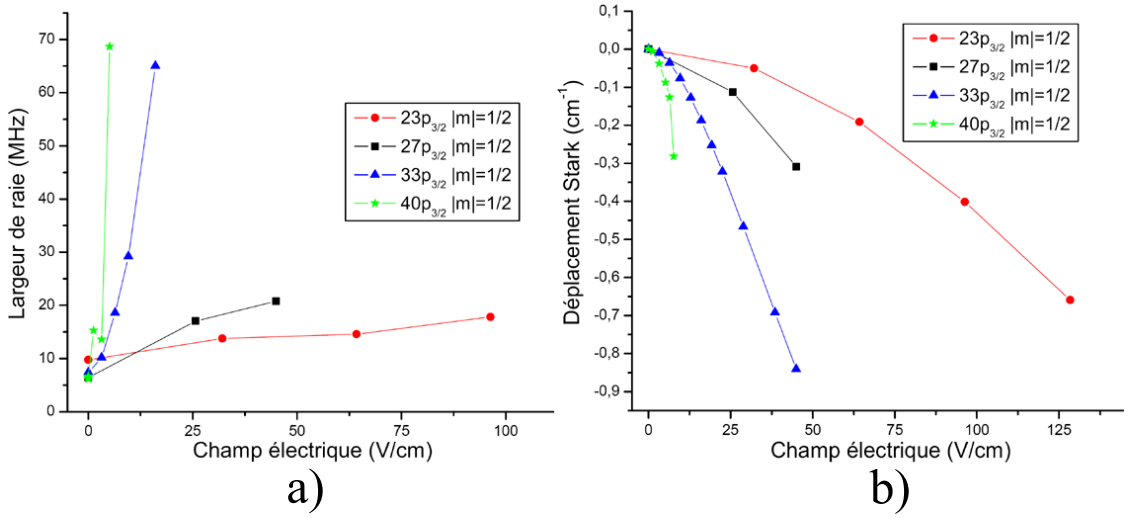

FIG. 4.20 – a) Evolution des largeurs de raie d'excitation des états $23p$, $27p$, $33p$, et $40p$ en fonction du champ électrique homogène. On peut remarquer que l'élargissement est de plus en plus important lorsque n augmente, ce qui peut témoigner des effets d'une interaction dipôle-dipôle entre atomes de Rydberg mais également de leur interaction avec des photoions. b) Diagramme Stark des états $23p$, $27p$, $33p$, et $40p$. On peut en déduire la polarisabilité électrique des différents états, ce qui est nécessaire pour évaluer les effets d'élargissement induits par les photoions.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Sur la Fig. 4.20a) est représentée l'évolution des largeurs de raie du sous-état $|m| = 1/2$ des niveaux de Rydberg $23p_{3/2}$, $27p_{3/2}$, $33p_{3/2}$, et $40p_{3/2}$ en fonction du champ électrique homogène appliqué entre les deux grilles entourant le MOT. Ces données ont été prises en minimisant le nombre de photoions produits par le laser pulsé. On s'aperçoit que l'accroissement des largeurs en fonction du champ électrique devient de plus en plus important lorsque n devient grand, ce qui est compatible avec un effet d'interaction dipôle-dipôle entre atomes de Rydberg mais aussi d'interaction avec des photoions. Le nombre de photoions détectés dans cette expérience est de l'ordre de 500.

Nous allons maintenant tenter d'interpréter toutes ces observations et essayer de déterminer leur origine.

4.5.4 Interprétation des résultats

L'origine des observations précédemment évoquées peut être attribuée à trois causes : l'interaction dipôle-dipôle entre atomes de Rydberg, l'effet de photoions, ou alors l'inhomogénéité du champ électrique créé par la paire de grilles. Cette troisième hypothèse a été écartée après avoir réalisé l'expérience de déplacer l'échantillon atomique par rapport aux grilles d'environ la taille du nuage. L'effet Stark observé, induit par l'inhomogénéité du champ électrique statique, est trop faible ($\lesssim 1/1000$) pour expliquer les élargissements de raie obtenus. Nous allons d'abord nous concentrer sur le problème des photoions.

Photoions du Ti:Sa

La présence d'ions au sein d'un nuage d'atomes froids de Rydberg va induire un élargissement des raies d'excitation qui sera d'autant plus grand que le nombre d'ions est important. Cet élargissement provient du champ électrique inhomogène créé par les ions, sur tout le volume d'excitation. La Fig. 4.21 permet de comprendre cet effet d'élargissement, lorsqu'en plus, les atomes sont plongés dans un champ électrique homogène. Elle représente la variation en énergie des niveaux de Rydberg en fonction du champ électrique, dans le cas d'un effet Stark quadratique (Fig. 4.21a)) ou linéaire (Fig. 4.21b)). Les inhomogénéités du champ électrique produit par les ions font que la valeur du champ électrique total varie au sein de l'échantillon sur une plage délimitée sur la figure par deux lignes verticales (en pointillés) de part et d'autre de la valeur centrale du champ électrique $\mathcal{E}_1$ ou $\mathcal{E}_2$. La largeur des raies ΔE_1 ou ΔE_2 va dépendre de façon évidente de l'état de Rydberg excité, qui subit un déplacement Stark très différent suivant les nombres quantiques qui le caractérisent.
Dans le cas d'états de Rydberg subissant un déplacement Stark quadratique et pour une même distribution de champ électrique inhomogène $2\Delta\mathcal{E}$, l'élargissement va être plus important pour des champs électriques élevés. De plus, pour des états rouges (énergie du niveau qui diminue avec le champ électrique), il est prédit [Osterwalder and Merkt, 1999] que les spectres d'excitation vont présenter un élargissement asymétrique se situant vers les fréquences de transition basses.
Par contre, la pente des niveaux de Rydberg qui subissent un effet Stark linéaire (Fig. 4.21b) est indépendante de la valeur du champ électrique ; les largeurs des raies seront donc elles aussi indépendantes du champ électrique.

En dessous d'une certaine valeur du champ électrique homogène, dépendant de n, les niveaux de Rydberg que l'on excite dans nos expériences subissent des déplacements Stark quadratiques. Nous avons représenté sur la Fig. 4.20b), le diagramme Stark expérimental des

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

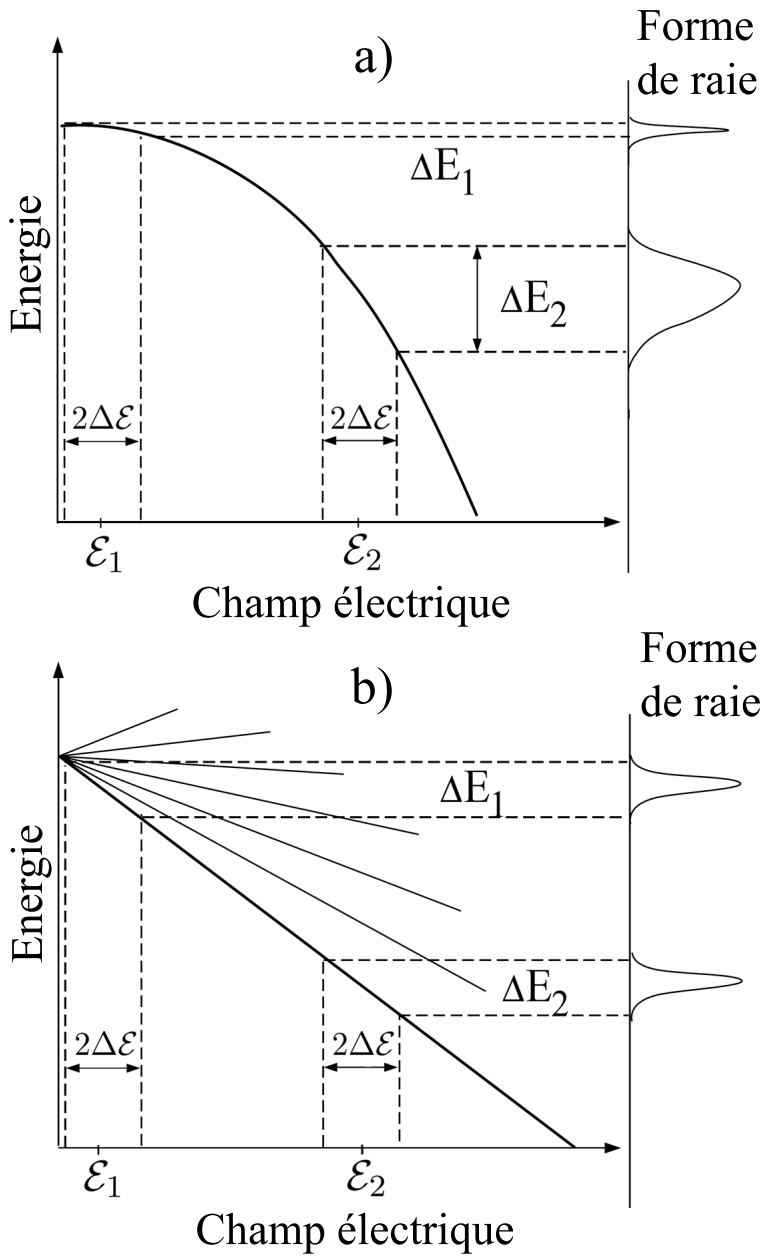

FIG. 4.21 – Elargissement inhomogène des raies d'excitation pour des états de Rydberg subissant un effet Stark quadratique (a)) ou linéaire (b)). Cette figure permet d'expliquer l'élargissement des raies d'excitation lorsque le champ électrique augmente et nous permet de comprendre que ce comportement ne se produit que pour des états subissant un effet Stark quadratique.

niveaux $23p$, $27p$, $33p$ et $40p$, où l'on peut observer un déplacement quadratique pour les champs électriques faibles, et un déplacement linéaire pour les champs électriques élevés (le déplacement linéaire n'est clairement visible que pour l'état $33p$, car pour les autres états, les champs électriques explorés ne sont pas assez élevés). On comprend donc que la présence d'ions, lors de l'excitation en champ électrique des atomes, provoque un élargissement des raies, semblable à celui observé dans nos expériences. Nous n'avons pas présenté sur la Fig. 4.20a), les valeurs de champ électrique pour lesquelles le déplacement Stark est linéaire. Pour

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

ces valeurs, les largeurs de raie ne varient plus de façon croissante avec le champ électrique. Nous avons illustré cette remarque avec la Fig. 4.22, où l'évolution de la largeur de raie de l'état $33p_{3/2}|m| = 3/2$ a été représentée en fonction du champ électrique homogène, à travers les deux types de régions de déplacement Stark, linéaire et quadratique.

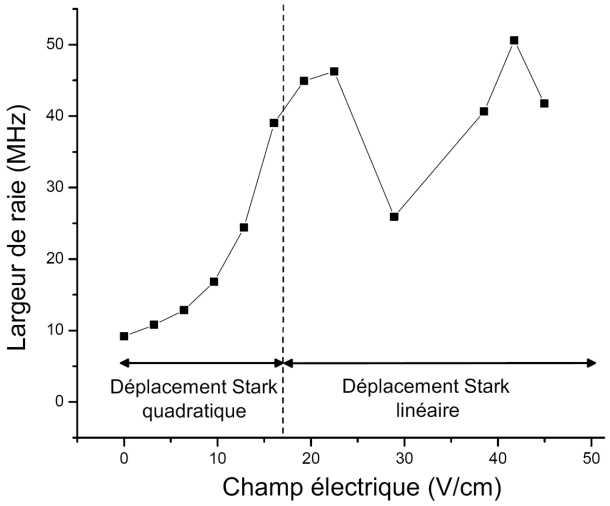

FIG. 4.22 – Evolution de la largeur de raie d'excitation de l'état $33p$ en fonction du champ électrique homogène. Pour une valeur de champ électrique inférieure à environ 17 V/cm, l'élargissement des raies d'excitation témoigne d'un déplacement Stark quadratique (voir Fig. 4.21a)). A partir de 17 V/cm, l'état $33p$ rencontre une multiplicité et son comportement n'est plus dicté par un déplacement Stark quadratique, mais linéaire. Ceci implique que les largeurs n'évoluent pas en fonction du champ électrique (voir Fig. 4.21b)).

Nous allons voir dans un premier temps qu'un modèle simple d'ions distribués uniformément sur l'échantillon d'atomes permet d'accréditer l'idée que l'élargissement des raies provient effectivement du champ électrique inhomogène produit par les photoions. Dans un deuxième temps, nous présenterons les résultats d'une simulation plus réaliste d'une distribution gaussienne d'ions qui reproduit très exactement la forme des raies de l'excitation de l'état $50p$, et ceci pour plusieurs valeurs de champs électriques homogènes.

Distribution homogène des photoions : On va considérer dans ce modèle une distribution sphérique et uniforme des ions au sein du nuage d'atomes. Ce modèle est très réducteur mais il va nous permettre de donner un ordre de grandeur du nombre d'ions dont l'effet peut provoquer les élargissements présentés sur la Fig. 4.20a)).
La variation de l'énergie d'un état de Rydberg E en fonction du champ électrique $\mathcal{E}$ (lorsqu'il n'est pas trop grand) est donnée par $E = a\mathcal{E}^2$, où a est un facteur qui dépend explicitement de la polarisabilité électrique. Les largeurs de raie en champ électrique sont alors données grossièrement par $\Delta E = 2a\,\mathcal{E}\Delta\mathcal{E}$, où $\Delta\mathcal{E}$ représente la variation du champ électrique inhomogène des ions. Cette variation est donc simplement donnée par :

$$\Delta\mathcal{E} = \frac{\Delta E}{E}\frac{\mathcal{E}}{2} \tag{4.49}$$

Pour une certaine valeur du champ électrique $\mathcal{E}$, E et ΔE sont extraits des Fig. 4.20a) et Fig. 4.20b). On peut en déduire $\Delta\mathcal{E}$ qui correspond au maximum du champ électrique

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

inhomogène produit par les ions. La variation spatiale de ce champ électrique par rapport au centre du nuage est représentée sur la Fig. 4.23. Le maximum de champ électrique, $\Delta\mathcal{E}$, est donné par $\frac{N_i e}{4\pi\epsilon_0 R}$, où N_i est le nombre total d'ions et R le rayon du nuage ionique qu'on prend égal à environ 300 μm.

Les données et les résultats de ce modèle sont rassemblés dans le tableau suivant :

	$40p$	$33p$	$27p$	$23p$
E (cm^{-1})	0,0873	0,00765	0,1126	0,191
ΔE (cm^{-1})	0,0023	0,001	0,0006	0,0005
ΔE (MHz)	69	30	18	15
$\mathcal{E}$ (V/cm)	5,14	9,63	25,7	64,23
$\Delta\mathcal{E}$ (V/cm)	0,0674	0.0613	0.0648	0.0816
Nombre d'ions min (distr. homog.)	420	380	405	510
Nombre d'ions min (distr. gauss.)	1000	910	972	1220

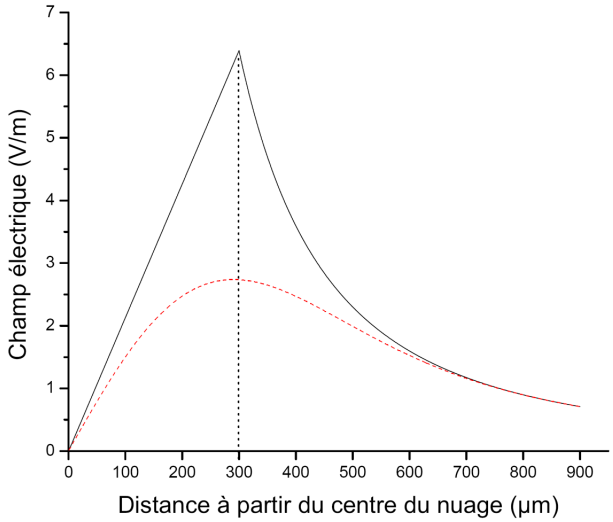

FIG. 4.23 – Variation spatiale du champ électrique calculé pour une distribution sphérique, homogène (courbe continue) et gaussienne (courbe en tirets) de 400 photoions. Le nuage est supposé avoir un rayon $R = 300$ μm dans le cas de la distribution homogène et une largeur (à $1/\sqrt{e}$) $\sigma = \sqrt{2}R \approx 210$ μm. On peut remarquer que le maximum de champ électrique est inférieur dans le cas d'une distribution gaussienne. L'axe des abscisses correspond à la distance par rapport au centre du nuage.

Ce modèle très simple nous permet de déduire qu'un nombre aux alentours de 400 à 500 photoions est capable de produire les largeurs que l'on observe dans nos expériences (voir Fig. 4.20a)). Il faut rappeler que nous avons considéré dans ce calcul le champ électrique maximum de la distribution homogène des ions, ce qui correspond à un élargissement maximal des raies. Le nombre des ions trouvé par ce calcul est donc sous-évalué.
Nous avons calculé (voir tableau ci-dessus), dans le cas plus réaliste d'une distribution gaussienne des ions, le nombre d'ions minimum capables de créer les élargissements observés. On peut remarquer que le nombre d'ions trouvé est plus élevé que dans le cas d'une distribution

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

homogène. Nous pouvons effectivement constater sur la Fig. 4.23 que le maximum de champ électrique est plus faible d'environ un facteur 2,4 dans le cas gaussien.
Malgré la simplicité des modèles, les nombres d'ions trouvés restent en bon accord avec le signal d'ions que l'on détecte sur les galettes micro-canaux (≈ 500), et qui provient de l'ionisation des atomes par le laser continu Ti :Sa. L'estimation expérimentale directe du nombre d'ions détectés n'est précise au mieux qu'à un facteur 2 ou 3 près.

Nous allons présenter un modèle un peu plus élaboré qui nous permet de déterminer le nombre d'ions produits dans l'expérience (et non plus sa valeur minimale) en considérant une distribution gaussienne des ions et en tenant compte de la forme et du déplacement des raies d'excitation des états de Rydberg.

Distribution gaussienne des photoions : Nous avons également utilisé un modèle qui prend en compte la distribution gaussienne des ions au sein de l'échantillon atomique. On suppose une telle distribution des ions car elle doit être imposée par le profil en intensité gaussien du faisceau laser Ti:Sa.
Dans le modèle, nous avons utilisé une fonction de distribution des fréquences de transitions atomiques ν donnée, sur le volume de l'échantillon, par l'expression :

$$f(\nu) \propto \int_0^\infty \frac{r^2\, e^{-r^2/2\sigma^2}}{\left[\nu - \frac{1}{2}\,\alpha\,\mathcal{E}^2(r)\right]^2 + \Gamma^2}\quad dr \tag{4.50}$$

où σ et Γ correspondent respectivement au rayon du nuage atomique et à la largeur naturelle de la raie d'excitation. Le déplacement Stark des raies d'excitation est pris en compte par le terme $\frac{1}{2}\,\alpha\,\mathcal{E}^2(r)$.

Nous avons tenté de reproduire, à l'aide de ce modèle, la forme des raies d'excitation des atomes pour différents champs électriques homogènes. Nous avons représenté en couleur, sur la Fig. 4.24, les spectres expérimentaux de l'état 50p, pour les valeurs du champ électrique homogène 0 V/cm, 0,2 V/cm, 0,37 V/cm et 0,69 V/cm. Ces expériences ont été réalisées en éliminant les photoions provenant du laser pulsé ; nous détectons néanmoins ceux produits par le Ti :Sa. Sur la même figure, nous avons inséré les spectres simulés (en noir) pour un nombre d'ions de 1500 et un rayon (à $1/\sqrt{e}$) du nuage ionique de 150 μm. La taille du nuage ionique est donnée par les dimensions du faisceau laser au niveau de l'échantillon atomique (le faisceau laser Ti:Sa est légèrement plus focalisé que lors des précédentes expériences sur les états $40p$, $33p$, $27p$ et $23p$). On peut remarquer que les spectres simulés concordent très bien avec les spectres expérimentaux. Le nombre d'ions correspondant aux spectres théoriques est assez proche des précédentes estimations. On peut trouver des explications à ces différences : les conditions expérimentales ne sont pas exactement les mêmes puisque l'intensité du laser Ti :Sa est plus importante dans l'étude de l'état $50p$. On s'attend ainsi à ce que le nombre d'ions soit un peu plus important dans cette dernière expérience. L'état $50p$ est également davantage susceptible de produire des ions supplémentaires par collision (formation d'un plasma plus efficace pour les valeurs de n élevées).

Conclusion

Les modèles que nous avons présentés permettent d'estimer un nombre d'ions produits par le Ti :Sa de l'ordre de 1000 ; ce nombre suffit pour expliquer les élargissements observés lors

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

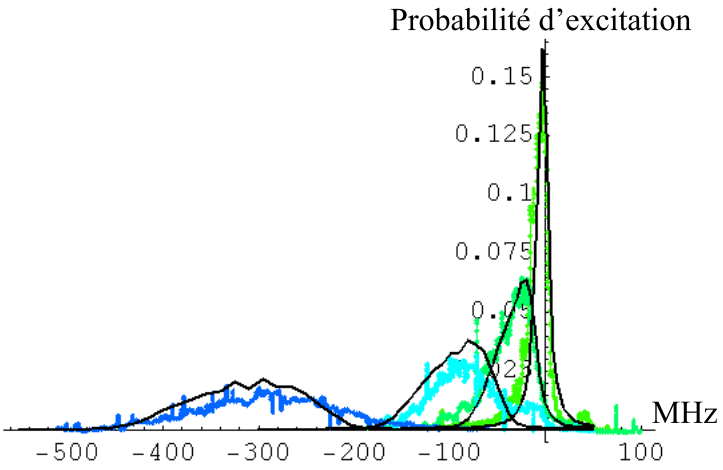

FIG. 4.24 – Spectres expérimentaux (couleur) de l'état $50p$ pour différentes valeurs de champ électrique homogène, 0 V/cm, 0,2 V/cm, 0,37 V/cm et 0,69 V/cm. Nous avons également représenté les spectres théoriques (lignes foncées) correspondant aux mêmes valeurs de champ électrique pour un nombre d'ions de 1500 et un rayon (à $1/\sqrt{e}$) du nuage de 150 μm. Ces résultats sont issus d'un modèle supposant une distribution gaussienne des photoions, produits en continu par le laser Ti:Sa (transition $7p \longrightarrow Cs^+$).

de la spectroscopie des états de Rydberg.
Les photoions apparaissent donc comme la source principale de l'élargissement des raies d'excitation. Nous allons maintenant étudier le comportement de ces ions en fonction du temps. Cette analyse nous permettra d'envisager et de proposer une méthode originale pour réaliser la spectroscopie des états de Rydberg en évitant l'effet néfaste des photoions.

4.5.5 Dynamique des ions

L'expérience que nous réalisons maintenant a pour but de déterminer l'évolution temporelle de l'effet des photoions sur les spectres d'excitation. Dans un premier temps, les atomes froids du MOT sont excités vers l'état $7p$ à l'aide du laser pulsé. La puissance du laser pulsé n'est que très faiblement abaissée de façon à pouvoir créer, dès l'illumination du nuage atomique, une quantité assez élevée de photoions (de l'ordre de 30 000 ions). Ensuite, le laser continu Ti:Sa excite pendant environ 100 ns les atomes du niveau $7s$ vers le niveau de Rydberg. On fait varier l'intervalle de temps entre les deux impulsions lumineuses de façon à pouvoir étudier l'évolution du nuage de photoions. En étudiant l'évolution de la forme des raies d'excitation, on peut en déduire l'évolution du nuage ionique.
Premièrement, on s'attend à ce que l'explosion coulombienne des ions diminue la densité de charges et par conséquent nous devrions observer des raies qui s'affinent en augmentant l'intervalle de temps entre les deux impulsions laser.
Deuxièmement, si l'on excite les atomes en présence d'un champ électrique homogène, les ions produits vont être accélérés par le champ électrique et, au bout d'un certain temps, vont quitter la zone où se trouve l'échantillon atomique. En retardant l'arrivée de l'impulsion laser Ti:Sa par rapport à l'impulsion du laser à colorant, les raies devraient cette fois encore s'affiner.

Nous avons donc réalisé ces expériences pour différents intervalles de temps entre les deux lasers. La Fig. 4.25a) représente des spectres, en champ électrique nul, du niveau $23p$, pour des délais, après production des photoions, de 100, 200 et 300 ns. On peut observer

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

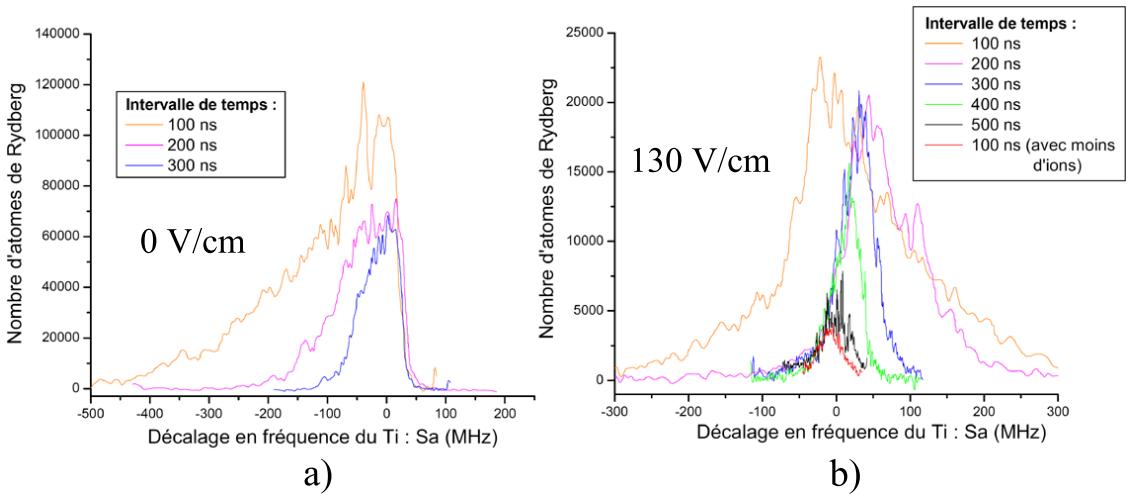

FIG. 4.25 – a) Mise en évidence de l'explosion coulombienne des photoions. Les spectres de l'état $23p$ sont réalisés pendant 100 ns en décalant temporellement (100ns, 200 ns, et 300 ns) la spectroscopie par rapport au moment de la production des photoions (≈ 30000). L'affinement des raies d'excitation en décalant la période de spectroscopie témoigne de l'explosion coulombienne des photoions. b) La même expérience est réalisée en champ électrique (130 V/cm) pour des délais de 100 ns, 200 ns , 300 ns, 400 ns, et 500 ns. Nous avons également réalisé l'expérience pour un délai de 100 ns, en réduisant d'un facteur 20 le nombre de photoions produits. L'affinement des raies d'excitation coïncide avec le départ des ions, induit par le champ électrique homogène, de la zone d'interaction avec les atomes de Rydberg. La diminution du signal de Rydberg avec l'intervalle de temps témoigne de la faible durée de vie de l'état $7s$.

que les raies, élargies vers le rouge de la transition, s'affinent de plus en plus lorsque l'intervalle de temps augmente. Cette figure met en évidence l'effet de l'explosion coulombienne qui tend à réduire la densité des ions et donc leur effet d'élargissement sur les raies d'excitation.

La Fig. 4.25b) correspond à la même expérience mais en présence d'un champ électrique homogène d'environ 130 V/cm. Cette fois encore, les raies d'excitation s'affinent davantage lorsqu'on éloigne l'impulsion d'excitation Ti:Sa de l'instant correspondant à la formation des photoions. Les ions subissent ici l'effet du champ homogène qui les accélère en dehors de la zone où la spectroscopie s'effectue. L'affinement des raies correspond donc à un éloignement des ions de plus en plus important. On voit qu'à partir de 400 ns, les ions n'ont plus vraiment d'influence sur la largeur des raies. On a également ajouté sur la figure un spectre réalisé pour un temps de vol ionique de 100 ns mais cette fois en réduisant fortement, de l'ordre d'un facteur 20, le nombre de photoions créés. La raie d'excitation est, dans ce cas, nettement plus fine (à peu près celle prise, à puissance élevée, pour un intervalle de temps de 500 ns) que dans le cas correspondant à une puissance du laser pulsé élevée ; cela montre bel et bien le rôle de la dynamique des photoions sur la spectroscopie des états de Rydberg.

La Fig. 4.26 nous donne la distance théorique parcourue par des ions en fonction du temps pendant lequel ils interagissent avec un champ électrique statique. Pour un temps de vol ionique d'environ 500 ns et un champ électrique de 130 V/cm, les ions parcourent une distance supérieure à 1000 μm. A cette distance, le champ électrique créé par un ensemble de 30000 ions au niveau du centre du nuage de Rydberg est d'environ 25 V/m comparé à $\approx$ 200 V/m lorsque les ions ne sont pas déplacés. On comprend donc pourquoi, les ions une fois

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

déplacés, influencent bien moins la forme des raies d'excitation.

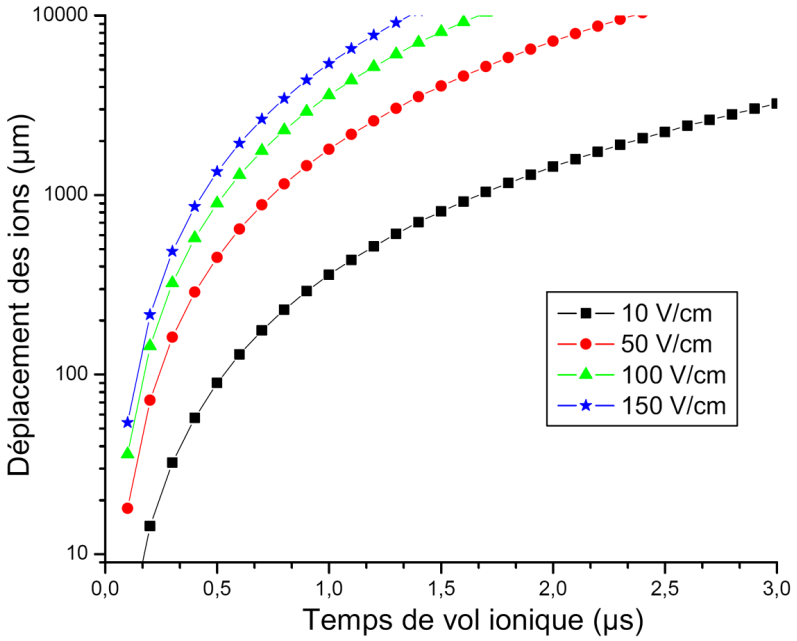

FIG. 4.26 – Distance théorique parcourue par les ions en fonction du temps d'interaction avec le champ électrique homogène pour les valeurs de 10 V/cm, 50 V/cm, 100 V/cm et 150 V/cm.

On peut donc envisager, pour réaliser une spectroscopie indépendante de tout effet parasite des photoions, d'exciter les atomes vers les états de Rydberg uniquement lorsque les photoions sont partis, en décalant au maximum l'impulsion laser du Ti:Sa. Toutefois, la durée de vie du niveau $7s$ de 50 ns fait que le nombre d'atomes pouvant être excités devient vite très réduit et il ne faut pas oublier que l'excitation par le Ti:Sa produit, elle aussi, des ions ($7p_{3/2} \longrightarrow$ continuum). Nous avons donc réorienté notre expérience en utilisant une nouvelle technique de spectroscopie, que l'on va décrire maintenant.

4.5.6 Schéma de dé-excitation : contourner l'effet parasite des ions

La technique de spectroscopie originale que l'on utilise maintenant a pour point de départ le schéma d'excitation (voir Fig. 4.14), c'est-à-dire induire une transition atomique du niveau fondamental vers l'état $7p$ à l'aide du laser pulsé puis, après désexcitation spontanée vers l'état $7s$, peupler les niveaux de Rydberg np avec une impulsion du laser Ti:Sa. L'idée est alors, une fois les photoions évacués, de stimuler la désexcitation des atomes de Rydberg vers l'état $7s$ à l'aide d'une impulsion supplémentaire du Ti:Sa. Cette deuxième impulsion, suffisamment décalée temporellement pour attendre que tous les photoions soient partis, nous permettra donc de sonder le gaz d'atomes de Rydberg en interaction, en dehors de toute influence ionique.
Nous avons représenté, sur la Fig. 4.27, la séquence temporelle de ce schéma de spectroscopie. La première impulsion de Ti:Sa excite donc les atomes en état de Rydberg, puis la deuxième impulsion va dépomper les atomes vers le niveau $7s$ dont la courte durée de vie empêche tout recyclage vers l'état de Rydberg. Cette impulsion de dépompage a pour effet de creuser un trou dans le spectre d'excitation 4.27, dont la largeur peut témoigner, entre autres, des effets d'interaction dipôle-dipôle.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

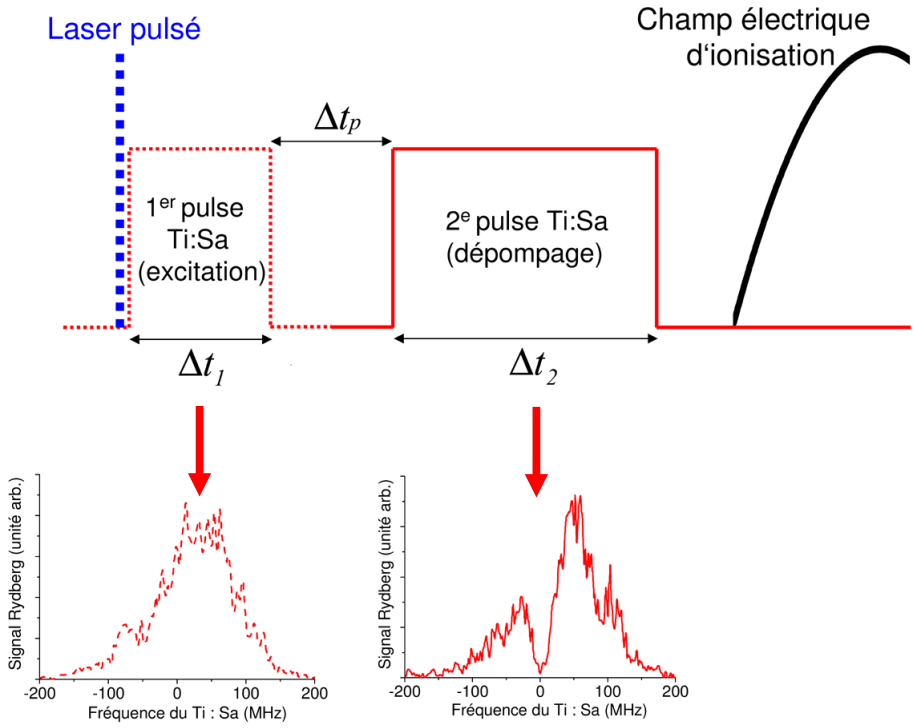

FIG. 4.27 – Séquence temporelle du schéma de spectroscopie de dépompage. L'excitation des états de Rydberg est effectuée par la combinaison d'une impulsion du laser à colorant suivie d'une impulsion (durée Δt_1) du laser continu Ti:Sa. Le dépompage est effectué après un temps variable, Δt_p, par une deuxième impulsion (durée Δt_2) du laser Ti:Sa. Le dépompage se manifeste par un *trou* dans le spectre d'excitation.

Avant de présenter nos travaux expérimentaux, nous allons donner les résultats d'un modèle simple qui nous permettent de mieux comprendre ce schéma de dé-excitation.
Notre schéma d'excitation peut être modélisé, comme on l'a déjà vu, par un système à trois niveaux atomiques, np et $7s$ et $7p$, dont l'évolution de population est donnée par les équations de probabilités (4.48). Nous prendrons ici l'exemple du niveau excité $23p$. Dans ce modèle, où l'on ne tient pas compte d'une production quelconque d'ions lors de l'excitation, le laser Ti:Sa est continuellement allumé[6]. La Fig. 4.28a) reproduit la forme de raie que l'on doit obtenir, pour une intensité fixée du Ti:Sa et pour différents temps d'interaction entre l'excitation pulsée vers le niveau $7p$ et la détection des atomes de Rydberg. On remarque que plus on laisse interagir les atomes avec le laser Ti:Sa et plus un trou se creuse au centre de la raie. La largeur de ce trou augmente également avec ce temps d'interaction. La Fig. 4.28b) témoigne d'un comportement assez semblable lorsque la puissance du Ti:Sa augmente, pour une période d'illumination fixée (ici de 0,7 μs). L'interprétation de ce phénomène est naturellement la dé-excitation des atomes de Rydberg vers le niveau $7s$. Le dépeuplement des atomes de Rydberg se fait préférentiellement proche de la résonance, et augmente avec le temps d'interaction et la puissance du laser.
On sera amené, au cours de l'expérience, à focaliser le laser Ti:Sa sur un waist plus petit, d'environ 100 μm, pour rendre le couplage entre les niveaux np et $7s$ plus important et

[6]Ce modèle reproduit finalement l'expérience décrite précédemment, cependant, le faible temps d'interaction des atomes avec le Ti:Sa ainsi que la faible intensité du laser ne permettaient pas d'observer un trou de dépompage dans le spectre d'excitation.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

creuser plus facilement le trou de dépompage. Le laser pulsé sera par conséquent lui aussi plus fortement focalisé pour conserver un bon recouvrement spatial.

Nous verrons dans la suite que nous reproduisons expérimentalement le même comportement de dépompage que celui prédit par le modèle que que l'on vient de décrire.

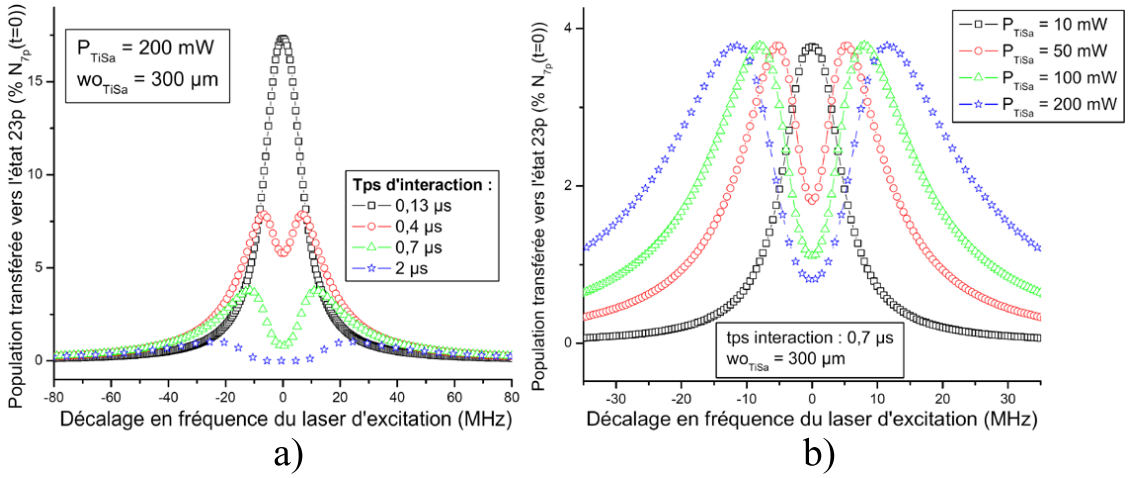

FIG. 4.28 – Spectres théoriques de l'état $23p$, issus du modèle décrit par les équations (4.48). a) Les spectres correspondent à une puissance du laser Ti:Sa de 200 mW, focalisé sur un waist de 300 μm. Chaque spectre coïncide avec un temps d'interaction, des atomes avec le Ti:Sa, de 0,13 μs, 0,4 μs, 0,7 μs, et 2 μs. On peut remarquer que plus cette période est importante et plus le dépompage est efficace (le trou de dépompage se creuse et s'élargit). Au bout d'un temps d'interaction de l'ordre de la microseconde, l'état de Rydberg est complétement dépompé à résonance. b) Les spectres sont obtenus pour des puissances laser de 10, 50, 100 et 200 mW, en imposant un temps d'interaction de 0,7 μs et un waist de 300 μm. L'augmentation de la puissance laser permet également un dépompage plus important, en élargissant la raie de dé-excitation.

Dans les expériences qui suivent, nous analysons ce trou de dépompage, dont la forme peut, pour une période d'interaction et une puissance du laser fixées, nous permettre de sonder directement les interactions au sein du nuage d'atomes de Rydberg. L'effet parasite des photoions est contourné à l'aide de deux impulsions laser du Ti:Sa : la première excite les atomes de Rydberg et la deuxième, une fois les ions éjectés, dépeuple cet état.

4.5.7 Spectroscopie de dépompage

Le schéma de spectroscopie décrit sur la Fig. 4.27 fait intervenir trois paramètres temporels Δt_1 (durée de la première impulsion laser Ti:Sa), Δt_p (période entre la première et la deuxième impulsion Ti:Sa) et Δt_2 (durée de la deuxième impulsion laser Ti:Sa) que nous pouvons modifier en vue d'analyser le trou de dépompage. Nous sommes également capables de changer indépendamment la puissance de chaque impulsion laser (P_1 et P_2).

Les expériences qui suivent ont été réalisées en excitant l'état $23p$, en présence d'un champ électrique homogène de 130 V/cm. Le nombre de photoions détectés est aux alentours de 5000.

– Sur la Fig. 4.29a), l'expérience est effectuée en supprimant la deuxième impulsion et en faisant varier la durée de la première impulsion laser de 0,3 à 1 μs. On peut remarquer,

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

dans ces conditions expérimentales, que le dépompage ne débute qu'entre 0,5 et 0,8 μs. La Fig. 4.29b) nous permet de comprendre l'existence d'un tel retard. Elle correspond à une expérience réalisée avec $t_1 = 300$ ns et $t_2 = 350$ ns, pour des valeurs de Δt_p comprises entre 0 et 700 ns. Pour $\Delta t_p = 0$ ns, on n'aperçoit pas de dépompage, ce qui est en accord avec la Fig. 4.29a). Par contre, à partir de $\Delta t_p = 100$ ns le trou apparaît et ne se creuse plus davantage en augmentant l'écart temporel entre les deux impulsions. L'explication de cette observation vient de la présence de photoions lors du dépompage, qui le rendent inefficace en élargissant la distribution des fréquences de transition de l'état de Rydberg vers l'état $7s$. Dès que les ions sont chassés de la zone d'interaction par le champ électrique, le dépompage peut se produire. Pour la valeur de champ électrique utilisée, 130 V/cm, on prévoit (voir Fig. 4.26) et on a constaté expérimentalement (voir Fig. 4.25) que les ions ne doivent plus avoir d'effet au bout d'environ 400 ns, ce qui correspond aux observations faites sur les Fig. 4.29a) et 4.29b). Dans toutes les expériences qui suivent, nous allons imposer un intervalle de temps Δt_p entre les deux impulsions de l'ordre de la microseconde, et donc ne sonder le nuage d'atomes de Rydberg qu'après le départ des photoions.

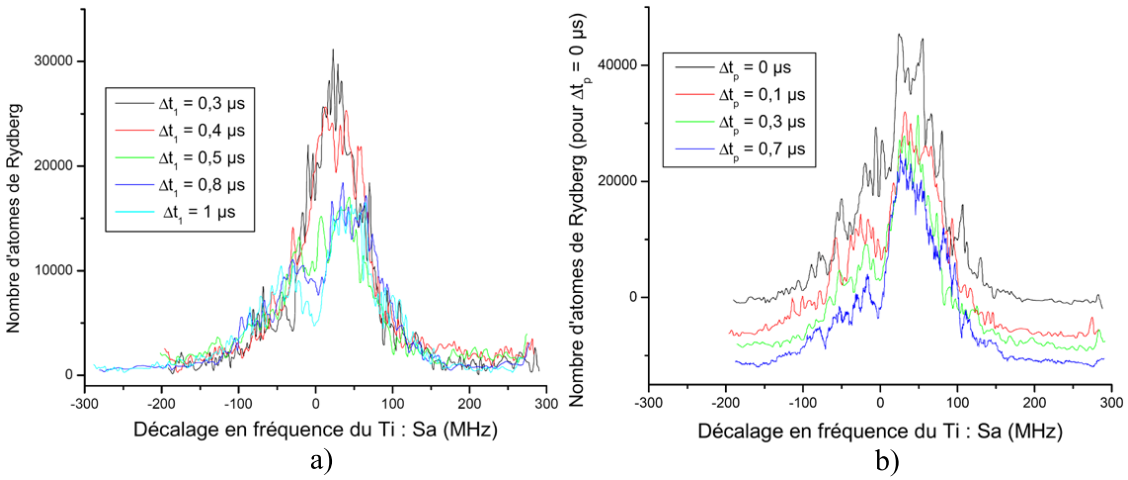

FIG. 4.29 – a) Spectroscopie de dépompage en supprimant la deuxième impulsion du Ti:Sa et en variant la durée, Δt_1 de la première de 0,3 à 1 μs. On peut constater que le dépompage ne commence qu'à partir d'une période d'illumination du nuage, $\Delta t_1 \approx 0,5$ μs, puis devient de plus en plus efficace en augmentant cette durée, comme prédit par le modèle (voir Fig. 4.28a)),. b) Spectroscopie de dépompage en faisant varier l'intervalle de temps entre les deux impulsions du Ti:Sa de 0 à 0,7 μs, et en imposant $\Delta t_1 = 300$ ns et $\Delta t_2 = 350$ ns. On peut remarquer que le dépompage ne se produit qu'à partir de $\Delta t_p \approx 100$ ns et ne se creuse plus davantage lorsque la durée de cet intervalle de temps augmente. Cette observation renforce l'idée que le dépompage reste inefficace tant que les photoions restent dans la zone d'interaction des atomes des Rydberg (voir Fig. 4.29a)).

– Sur les Fig. 4.30a) et 4.30b), nous avons représenté les résultats de la spectroscopie de dépompage en faisant varier la durée Δt_2 de la deuxième impulsion de 0 à 3 μs (Fig. 4.30a)) ($P_2 = 300$ mW), et sa puissance, P_2, de 0 à 300 mW (4.30b)) ($\Delta t_2 = 5$ μs), pour $\Delta t_1 = 300$ ns et $\Delta t_p = 1$ μs.
On observe donc bien le même comportement que celui prédit par les équations de probabilité (4.48), illustré sur les Fig. 4.28a) et Fig. 4.28b).

– La dernière expérience que nous avons menée a pour objectif d'atteindre le but fixé :

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

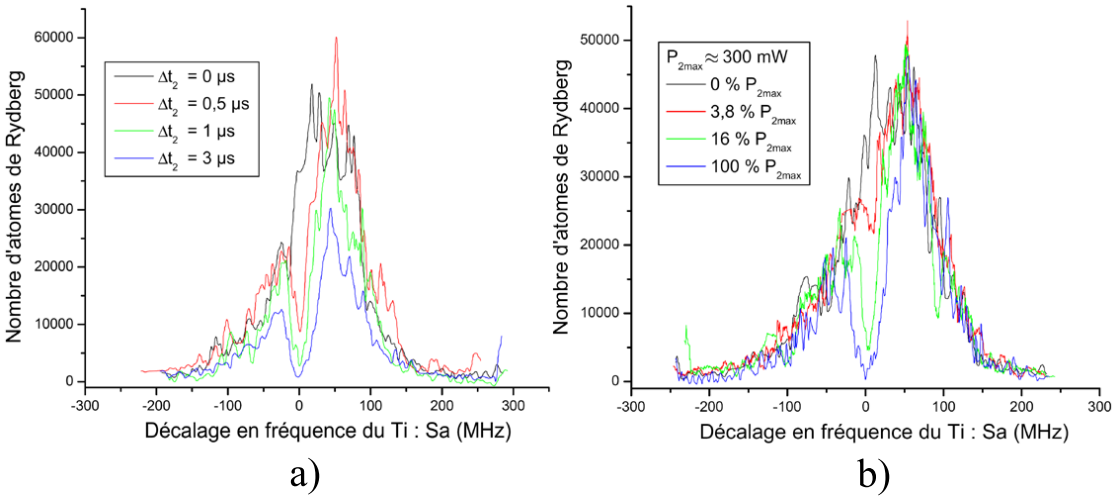

FIG. 4.30 – Spectroscopie de dépompage en faisant varier, dans un premier temps (cas a)), la durée de la deuxième impulsion Δt_2 de 0 à 3 μs (avec $P_2 = 300$ mW) et, dans un deuxième temps, sa puissance P_2 de 0 à 300 mW. Ces expériences ont été réalisées en imposant $\Delta t_1 = 300$ ns et $\Delta t_p = 1$ μs. Comme prédit par le modèle (voir Fig. 4.28a)), le trou de dépompage devient de plus en plus prononcé et s'élargit lorsque la durée d'illumination ou la puissance de l'impulsion augmentent.

mettre en évidence les effets d'interaction dipôle-dipôle entre atomes de Rydberg. En faisant varier l'intensité de la première impulsion, on est capable de changer la densité des atomes de Rydberg produits. L'évolution de la largeur du trou de dépompage en fonction de la densité devrait permettre la mise en évidence de ces interactions.
Les spectres de la Fig. 4.31 sont obtenus pour $\Delta t_1 = 300$ ns, $\Delta t_p = 1$ us, $\Delta t_2 = 600$ ns, $P_2 \approx$ 300 mW. La puissance P_1 de la première impulsion laser varie entre $P_{1max} \approx 300$ mW et $P \approx 14{,}4$ mW (4,8 % P_{1max}).
La raie de dépompage ne semble pas s'élargir en augmentant la densité d'atomes de Rydberg. La densité maximum d'atomes de Rydberg que l'on peut atteindre à l'aide de ce schéma d'excitation ne semble pas assez grande pour mettre en évidence les interactions dipôle-dipôle entre atomes de Rydberg. Ces atomes de Rydberg dans un état np acquièrent un moment dipolaire permanent uniquement grâce au caractère d de l'état, qui apparaît en présence d'un champ électrique. Ce caractère d ne représente dans nos expériences qu'au plus 20 % de la fonction d'onde totale, ce qui ne permet donc apparement pas d'observer, avec nos densités, le couplage entre les moments dipolaires des atomes de Rydberg.

4.5.8 Conclusion

Dans un premier temps, nous avons tenté de mettre en évidence les effets d'interaction dipôle-dipôle entre atomes de Rydberg à l'aide d'un schéma d'excitation combinant l'action d'un laser pulsé large bande et d'un laser continu balayable en fréquence, de largeur spectrale de l'ordre du MHz. Ce schéma nous permet de réaliser une spectroscopie haute résolution des états de Rydberg. Cependant, pendant l'excitation, l'ionisation d'atomes par le laser pulsé et le laser continu conduit à un effet d'élargissement des raies, similaire à celui attendu par une interaction dipôle-dipôle importante. Les photoions produits, même réduits au minimum, empêchent toute mise en évidence des effets d'interaction entre atomes de Rydberg. Nous avons

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

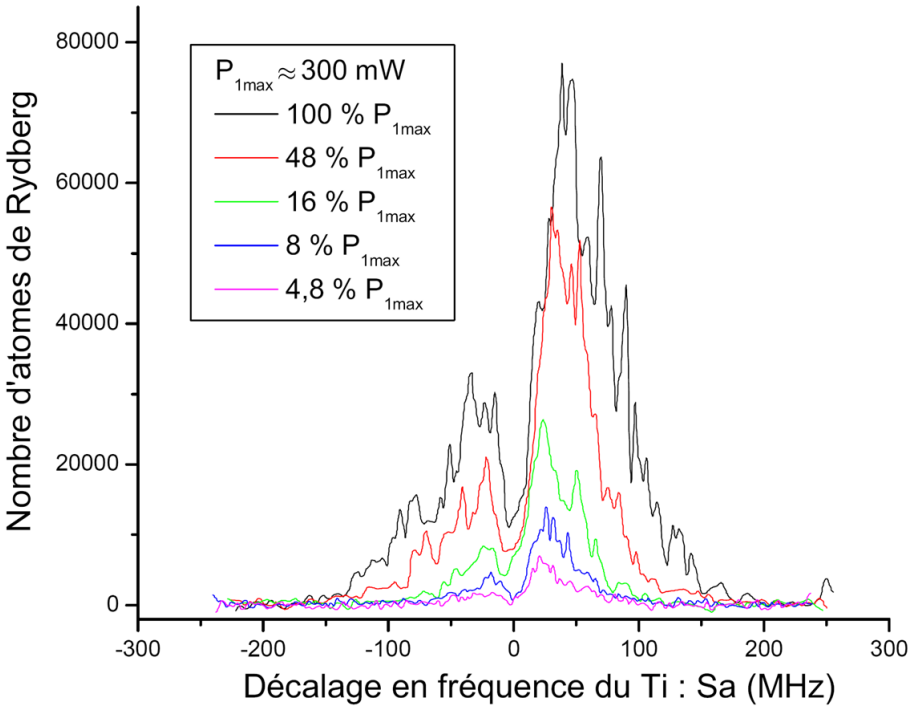

FIG. 4.31 – Etude de la raie de dépompage en faisant varier la densité initiale d'atomes de Rydberg. La densité est contrôlée en ajustant la puissance de la première impulsion du Ti:Sa, P_1. Nous avons imposé dans cette expérience $\Delta t_1 = 300$ ns, $\Delta t_p = 1$ us, $\Delta t_2 = 600$ ns et $P_2 \approx 300$ mW. La raie de dé-excitation ne semble pas s'élargir en augmentant la densité initiale d'atomes de Rydberg, ce qui laisse penser que les interactions dipôle-dipôle sont trop faibles dans ces expériences pour être mises en évidence.

montré qu'un nombre aussi faible que 1000 photoions pouvait provoquer des élargissements importants et d'autant plus grands que le nombre quantique principal des états de Rydberg est élevé. La spectroscopie des états de Rydberg nous a permis de caractériser le nuage d'ions créé lors de l'excitation des atomes et apparaît donc comme un moyen très efficace pour sonder la présence de champs électriques inhomogènes, même très faibles.
Une nouvelle méthode a ensuite été adoptée pour éviter l'effet parasite des ions lors de la spectroscopie. Elle consiste à sonder le nuage d'atomes de Rydberg en induisant une transition radiative vers l'état $7s$, puis à analyser la raie de dépompage. Elle est réalisée, une fois les ions éjectés de la zone d'interaction par le champ électrique homogène, en irradiant le nuage atomique par une impulsion du laser continu. Cette dé-excitation produit, dans le spectre d'excitation, un trou, dont la largeur reflète la distribution spectrale des atomes de Rydberg. Malheureusement, même en évitant l'effet parasite des ions, nous n'avons pas été capable de détecter un effet clair et direct des interactions entre atomes de Rydberg.
La probabilité de mettre en évidence les interactions dipôle-dipôle est fortement accrue en excitant des états de Rydberg de nombre quantique principal de plus en plus élevé. Cependant en augmentant n, l'efficacité de dépompage diminue également, ce qui nous a empêché d'utiliser cette technique de spectroscopie pour des n élevés.

Il est à noter cependant que l'on a obtenu, à plusieurs reprises, lors de la spectroscopie d'excitation, des ions qui apparaissaient lorsque la fréquence du laser continu est à résonance avec un état de Rydberg, c'est-à-dire lorsque le nombre d'atomes de Rydberg créés est

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

maximum (voir Fig. 4.32). Ces ions ne sont donc pas produits par ionisation laser, mais seraient plutôt le résultat d'un effet de densité atomique élevée. Ces ions témoigneraient de collisions induites par l'interaction dipôle-dipôle, et seraient les précurseurs de l'apparition d'un plasma au sein du nuage de Rydberg. Cette interprétation a été donnée très récemment par l'équipe de T. F. Gallagher [Li et al., 2005].
L'évolution d'un nuage d'atomes de Rydberg vers un plasma froid serait donc bien due à des collisions froides entre atomes de Rydberg, comme nous l'avions supposé, suite aux expériences que nous avions menées et décrites au début du chapitre, en Sec. 4.4. La caractérisation rigoureuse d'un tel phénomène nécessite un schéma d'excitation sujet à beaucoup moins de fluctuations quant au nombre d'atomes de Rydberg produits. En effet notre technique, consistant à utiliser un laser pulsé dans le schéma d'excitation, empêche l'étude précise et l'observation aisée de ces ions résonants ; ce sont les fluctuations du nombre d'atomes de Rydberg excités, inhérentes à ce genre d'excitation, qui en sont responsables. Dans nos expériences, l'observation de ces ions résonants a été possible en réduisant la puissance du laser pulsé pour minimiser les fluctuations du signal, et cela tout en gardant un nombre assez élevé d'atomes de Rydberg excités. Ce compromis expérimental s'avère en pratique assez difficile à réaliser.
Une nouvelle technique d'excitation est actuellement utilisée, ne mettant en jeu que des lasers continus. Une diode laser à 1470 nm induit la transition du niveau $6p$ vers le niveau $7s$, puis le laser Ti :Sa excite les atomes du niveau $7s$ vers un état de Rydberg np. Cette approche semble très prometteuse et fera l'objet d'une étude détaillée dans la prochaine thèse de notre équipe de recherche.

Revue des expériences en cours

Dans cette partie, nous allons décrire brièvement quatre expériences qui se sont déroulées au moment où j'effectuais ma thèse. Elles sont très proches de celle que nous avons entreprise, car visant également à mettre en évidence les effets d'interaction entre atomes de Rydberg froids.
Deux de ces expériences [Tong et al., 2004, Singer et al., 2004] se sont déroulées au sein de l'équipe de P. Gould au Connecticut (USA), et de celle de M. Weidemüller à Freiburg (Allemagne). Elles sont très similaires et ont permis, toutes deux, selon les auteurs, la mise en évidence de la suppression d'excitation d'atomes de Rydberg causée par les interactions de Van der Waals. Cela mènerait à un effet de blocage local d'excitation, dans lequel l'excitation d'un atome empêche celle de ses voisins. Les conclusions de ces travaux sont très intéressantes et semblent témoigner des interactions à longue distance entre les atomes de Rydberg. Nous nous interrogeons cependant sur une possible interprétation des phénomènes observés en faisant intervenir l'effet d'ions créés indirectement par l'interaction dipôle-dipôle. Nous avons vu en effet qu'ils pouvaient avoir une influence importante sur la forme des raies d'excitation.
Une troisième expérience, réalisée au sein du groupe de J. Martin au Canada, a permis, en utilisant une spectroscopie micro-onde, la mise en évidence d'un effet d'élargissement de raie, induit par l'interaction dipôle-dipôle entre atomes de Rydberg [Afrousheh et al., 2004].
La dernière expérience que nous allons décrire s'est déroulée dans le groupe de T. F. Gallagher en Virginie (USA), et marque une avancée certaine dans la compréhension des interactions dipôle-dipôle entre atomes de Rydberg : elle met en évidence le rôle des forces dipolaires dans l'ionisation d'un gaz de Rydberg froid.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

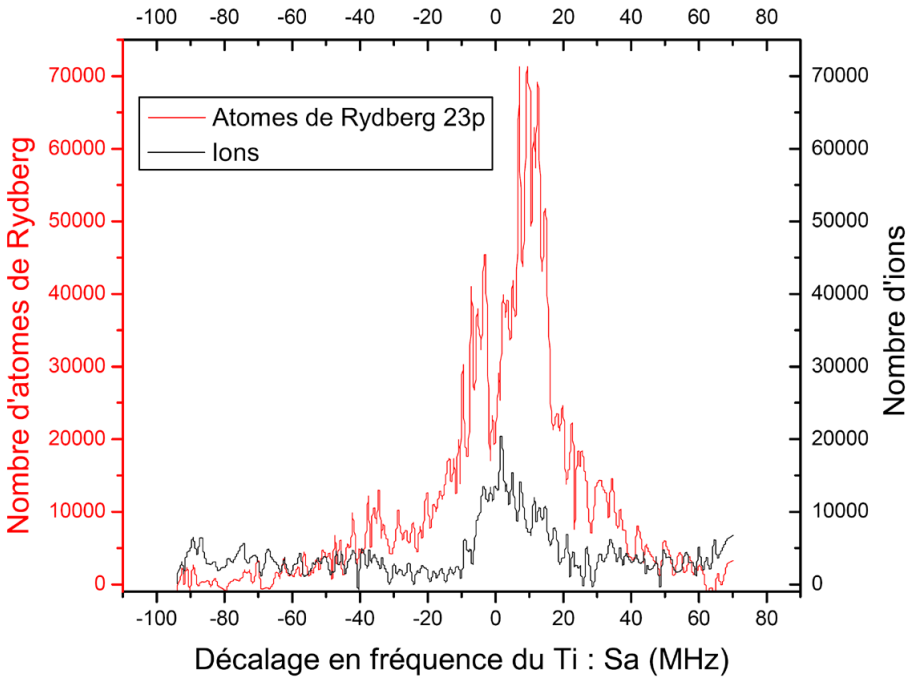

FIG. 4.32 – Spectroscopie de l'état $23p$ en champ nul, avec détection des atomes de Rydberg excités (échelle de gauche) et des ions créés (échelle de droite). La puissance du Ti:Sa est de l'ordre de 500 mW et la puissance du laser pulsé est ajustée de façon à ne produire aucun photoion. Le couplage entre l'état de Rydberg et l'état $7s$ est assez important pour voir apparaître un trou de dépompage dans le profil d'excitation. Le signal ionique détecté présente un comportement très intéressant puisqu'il est produit de façon résonante et qu'il présente son maximum lorsque le nombre d'atomes de Rydberg excités est le plus élevé (au niveau du trou de dépompage). Ces ions semblent provenir de collisions entre les atomes de Rydberg en interaction et seraient les précurseurs de la formation d'un plasma. Ce phénomène a également été observé et étudié en détail par [Li et al., 2005].

– Dans l'expérience de P. Gould [Tong et al., 2004], les atomes d'un piège magnéto-optique de ^{85}Rb sont excités par un laser Ultra-Violet de l'état fondamental $5s$ vers un état de Rydberg $np_{3/2}$ avec $n = 30 - 80$. La transition est réalisée en doublant la fréquence en sortie d'un laser continu puis en l'amplifiant par un laser pulsé. Ils obtiennent ainsi des longueurs d'onde de l'ordre de 297 nm, et une largeur spectrale d'environ 100 MHz (durée d'impulsion de 8,6 ns). La dépendance du signal d'atomes de Rydberg en fonction de la puissance du laser UV est représentée sur la Fig. 4.33, pour $n = 30$, 70 et 80. Le signal correspond plus précisément à la fraction des atomes du MOT excitée. On peut voir sur cette figure une suppression importante du nombre d'atomes de Rydberg excités pour $n = 70$ et $n = 80$ comparé au cas $n = 30$ où les atomes, de faible dimension, sont considérés comme isolés. Le blocage de l'excitation est plus important pour $n = 80$ puisque les interactions Van der Waals sont dans ce cas, elles aussi, plus fortes. Dans cette expérience, l'équipe dit avoir vérifié que cette suppression d'excitation ne venait pas d'un effet Stark induit pas des charges crées lors de l'excitation par le laser pulsé, comme c'est le cas dans notre expérience. Nous reviendrons sur ce point important à la fin de la description des expériences.

– Dans l'expérience effectuée en Allemagne [Singer et al., 2004], la source d'atomes froids est également issue d'un MOT mais cette fois de ^{87}Rb. Notons que cette différence ne change rien à la physique mise en jeu dans ce genre d'expériences. L'excitation à partir de l'état

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

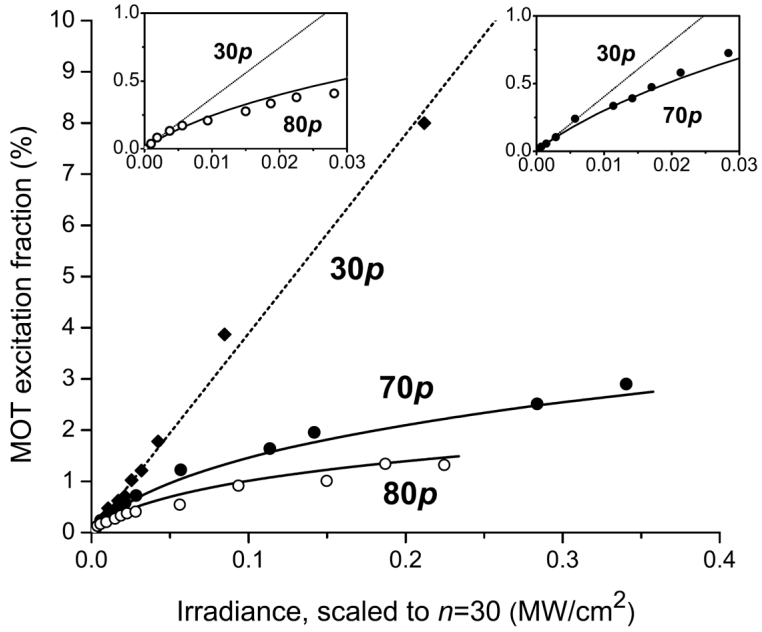

FIG. 4.33 – Comparaison de l'excitation de l'état $30p$ (sans phénomène de blocage d'excitation) avec celle des états $70p$ et $80p$ (avec phénomène de blocage d'excitation). L'intensité du laser d'excitation est divisée par un facteur $(n^*/30^*)^3$ pour tenir compte de la dépendance en n de la probabilité de transition (lorsque n augmente, la probabilité de transition diminue). La figure est extraite de [Tong et al., 2004].

$5p_{3/2}$ vers les états de Rydberg (ns, nd et même np[7]), ne se fait pas en utilisant un laser pulsé, mais avec une diode laser dont la puissance est amplifiée à 1 W puis doublée en fréquence à 479 nm. La largeur spectrale de ce laser est inférieure à 2 MHz. L'excitation se déroule pendant une durée assez longue d'environ 20 μs. Pendant cette période, les atomes de Rydberg s'accumulent dans le volume d'excitation. Ils ont obtenu la même suppression d'excitation que celle précédemment vue par l'équipe de P. Gould, mais l'utilisation d'un laser continu fin spectralement et balayable en fréquence leur a permis d'observer également un élargissement spectral des raies d'excitation (voir Fig. 4.34) qui témoignait des interactions à longue distance entre les atomes de Rydberg. Une discussion est donnée dans la référence [Singer et al., 2004] quant à la production d'ions. La création d'ions est supposée négligeable aussi bien en considérant l'ionisation des atomes de Rydberg par le rayonnement du corps noir, qu'en tenant compte des collisions entre atomes de Rydberg froids et atomes de Rydberg chauds.

– A partir d'un piège magnéto-optique de ^{85}Rb, l'équipe de J. Martin excite optiquement les atomes vers l'état de Rydberg $45d_{5/2}$ en utilisant un laser pulsé. Une première impulsion micro-onde transfère ensuite une partie de ces atomes de Rydberg vers l'état $46p_{3/2}$. La spectroscopie est réalisée par une seconde impulsion micro-onde qui agit sur les atomes restés dans l'état $45d_{5/2}$ en les excitant vers l'état $46d_{5/2}$. Ils ont montré que la largeur de raie de cette transition à deux photons dépend du nombre d'atomes dans l'état $46p_{3/2}$, et que cette dépendance provient de l'interaction dipôle-dipôle entre atomes dans les deux états $45d_{5/2}$ et $46p_{3/2}$ (voir Fig. 4.35). Au cours de leur expérience, cette équipe a détecté un signal d'ions

[7] La présence d'un champ électrique résiduel permet la transition dipolaire électrique, interdite en champ nul, vers un état np.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

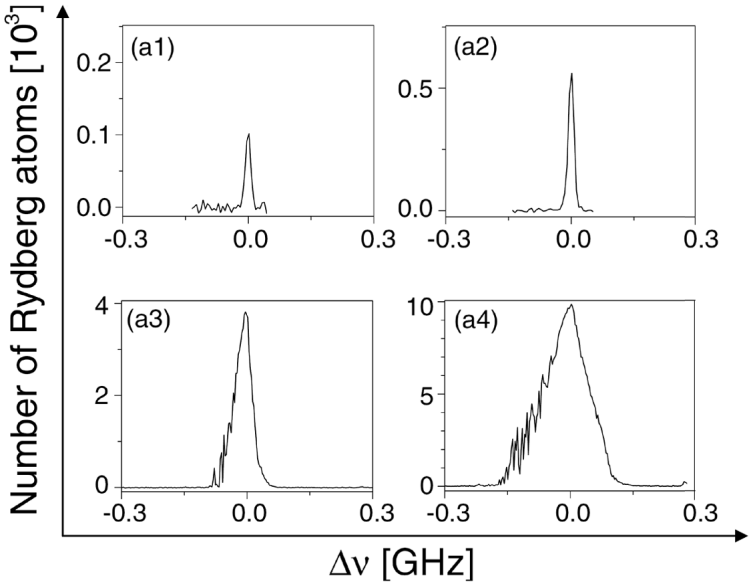

FIG. 4.34 – Spectres de l'état $82s$ pour plusieurs intensités du laser d'excitation (6 W/cm^2 pour (a1) et (a2), 500 W/cm^2 pour (a3) et (a4)) et différentes densités initiales d'atomes froids avant l'excitation ((a1) $1,6 \times 10^9$ cm^{-3}, (a2) 1×10^{10} cm^{-3}, (a3) $1,5 \times 10^9$ cm^{-3}, (a4) 1×10^{10} cm^{-3}). La figure est extraite de [Singer et al., 2004].

d'après eux trop faible pour expliquer les élargissements observés.

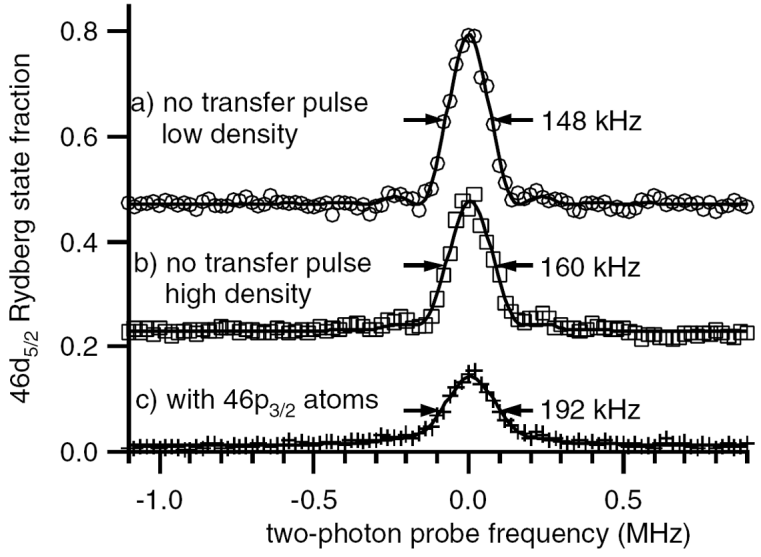

FIG. 4.35 – Observation de la transition micro-onde à deux photons $45d_{5/2} - 46d_{5/2}$ avec a) tous les atomes de Rydberg initialement dans l'état $45d_{5/2}$ avec une densité de 2×10^6 cm^{-3}, b) tous les atomes de Rydberg initialement dans l'état $45d_{5/2}$ avec une densité de 10^7 cm^{-3}, et c) une moitié des atomes de Rydberg initialement dans l'état $45d_{5/2}$ et l'autre moitié dans l'état $46p_{3/2}$ avec un densité totale de 10^7 cm^{-3}. La figure est extraite de [Afrousheh et al., 2004].

- L'expérience réalisée par le groupe de T. F. Gallagher a également pour point de départ

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

un MOT de ^{85}Rb. Les atomes du piège sont excités du niveau $5p_{3/2}$ vers un état de Rydberg ns ou nd. La transition s'effectue en utilisant un laser Ti :Sa continu, amplifié par un laser pulsé et doublé en fréquence à 480 nm. L'impulsion laser a une durée de 10 ns et une largeur spectrale d'environ 200 MHz. Ils ont observé la formation d'un plasma et le transfert de population vers des états couplés par interaction dipôle-dipôle. Ces processus ont été étudiés en fonction de la densité atomique et du temps d'interaction entre les atomes de Rydberg. Ils ont montré que lorsque les atomes sont excités vers des états de Rydberg ns, la formation d'un plasma et le transfert de population est bien moins efficace que lorsqu'un état nd est initialement excité. Cela vient du fait qu'une paire d'atomes dans l'état moléculaire $nsns$ est bien plus faiblement couplée par interaction dipôle-dipôle aux autres potentiels moléculaires. Le paramètre Δ qui décrit, à distance internucléaire infinie, l'écart en énergie entre les potentiels moléculaires couplés, (voir Sec. 4.5.1) est d'environ 2,8 GHz entre l'état moléculaire $48s48s$ et l'état moléculaire qui lui est le plus fortement couplé $47p48p$. L'état moléculaire $46d46d$ est, quant à lui, séparé à l'infini d'une quantité $\Delta = 187$ MHz par rapport à l'état moléculaire $48p44f$. L'interaction dipôle-dipôle variant en $1/\Delta$, la force d'interaction agissant entre deux atomes de Rydberg dans un état $48s48s$ va être plus d'un ordre de grandeur plus faible que pour une paire d'atomes dans l'état $46d46d$. Ce sont donc les forces associées à ces potentiels d'interaction dipôle-dipôle [Fioretti et al., 1999b], plus précisément le potentiel attractif, qui vont induire les collisions entre atomes de Rydberg froids et initier la formation d'un plasma. Le rôle de la partie attractive du potentiel d'interaction dans le processus d'ionisation des atomes de Rydberg est également mis en évidence de façon très claire dans cette expérience. Après avoir excité les atomes vers l'état $39s$, une impulsion de rayonnement micro-onde permet d'exciter l'état $39p$ à partir de l'état $39s$ (voir Fig. 4.36a)). Comme on peut le voir sur la Fig. 4.36b, le signal d'ionisation apparaît uniquement du côté rouge de la transition $39s - 39p_{3/2}$ de fréquence 68,378 GHz. Le signal d'ions n'est donc observé qu'en induisant des transitions vers le potentiel dipôle-dipôle attractif.

Nous allons faire le bilan des expériences décrites en tenant compte des travaux que l'on a effectués concernant le rôle des ions dans ce genre d'études. Les deux premières expériences [Tong et al., 2004, Singer et al., 2004] n'ont pu analyser la contribution des collisions froides entre atomes de Rydberg dans les observations de blocage d'excitation et d'élargissement des raies d'excitation. On peut néanmoins fournir une interprétation légèrement différente de celles présentées, basée également sur les interactions longue distance entre atomes de Rydberg. Premièrement les interactions mises en jeu ne semblent pas être uniquement de nature purement Van der Waals (en C_6/R^6), mais également dipôle-dipôle résonant (en C_3/R^3) comme dans l'expérience de T. F. Gallagher. Deuxièmement, l'observation du blocage d'excitation et de l'élargissement des raies pourrait être un effet indirect de l'interaction dipôle-dipôle entre les atomes de Rydberg. En effet, des ions produits lors des collisions dipolaires entre atomes de Rydberg froids pourraient être responsables de tels phénomènes. Ce résultat important confirmerait le rôle des forces dipolaires dans les collisions ionisantes entre atomes de Rydberg comme il a été observé dans l'équipe de T. Gallagher [Li et al., 2005].

Nouvelle orientation : Transfert résonant d'excitation

La mise en évidence d'effets d'interactions entre atomes de Rydberg excités en présence d'un champ électrique demeure très difficile [8] avec notre schéma d'excitation. Les densités

[8] Nous avons tout de même observé l'apparition d'ions résultant de collisions induites par l'interaction dipôle-dipôle entre atomes de Rydberg.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

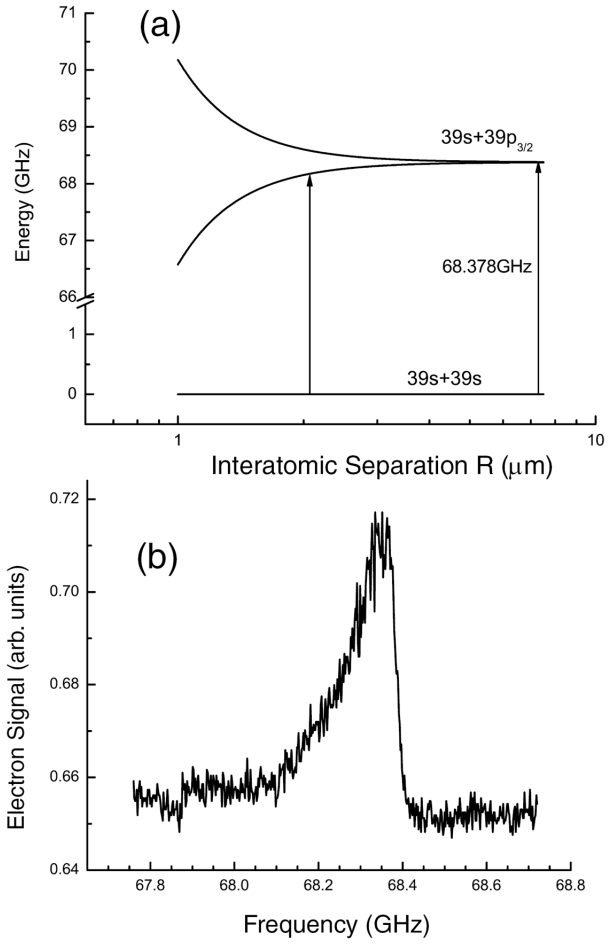

FIG. 4.36 – (a) Niveaux d'énergie pour la transition 39s39s–39s39p en fonction de la distance interatomique *R*. (b) Signal des ions créés par l'interaction des atomes de Rydberg. Le signal est observé seulement sur le côté rouge de la transition atomique à 69,378 GHZ ; c'est-à-dire que seules les transitions vers l'état moléculaire attractif de (a) sont observées. La figure est extraite de [Li et al., 2005].

atomiques mises en jeu nécessitent d'être très élevées et le moment dipolaire permanent, acquis en champ électrique, ne semble pas assez important. Nous nous sommes par conséquent attachés à étudier un autre phénomène résultant de l'interaction dipôle-dipôle résonante ($\Delta = 0$) entre atomes de Rydberg qui s'avère être bien plus probable et donc plus facile à étudier. Ce phénomène, appelé transfert résonant d'énergie, va être analysé à l'aide de la spectroscopie de dé-excitation, qui nous permettra, plus particulièrement, de caractériser la dynamique de ce processus d'interaction dipôle-dipôle et de résoudre spectroscopiquement le croisement évité résultant d'une telle interaction [Mudrich et al., 2005].

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

4.6 Dynamique de l'interaction dipolaire dans le processus de transfert résonant d'excitation

4.6.1 Introduction aux réactions de transfert résonant

Nous allons nous intéresser, dans cette partie, aux interactions dipôle-dipôle entre atomes de Rydberg froids en nous concentrant plus particulièrement sur le processus de transfert résonant d'excitation. Nous allons décrire, dans un premier temps, comment ce phénomène fut d'abord mis en avant dans le domaine de la photochimie, puis nous verrons comment il se manifeste plus particulièrement dans un gaz d'atomes de Rydberg.

Ce phénomène fut pour la première fois évoqué par Theodore Förster en 1959 [Förster, 1959, Porter, 1976] qui développa, dans le cadre de la photochimie, la théorie de transfert résonant d'énergie électronique d'une molécule excitée, "le donneur", vers une autre molécule, "l'accepteur". Le donneur, dans un état excité, va transférer de façon non radiative [9] et à travers l'interaction dipôle-dipôle, son énergie interne à l'accepteur (voir Fig. 4.37). Pour rendre le processus efficace, l'énergie de l'état du donneur doit correspondre à celle d'un état quantique de l'accepteur, d'où le terme de résonance. En excitant uniquement le donneur à l'aide d'une fréquence laser précise, le transfert résonant d'énergie est mis en évidence en détectant la fluorescence émise lors de la désexcitation de l'accepteur.

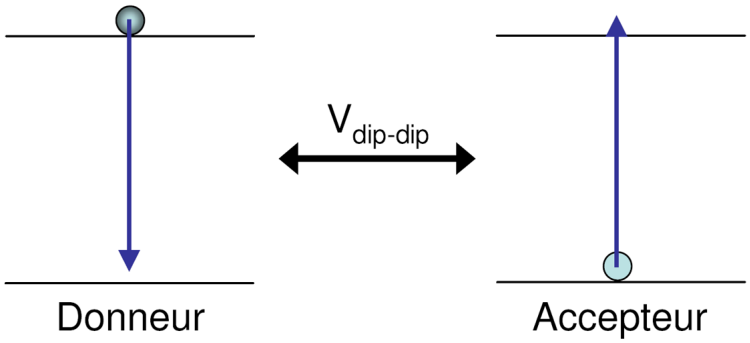

FIG. 4.37 – Représentation schématique du processus de transfert résonant d'énergie entre deux molécules couplées par interaction dipôle-dipôle ($V_{dip-dip}$). Chaque molécule est représentée par deux niveaux d'énergie à travers lesquels s'effectue le transfert d'excitation.

Dans les domaines proches de la photochimie, le transfert résonant d'excitation est souvent appelé "Förster Resonance Energy Transfert" (FRET) [10] ou parfois "Fluorescence Resonance Energy Transfert".

Th. Forster s'est intéressé à ce mécanisme car il joue un rôle crucial dans la réaction de photosynthèse [van Grondell et al., 1994, Hu and Schulten, 1997]. Cette réaction permet à certains organismes de transformer l'énergie du rayonnement solaire en énergie chimique. L'énergie lumineuse est collectée par un réseau complexe de molécules (chlorophylles, caroténoïdes, ...) qui vont transmettre, à travers une succession de réactions de transfert résonant, cette énergie aux centres de réaction photochimique de l'organisme. Ces centres de

[9] On peut comprendre le processus comme un échange de photons virtuels entre les deux molécules.

[10] Dans le domaine de la physique atomique, il s'est glissé un erreur dans l'orthographe du nom Förster, qui se répercute au fil des nombreuses publications en désignant le phénomène de tranfert d'énergie sous l'appellation "Föster process".

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

réaction vont permettre la conversion de cette énergie sous forme d'ATP, nécessaire à toutes les réactions du métabolisme cellulaire.
Le transfert résonant d'énergie est aussi utilisé pour évaluer les faibles distances entre les molécules en interaction. L'efficacité du processus dépendant fortement de la distance intermoléculaire, la mesure de la fluorescence émise par l'accepteur est un moyen couramment utilisé en biologie pour l'évaluer [Sekar and Periasamy, 2003, Hettich et al., 2002].

Dans le domaine de la physique, les collisions résonantes, collisions au cours desquelles une particule transfère de l'énergie interne à la deuxième particule en collision, ont été sujettes à de nombreuses études théoriques et expérimentales depuis plus d'une vingtaine d'années. Comme on l'a déjà évoqué, la section efficace du processus de transfert d'énergie est considérablement accrue lorsque la collision a lieu à résonance. Cette caractéristique fait des collisions résonantes une réaction très difficile à étudier de façon systématique, puisque l'on doit trouver des quasi-coïncidences entre les niveaux d'énergie des partenaires en collision. Une manifestation de collisions résonantes où de telles coïncidences existent se retrouve dans de nombreuses applications laser, comme par exemple dans les lasers He-Ne et CO_2 [11].

Nous allons voir maintenant comment se manifeste le phénomène de transfert résonant d'énergie au sein d'un ensemble d'atomes de Rydberg [Gallagher, 1992], qui est un système privilégié pour mener une étude détaillée de ce processus d'interaction dipôle-dipôle. Ce thème a déjà été plusieurs fois abordé dans les thèses de mes prédécesseurs, et l'on pourra donc se référer à leur travaux [Nosbaum, 1996, Mourachko, 1999, Comparat, 1999] pour plus de précisions.

Collisions résonantes entre atomes de Rydberg

Les atomes de Rydberg constituent un système idéal pour étudier le processus de transfert résonant d'énergie, et ce pour plusieurs raisons. Tout d'abord, les atomes de Rydberg présentent des sections efficaces de collision très élevées du fait de leur taille géométrique importante (rayon atomique $\simeq n^2$). Deuxièmement, ils offrent une haute densité d'états, ce qui facilite l'obtention de coïncidences en énergie. La dernière chose qui montre à quel point les atomes de Rydberg sont adaptés pour étudier ce processus est qu'ils possèdent un fort moment dipolaire électrique. A l'aide de champs électriques relativement faibles, on peut déplacer par effet Stark leurs niveaux d'énergie de façon à être dans des conditions parfaites de résonance.

Une des premières expériences de collisions résonantes entre atomes de Rydberg fut réalisée en utilisant des atomes de Na, excités en présence d'un champ électrique homogène [Safinya et al., 1981, Gallagher et al., 1982]. Dans cette expérience, l'état ns, initialement excité, se situe presque à mi-chemin des états np et $(n+1)p$ dans le diagramme énergétique. En ajustant le champ électrique, la réaction

$$\mathrm{Na}(ns) + \mathrm{Na}(ns) \longrightarrow \mathrm{Na}((n-1)p) + \mathrm{Na}(np)$$

devient résonante. Expérimentalement, les atomes sont issus d'un jet thermique, croisant à 90° deux lasers pulsés qui excitent l'état de Rydberg ns. Après un temps d'interaction

[11] Le fonctionnement du laser He-Ne repose sur le transfert collisionel résonant d'énergie de l'atome d'He vers l'atome de Ne. Le fonctionnement du laser CO_2 repose, quant à lui, sur le transfert d'énergie par collisions résonantes des molécules N_2 aux molécules de CO_2.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

de l'ordre de la microseconde, on détecte, à l'aide d'une impulsion de champ électrique, les atomes np produits par collisions. Les résultats obtenus dans cette expérience montrent des sections efficaces de collision près de 1000 fois supérieures aux sections géométriques, qui sont la conséquence directe des moments dipolaires importants des atomes de Rydberg, permettant une interaction résonante dipôle-dipôle à longue portée très efficace.

Dans ce genre d'expériences où les atomes sont à des températures de l'ordre de 300 K, le phénomène de transfert résonant d'énergie est décrit uniquement par des collisions binaires. Nous allons voir qu'à des températures de l'ordre de la centaine de microkelvin, température typique des atomes issus de notre piège magnéto-optique, la description du phénomène est qualitativement différente.

Transfert résonant d'énergie dans un gaz de Rydberg gelé

Les premières expériences de transfert résonant d'énergie, réalisées à partir d'atomes de Rydberg froids issus de piège magnéto-optique de Cs et Rb, ont montré un comportement bien plus proche d'un solide désordonné que d'un gaz classique [Anderson et al., 1998, Mourachko et al., 1998, Frasier et al., 1999]. Le processus de transfert résonant d'énergie entre atomes froids n'est plus uniquement une réaction entre deux atomes mais un phénomène décrit par un ensemble de N corps en interaction.

Dans nos conditions expérimentales, très proches de celles décrites dans la référence [Mourachko et al., 1998], le nuage atomique contient $N_{ryd} \sim 10^8 - 10^{10}$ atomes de Rydberg, à une température T de l'ordre de 100 μK, correspondant à une vitesse moyenne $v = \sqrt{\frac{8k_BT}{\pi M_{at}}} \sim 10$ cm/s ($\simeq$ 4,6 u.a.). Ainsi, pendant des durées d'expérience $\tau_{exp} \sim 0,1 - 3$ μs, le déplacement $\Delta R = v\tau_{exp} \sim 10 - 300$ nm des atomes est bien plus petit que la distance moyenne $\bar{R} = (3/4\pi N_{ryd})^{1/3} \sim 5 - 20$ μm entre deux atomes de Rydberg voisins. L'ordre de grandeur du déplacement des atomes correspond à la taille de l'atome de Rydberg $R_0 \simeq 4n^2a_0 \sim 110$ nm pour $n = 23$. De plus, la longueur d'onde de de Broglie ($\lambda_{dB} = h/M_{at}v$), valant aux alentours de 30 nm, le mouvement des atomes peut être considéré comme classique.
Toutes ces estimations montrent que l'on peut ignorer *a priori* complètement le mouvement des atomes et considérer l'échantillon atomique comme un *gaz de Rydberg gelé* [12].

Pour mieux saisir la différence qu'implique l'utilisation d'un nuage d'atomes froids dans l'étude du transfert résonant d'énergie, nous allons considérer la réaction suivante :

$$\mathrm{Cs}(np) + \mathrm{Cs}(np) \longrightarrow \mathrm{Cs}(ns) + \mathrm{Cs}((n+1)s) \tag{4.51}$$

C'est la réaction de tranfert résonant qui a été utilisée dans l'expérience [Mourachko et al., 1998] et que nous étudierons également dans la suite du manuscrit. Elle consiste à exciter initialement des atomes froids vers des états de Rydberg np, puis, après un temps d'interaction de l'ordre de la microseconde, à détecter les atomes de Rydberg créés par interaction dipôle-dipôle dans les états ns et $(n+1)s$.

Si l'on se place dans le cas d'une expérience réalisée en jet thermique, et en ne considérant donc qu'un processus d'interaction binaire, la section efficace σ de la réaction 4.51 est donnée

[12] On ne tient pas compte ici du mouvement que pourrait induire l'interaction dipôle-dipôle entre deux atomes de Rydberg.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

par :

$$\sigma = \frac{\mu_1 \mu_2}{v} \tag{4.52}$$

où $\mu_1 = \langle np| r |ns\rangle$ *et* $\mu_2 = \langle np| r |(n+1)s\rangle$ *sont respectivement les moments dipolaires des transitions* $np \rightarrow ns$ *et* $np \rightarrow (n+1)s$.

Le temps caractéristique τ_{coll} d'une collision est l'inverse de la largeur Δv de la résonance collisionnelle, de profil lorentzien. Son expression est donnée par :

$$\tau_{coll} = \frac{1}{\Delta v} = \frac{\sqrt{\mu_1 \mu_2}}{v^{3/2}} = \frac{\sqrt{\sigma}}{v} \tag{4.53}$$

On voit que la largeur de la résonance collisionnelle dépend de la vitesse des atomes, et non de leur densité.
A température ambiante ($T = 300$ K) et à partir de la valeur des moments dipolaires $\mu_1 \simeq \mu_2 \simeq 200$ (u. a.), on obtient une section efficace $\sigma \simeq 10^{-8}$ cm^2 et une largeur de la résonance $\Delta v \simeq 200$ MHz.

Par contre, si nous appliquons maintenant les formules (4.52) et (4.53) au processus de transfert résonant entre atomes froids de césium à $T = 300$ μK, nous trouvons $\sigma \simeq 10^{-5}$ cm^2 et $\Delta v \simeq 7$ kHz.
Pour les densités d'atomes de Rydberg que l'on obtient dans nos expériences, la distance moyenne entre deux atomes peut être jusqu'à un ordre de grandeur plus petite que le paramètre d'impact $\sqrt{\sigma}$. Ceci nous amène à penser qu'un si grand paramètre d'impact doit favoriser l'apparition des effets à plusieurs atomes. D'autre part, les largeurs de résonance observées expérimentalement, supérieures à 30 MHz [Mourachko et al., 1998], sont bien plus grandes que celles prédites dans un modèle simple d'interaction à deux atomes (Eq. (4.53)) ; ce fait confirmerait l'existence d'effet à N corps dans le transfert résonant d'énergie. Il a été également montré que la largeur des résonances augmente avec la densité atomique, ce qui n'est pas le cas avec les collisions résonantes binaires d'un jet thermique. Cette observation réaffirme le caractère non collisionnel du transfert résonant d'énergie dans un gaz d'atomes de Rydberg froids. Pour plus de rigueur, en tenant compte du caractère gelé du gaz de Rydberg et en considérant une interaction à deux atomes, la largeur de résonance est donnée par :

$$V = \frac{\mu_1 \mu_2}{\bar{R}^3} \tag{4.54}$$

Dans nos conditions expérimentales, $V \simeq 5 - 300$ kHz, ce qui reste près de trois ordres de grandeur inférieur aux largeurs expérimentales observées [Mourachko et al., 1998].

En résumé, le transfert résonant d'énergie dans un gaz thermique[13] d'atomes de Rydberg est complètement déterminé par les collisions binaires entre les atomes en mouvement. Par contre, les atomes issus d'un piège magnéto-optique sont essentiellement immobiles aux échelles temporelles de l'expérience, et les collisions sont alors improbables. Ce sont plutôt les interactions statiques entre les atomes de Rydberg qui sont responsables du transfert de l'énergie. De plus, ce phénomène est la conséquence d'interaction à plusieurs atomes, même si les paires très proches jouent un rôle essentiel dans le processsus.
Nous allons maintenant développer plus en détail cette interprétation, où les effets entre deux atomes proches en interaction sont fortement perturbés par la présence des autres atomes.

[13] Même pour des températures aussi basses qu'1 K, le transfert résonant d'énergie se produit par collisions binaires entre atomes de Rydberg [Stoneman et al., 1987].

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Effet à N corps : Diffusion d'excitation

Les largeurs de résonance du processus de transfert d'énergie, observées expérimentalement, sont bien plus élevées que celles prédites par une interaction simple à deux atomes. Même si un petit nombre d'atomes, environ 1 % de l'échantillon, sont assez proches pour expliquer de telles largeurs, ils ne sont pas assez nombreux pour reproduire la quantité de population transférée, qui peut atteindre dans nos expériences, jusqu'à 40 % des atomes de Rydberg initialement excités. Pour comprendre cet effet, il est nécessaire de faire intervenir non plus une seule réaction de transfert mais trois :

$$np + np \longleftrightarrow ns + (n+1)s \tag{4.55}$$

$$ns + np \longleftrightarrow np + ns \tag{4.56}$$

$$(n+1)s + np \longleftrightarrow np + (n+1)s \tag{4.57}$$

Nous avons vu que la réaction (4.55), seule, ne permet pas de reproduire théoriquement les formes des résonances observées expérimentalement. On considère donc deux étapes d'évolution du système. La première est un problème à deux corps, décrit par la réaction (4.55), dans laquelle uniquement les paires d'atomes proches ($R \ll \bar{R}$) vont contribuer significativement au signal de transfert et ce pour un champ électrique bien précis $\mathcal{E}_{res}$. Ces paires sont considérées comme les centres actifs de la réaction (4.55). La deuxième étape est l'évacuation, par les réactions (4.56) et (4.57), des produits de réactions (états ns et $(n+1)s$) créés dans un centre actif. Résonantes pour n'importe quelle valeur de champ électrique, ces réactions (4.56) et (4.57) vont en effet permettre aux états ns et $(n+1)s$ de diffuser à travers l'ensemble des autres atomes de Rydberg, dans l'état np, à travers des processus d'échange d'excitation, comme schématisé sur la Fig. 4.38. Ce processus de diffusion permet de réamorcer le centre actif et d'obtenir un deuxième couple d'état ns, $(n+1)s$ et ainsi de suite. Une paire d'atomes proches pourra, de cette manière, créer plusieurs paires d'états ns et $(n+1)s$; c'est ainsi que l'on peut atteindre un transfert de population aussi important que 40 %.

Nous allons voir maintenant comment cette migration, gouvernée par les réactions (4.56) et (4.57), explique des largeurs de résonance exceptionnellement élevées. Nous utilisons à cette fin un modèle très simplifié à trois atomes, inspiré des références [Mourachko et al., 2004, Anderson et al., 2002].
Nous choisissons une configuration dans laquelle trois atomes A, B, C, sont dans l'état initial np avec une distance interatomique A-C supérieure à la distance interatomique A-B ($R_{AC} > R_{BC}$) (voir Fig. 4.39a)). Cette différence entre R_{AB} et R_{AC} reflète la distribution aléatoire des atomes au sein de l'échantillon. La fonction d'onde du système est donnée par le produit ordonné des fonctions d'onde individuelles atomiques sur chacun des trois sites. L'état initial s'écrit $\psi_i = \psi^A_{np}\psi^B_{np}\psi^C_{np}$ et les quatre états finals possibles sont :

$$\psi_{f1} = \psi^A_{ns}\ \psi^B_{(n+1)s}\ \psi^C_{np} \tag{4.58}$$

$$\psi_{f1'} = \psi^A_{(n+1)s}\ \psi^B_{ns}\ \psi^C_{np} \tag{4.59}$$

$$\psi_{f2} = \psi^A_{ns}\ \psi^B_{np}\ \psi^C_{(n+1)s} \tag{4.60}$$

$$\psi_{f2'} = \psi^A_{(n+1)s}\ \psi^B_{np}\ \psi^C_{ns} \tag{4.61}$$

Les quatre états finals ne possédant plus qu'un atome dans l'état np et non plus trois, ils sont donc moins déplacés par effet Stark que l'état initial ψ_i. En ne considérant, dans un

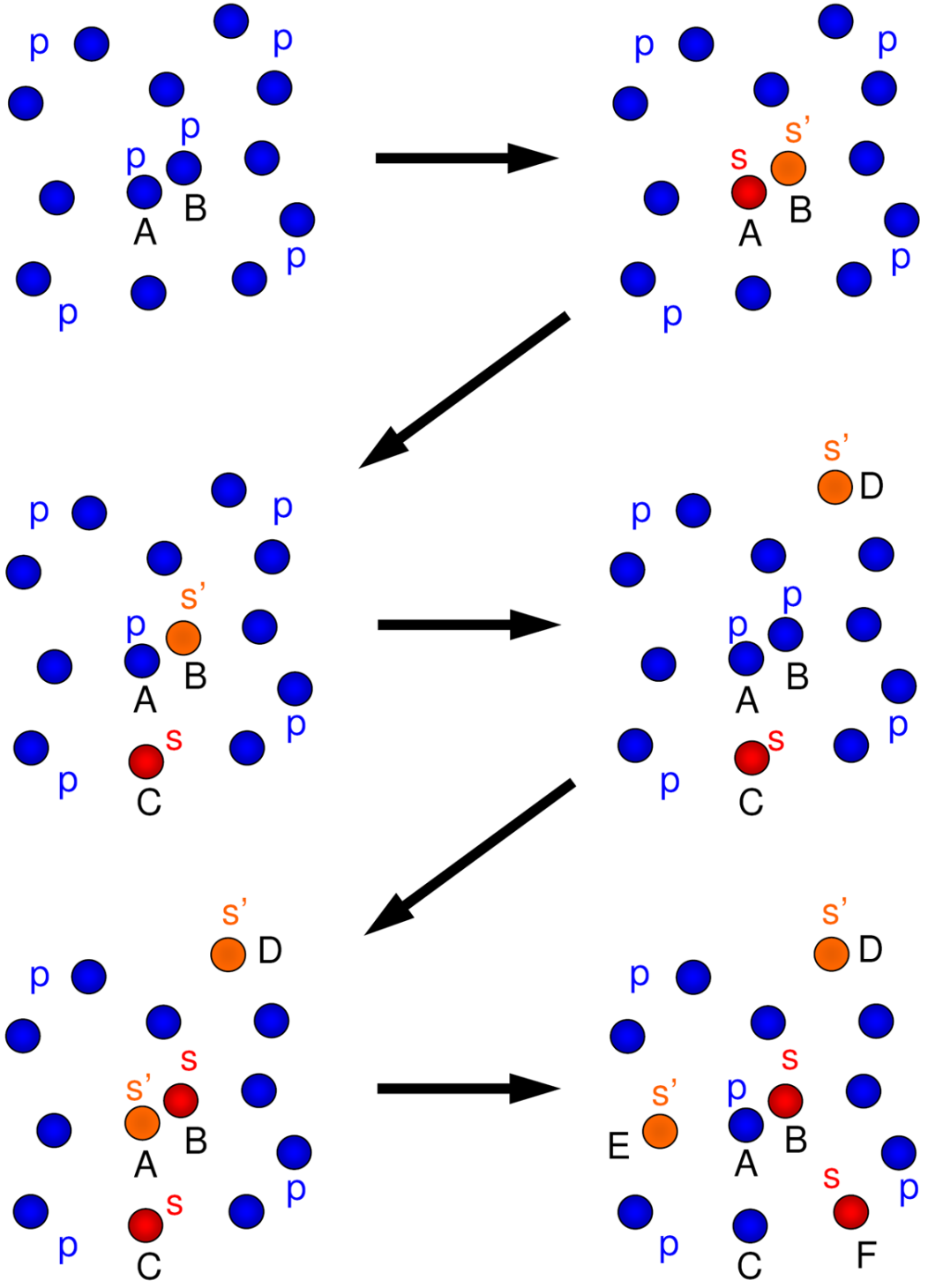

FIG. 4.38 – Représentation schématique du mécanisme d'échange d'excitation dans un ensemble d'atomes de Rydberg gelés. Les excitations $|ns\rangle$, $|(n+1)s\rangle$ (resp. s et s') créées par un centre actif (une paire d'atomes "très proches" A-B) sont évacuées par des processus d'échange résonant d'énergie avec les atomes de son environnement. Lorsque deux excitations s et s' quittent le centre actif, la création d'un nouveau couple d'excitation se produit à nouveau.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

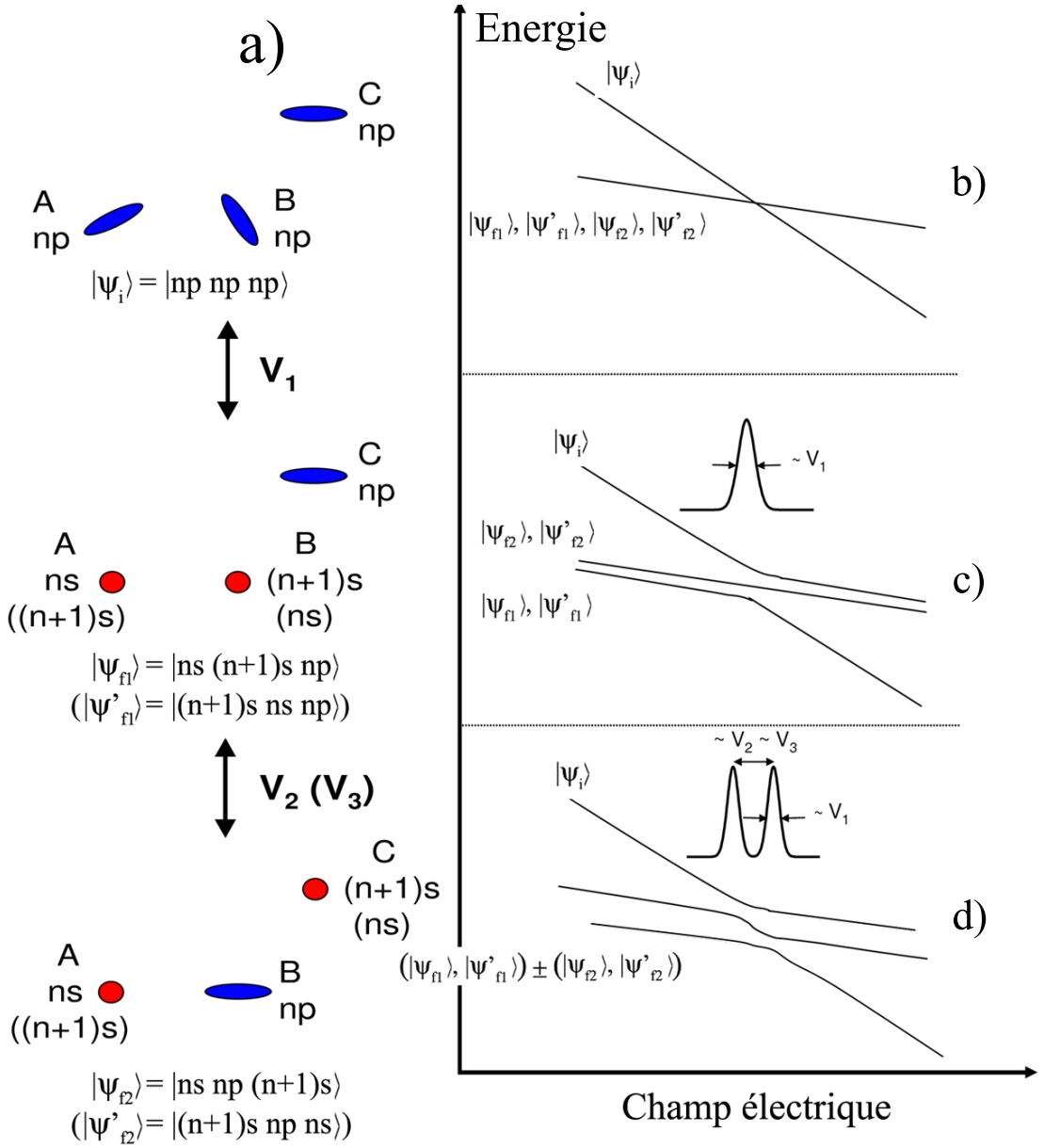

FIG. 4.39 – a) Représentation spatiale des trois atomes initialement dans l'état np ($|\psi_i\rangle = |np\ np\ np\rangle$ qui correspond à $|np^A\ np^B\ np^C\rangle$). Le couplage V_1 connecte les atomes vers deux états finals possibles, $\psi_{f1} = |ns\ (n{+}1)s\ np\rangle$ et $\psi_{f1'} = |(n{+}1)s\ ns\ np\rangle$, connectés eux-mêmes respectivement aux états $\psi_{f2} = |ns\ np\ (n{+}1)s\rangle$ et $\psi_{f2'} = |(n{+}1)s\ np\ ns\rangle$, par les couplages V_2 et V_3. (b-d) Energie des états propres du système à trois atomes en fonction du champ électrique, proche de résonance. b) Aucun couplage au sein du système ; les états finals sont dégénérés et croisent l'état initial ψ_i. Il n'y a donc pas de transfert résonant d'énergie. c) Les couplages dipolaires sont présents mais on néglige les réactions de migration ($V_1 \gg V_2 \simeq V_3$). Les états (ψ_{f1}, $\psi_{f1'}$) sont très faiblement couplés aux états ψ_{f2}, $\psi_{f2'}$) et, à résonance, l'état initial ψ_i est fortement couplé aux états (ψ_{f1}, $\psi_{f1'}$). Le transfert résonant d'énergie a donc une largeur $\sim V_1$. d) Les réactions de migration ne sont plus négligées ($V_1 \simeq V_2 \simeq V_3$). Les états finals sont désormais tous couplés entre eux ce qui donne naissance à deux croisements évités et donc l'observation d'une résonance plus large que si les réactions de migration étaient négligées.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

premier temps, aucun couplage dipôle-dipôle, tous les états finals sont dégénérés et croisent l'état initial pour le champ électrique résonant $\mathcal{E}_{res}$ 4.39b). Bien sûr, lorsqu'aucun couplage n'est considéré, l'état initial ne peut faire de transition vers un des états finals, et donc le transfert résonant d'énergie n'est pas observable.

En réalité, les couplages $V_1 = \mu_{np-ns}\,\mu_{np-(n+1)s}/R^3_{AB}$, $V_2 = \mu^2_{np-ns}/R^3_{BC}$, $V_3 = \mu^2_{np-(n+1)s}/R^3_{BC}$ des réactions (4.55), (4.56) et (4.57), sont présents et la Fig. 4.39b) ne reflète pas ce qui se passe réellement. Dans le cas où $V_1 \gg V_2 \simeq V_3$, le phénomène de migration d'excitation est négligé par rapport à la réaction (4.55). Le diagramme énergétique est alors donné par la Fig. 4.39 c). Les faibles couplages V_2 et V_3 lèvent partiellement la dégénérescence des états finals. Loin de résonance, les états ψ_{f2} et $\psi_{f2'}$ sont séparés du groupe d'états dégénérés, ψ_{f1} et $\psi_{f1'}$, de $\sim V_2 \sim V_3$.
Pour $\mathcal{E} = \mathcal{E}_{res}$, l'état ψ_i est fortement couplé aux états ψ_{f1} et $\psi_{f1'}$, par l'interaction dipôle-dipôle V_1, ce qui donne naissance à un croisement évité entre ces états. Les états propres de ce croisement évité et l'intervalle d'énergie entre eux se calcule en diagonalisant l'hamiltonien d'interaction dans la base formée par les trois états ψ_i, ψ_{f1} et $\psi_{f1'}$:

$$H_1 = \begin{pmatrix} 0 & V_1 & V_1 \\ V_1 & 0 & 0 \\ V_1 & 0 & 0 \end{pmatrix} \tag{4.62}$$

Les états propres de ce croisement évité sont

$$\Psi_\pm = \frac{1}{\sqrt{2}}\left[\psi_i \pm \frac{1}{\sqrt{2}}(\psi_{f1} + \psi_{f1'})\right], \tag{4.63}$$

associés aux valeurs propres $\lambda_\pm = \pm\sqrt{2}V_1$.
L'état initialement excité par les lasers, ψ_i est donc une superposition cohérente des états propres Ψ_+ et Ψ_- :

$$\psi(t=0) = \psi_i = \frac{1}{\sqrt{2}}(\Psi_+ + \Psi_-) \tag{4.64}$$

La fonction d'onde du système évolue selon :

$$\psi(t) = \frac{1}{\sqrt{2}}(\Psi_+\, e^{i\sqrt{2}\tilde{V}_1 t} + \Psi_-\, e^{-i\sqrt{2}\tilde{V}_1 t}) \tag{4.65}$$

$$\psi(t) = \psi_i \cos(\sqrt{2}\tilde{V}_1 t) + \frac{i}{\sqrt{2}}(\psi_{f1} + \psi_{f1'})\sin(\sqrt{2}\tilde{V}_1 t) \tag{4.66}$$

où $\tilde{V}_1 = V_1/\hbar$.

La probabilité de trouver le système dans un des deux états finals ψ_{f1} et $\psi_{f1'}$ est alors :

$$|\langle\psi_f|\psi(t)|^2 = \frac{1}{4}[1 - \cos(2\sqrt{2}\tilde{V}_1 t)] \tag{4.67}$$

Dans l'expérience, une réaction de transfert résonant est marquée par l'apparition d'atomes dans l'état s, que nous cherchons à détecter. Le signal provient donc des deux états finals ψ_{f1} et $\psi_{f1'}$. La probabilité de détecter un état s est donnée par la somme des probabilités d'être dans chacun de ces états, c'est-à-dire $\frac{1}{2}[1 - \cos(2\sqrt{2}\tilde{V}_1 t)]$.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Proche de la résonance, après l'excitation laser de l'état ψ_i, le système oscille donc entre l'état initial et les états finals à la pulsation $2\sqrt{2}\tilde{V}_1$. La largeur du croisement évité est, quant à elle, égale à $2\sqrt{2}V_1$.

Si maintenant on ne néglige plus les réactions de migration (4.56) et (4.57), c'est-à-dire en considérant $V_1 \simeq V_2 \simeq V_3$, alors le diagramme énergétique de la Fig. 4.39c) n'est plus valable. Loin de la résonance, c'est-à-dire pour des champs électriques éloignés de $\mathcal{E}_{res}$, les quatre états finals ψ_{f1}, $\psi_{f1'}$, ψ_{f2}, $\psi_{f2'}$ sont couplés par l'hamiltonien :

$$H_{2-3} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & V_2 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & V_3 \\ V_2 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & V_3 & 0 & 0 \end{pmatrix} \tag{4.68}$$

Les paires états (ψ_{f1}, $\psi_{f1'}$) et (ψ_{f2}, $\psi_{f2'}$) vont rester dégénérées, car on considère le cas où $V_2 \simeq V_3$. Par contre, ces deux paires d'états sont désormais couplées ensemble par l'interaction dipôle-dipôle, donnant naissance à des états propres, tous couplés, à résonance, à l'état initial ψ_i.
Les deux états propres représentés sur la Fig. 4.39d) sont dégénérés et représentent, en absence de tout couplage, la paire d'états (ψ_{f1}, $\psi_{f1'}$) (état propre final du bas) et (ψ_{f2}, $\psi_{f2'}$) (état propre final du haut). L'état propre du bas, décalé par rapport à celui du haut d'une quantité $\sim V_2 \simeq V_3$, devrait croiser l'état initial pour un champ électrique plus faible, et cela donne lieu à un premier croisement évité. Lorsque le deuxième état propre (celui du haut) devient résonant, c'est-à-dire lorsqu'il est censé croiser l'état initial, un deuxième croisement évité apparaît. Nous n'avons donc plus un seul croisement évité mais deux, séparés d'une quantité $\sim V_2 \simeq V_3$, ce qui donne lieu à deux résonances très proches. L'effet global est l'observation d'une résonance plus large que si les réactions de migration étaient négligées.

En réalité, nous avons affaire à un bien plus grand nombre d'atomes qui interviennent dans les réactions de transfert d'énergie, et les distances analogues à celle de R_{BC} sont réparties de façon aléatoire. Par conséquent, il n'y a pas uniquement deux états propres dégénérés qui interviennent, mais bien plus, donnant naissance à une bande d'énergie dont la largeur reflète la largeur de la résonance. Elle devient donc bien plus large que celle obtenue en ne considérant q'une interaction V_1 entre deux atomes.

Pour une étude plus détaillée des effets d'interaction à N corps dans le processus de transfert résonant d'énergie, on peut se référer à la thèse d'Igor Mourachko [Mourachko, 1999] et l'article [Akulin et al., 1999]. Une théorie y est décrite pour expliquer la forme des résonances observées expérimentalement. La contribution des réactions de migration au processus de transfert d'énergie a également été démontrée expérimentalement [Anderson et al., 2002, Mourachko et al., 2004].

4.6.2 Contexte expérimental

L'expérience que l'on va présenter tend à sonder la dynamique de l'interaction dipôle-dipôle des paires proches d'atomes de Rydberg, qui contribuent majoritairement aux processus de transfert résonant d'énergie au sein d'un échantillon dense d'atomes de Rydberg. Pour cela nous avons utilisé deux procédures expérimentales différentes consistant, dans les deux cas, à sonder les interactions entre atomes de Rydberg par désexcitation induite vers l'état $7s$.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Deux schémas de spectroscopie : Continu-Continu (CC), Pulsé-Continu(PC)

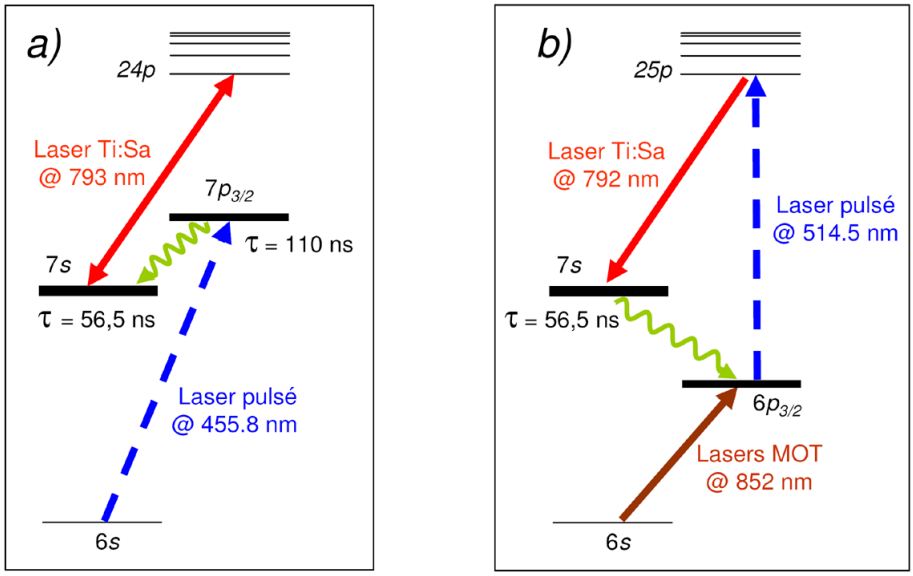

FIG. 4.40 – Deux Schémas spectroscopiques de dépompage. a) Schéma de pompage-dépompage Continu-Continu (CC). Ce schéma combine l'action d'un laser à colorant pulsé et d'un laser continu Ti:Sa. Dans un premier temps, le laser pulsé excite les atomes du MOT de l'état $6s$ vers l'état $7p$. Ces atomes se désexcitent ensuite spontanément vers l'état $7s$. Le Ti:Sa réalise alors l'excitation des états de Rydberg en réalisant la transition $7s \longrightarrow np$. b) Schéma de pompage-dépompage Pulsé-Continu (PC). L'excitation vers les états de Rydberg np se fait directement avec un photon du laser à colorant pulsé (les deux états $|m_j| = 1/2, 3/2$ sont excités), à partir de l'état $6p$ (cette transition dipolaire électrique interdite est rendue possible en excitant les atomes en présence d'un champ électrique). Le dépompage est ensuite réalisé par le laser continu Ti:Sa.

Le premier schéma d'excitation a déjà été présenté dans cette thèse pour décrire l'expérience visant à sonder les interactions entre atomes de Rydberg tout en évitant l'effet néfaste des photoions créés. Le principe et la séquence temporelle de ce schéma sont rappelés respectivement sur la Fig. 4.40a) et la Fig. 4.41. L'excitation vers les états de Rydberg se fait par l'action combinée d'un laser pulsé puis d'un laser continu Ti:Sa, balayable en fréquence et spectralement fin. Ce dernier laser permet ensuite de réaliser la spectroscopie des états de Rydberg, pour différents temps d'interaction, en forçant leur désexcitation vers l'état $7s$. La raie de dé-excitation que l'on analyse correspond à un trou dans le spectre d'excitation.

Le deuxième schéma que l'on a utilisé consiste à exciter les atomes du MOT directement vers les états de Rydberg, à l'aide du laser pulsé, puis d'induire la désexcitation vers l'état $7s$ en irradiant l'échantillon avec le laser continu (voir Fig. 4.40b) et Fig. 4.42).
Cette deuxième méthode, avec excitation pulsée et dé-excitation continue (PC), nous permet de préparer un échantillon de Rydberg bien plus dense et donc de pouvoir sonder des interactions dipôle-dipôle plus importantes. Elle est néanmoins beaucoup plus difficile à mettre en application du fait des énormes fluctuations de l'excitation pulsée (près de 100 %). En effet, l'alignement du laser de dé-excitation dans la technique PC se fait en minimisant le signal d'atomes de Rydberg détecté alors qu'en utilisant la méthode d'excitation et dé-excitation continue (CC), il suffit de maximiser le signal d'atomes de Rydberg détecté : il est bien plus difficile de minimiser un signal qui fluctue que de trouver le signal fluctuant et le maximiser.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

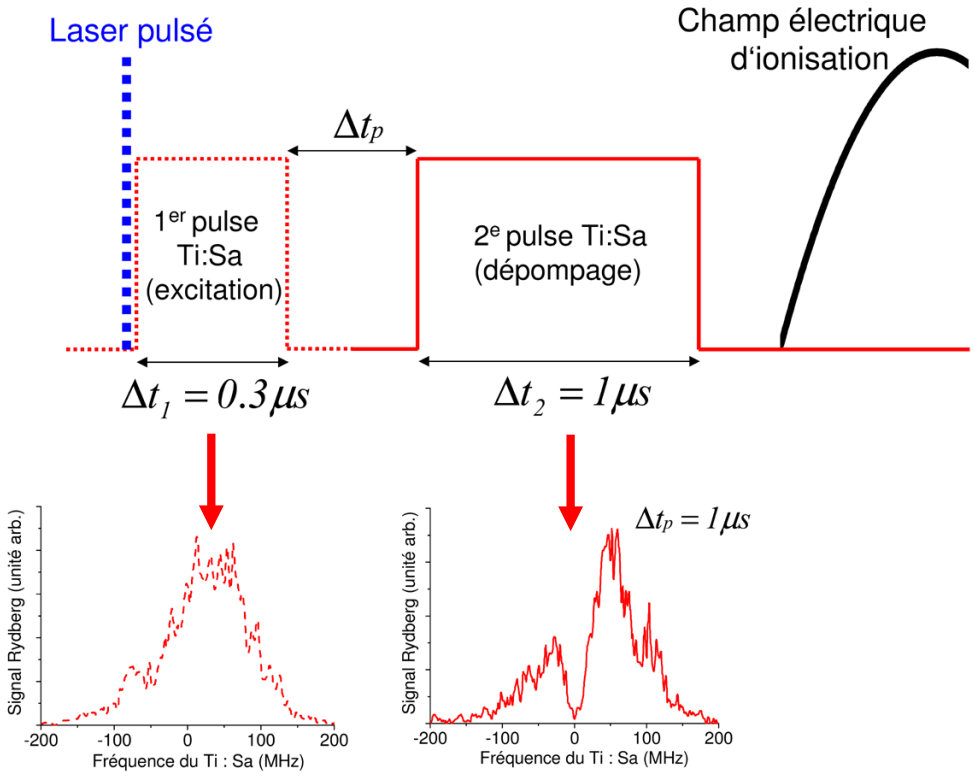

FIG. 4.41 – Séquence temporelle du schéma de spectroscopie de dépompage Continu-Continu (CC). L'excitation des états de Rydberg est effectuée par la combinaison d'une impulsion du laser à colorant suivie d'une impulsion (durée $\Delta t_1 = 300$ ns) du laser continu Ti:Sa. Le dépompage est effectué après un temps variable, Δt_p, par une deuxième impulsion (durée $\Delta t_2 = 1$ μs) du laser Ti:Sa. Le dépompage se manifeste par un *trou* dans le spectre d'excitation.

De plus, il ne faut pas perdre de vue qu'avec la technique PC, nous excitons tous les niveaux m_j de l'état de Rydberg np et que la dé-excitation ne peut se faire que sur un niveau m_j choisi. Le signal d'atomes de Rydberg dépompés peu ainsi s'annuler avec la technique CC alors qu'il ne diminue que d'environ un facteur deux avec la technique PC.
Comme nous le verrons dans la suite, la spectroscopie PC est utilisée préférentiellement pour mettre en évidence le croisement évité témoignant de l'interaction dipôle-dipôle entre deux atomes de Rydberg, qui est d'autant plus important que la densité d'atomes de Rydberg est élevée. La spectroscopie CC est, quant à elle, employée pour étudier l'évolution temporelle de l'interaction.

Transfert résonant d'énergie

Les expériences que nous avons réalisées ont pour but d'étudier la réaction de transfert résonant

$$np_{3/2}(|m_j|) + np_{3/2}(|m'_j|) \longleftrightarrow ns_{1/2} + (n+1)s_{1/2} \tag{4.69}$$

Cette réaction est résonante pour trois valeurs de champ électrique suivant la valeur du nombre quantique magnétique de l'état np, excité initialement (voir Fig. 4.43). Nous nous sommes limités dans nos études aux réactions dans lesquelles $|m_j| = |m'_j| = 1/2$, résonantes pour $n = 24$ et 25, au champ électrique $\mathcal{E}_0 = 59,11$ V/cm et $\mathcal{E}_0 = 44,03$ V/cm.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

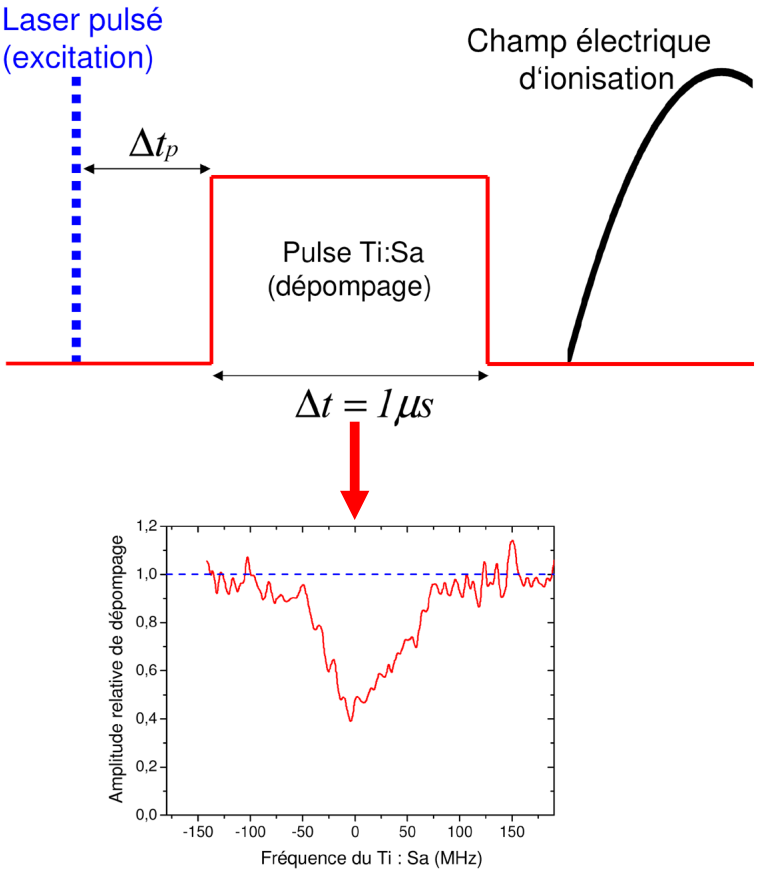

FIG. 4.42 – Séquence temporelle du schéma de spectroscopie de dépompage Pulsé-Continu (PC). L'excitation des états de Rydberg est effectuée par le laser pulsé. Après un temps variable, Δt_p, le dépompage est effectué par une impulsion du laser Ti:Sa pendant une durée $\Delta t_2 = 1$ μs). Sur le graphique, en bas, la ligne pointillée donne le nombre d'atomes de Rydberg excités par le laser pulsé, ici normalisé à 1. Le dépompage est mis en évidence par une diminution du nombre d'atomes de Rydberg détectés.

Détection : La mise en évidence de ces réactions de transfert se fait, après avoir excité initialement les atomes du MOT vers l'état np, en détectant les atomes de Rydberg dans les états ns et $(n+1)s$. Cette détection s'effectue en ionisant sélectivement les états de Rydberg à l'aide d'une impulsion de champ électrique. Ainsi loin de résonance ($|\mathcal{E} - \mathcal{E}_0| \gg 0$), le signal d'ions vu à l'oscilloscope sera un simple pic témoignant de la présence uniquement des atomes dans l'état np (voir courbes à 59,09 V et 61,34 V de la Fig. 4.44). Par contre, à résonance ($|\mathcal{E} - \mathcal{E}_0| = 0$), trois pics témoigneront de la présence d'atomes dans les états $(n+1)s$, np et ns (voir courbe à 59,80 V de la Fig. 4.44). Le premier pic (à gauche) correspond à l'état ionisé en premier lors de la montée de l'impulsion de champ électrique, c'est-à-dire l'état le moins lié des trois, $(n+1)s$. L'enregistrement du signal s'effectue en plaçant des portes intégratrices sur les pics d'ions $(n+1)s$, np et ns (voir Fig. 4.44).

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

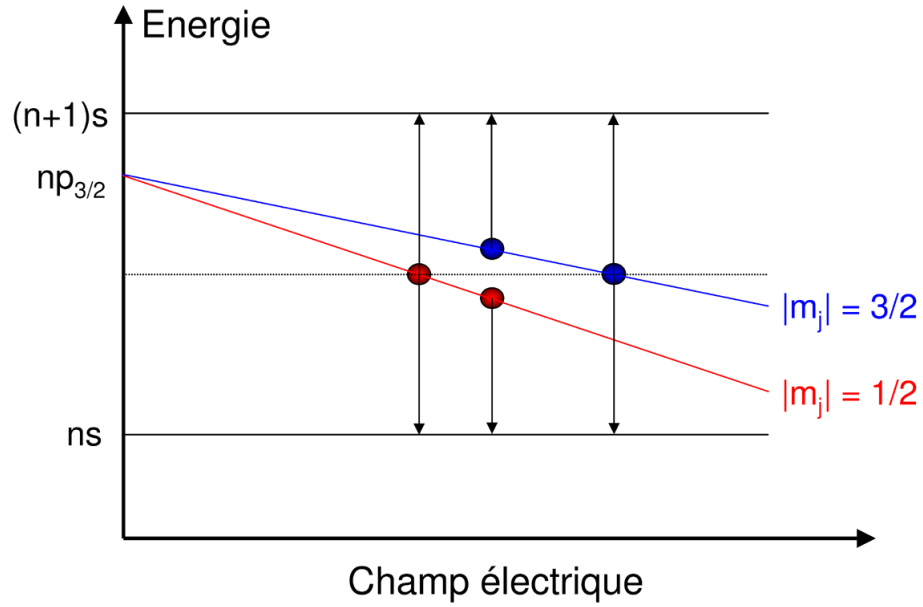

FIG. 4.43 – Représentation schématique du processus de transfert résonant d'énergie suivant le schéma : $np_{3/2} + np_{3/2} \longrightarrow ns_{1/2} + (n+1)s_{1/2}$. Les paires de flèches représentent les transferts de population correspondant aux différents états initiaux. Nous avons donc trois résonances qui dépendent du nombre quantique magnétique m_j de l'état $np_{3/2}$, excité initialement.

Dynamique de formation : La dynamique de formation des atomes s est représentée sur la Fig. 4.45. L'expérience a été réalisée en excitant avec le laser pulsé les atomes vers l'état $24p$, puis, en ionisant l'échantillon d'atomes de Rydberg après différents temps d'interaction. Dans nos conditions expérimentales, le maximum d'atomes s est obtenu après un temps d'interaction de l'ordre de 500 ns.

Résonance du transfert d'énergie : En fixant ce temps d'interaction à environ 300 ns et en balayant la valeur du champ électrique statique autour de $\mathcal{E}_0$, on peut clairement voir le caractère résonant du processus de transfert d'énergie. La dépendance en fonction du champ électrique du signal d'atomes s formés est représentée sur la Fig. 4.46. On peut constater une légère asymétrie de la résonance du côté des champs électriques $\mathcal{E} > \mathcal{E}_0$. Cette observation a déjà été reportée et fut expliquée par [Fioretti et al., 1999b] en faisant intervenir les forces à longue distance existant entre atomes de Rydberg. Pour $\mathcal{E} > \mathcal{E}_0$, les atomes sont préférentiellement excités sur la partie attractive du potentiel d'interaction à deux atomes (voir Fig. 4.40a)) et les atomes se rapprochent donc l'un vers l'autre, augmentant ainsi le phénomène de transfert d'énergie. Inversement, pour $\mathcal{E} < \mathcal{E}_0$, la force répulsive entre les atomes réduit l'efficacité du transfert d'énergie.
Une deuxième contribution à cette asymétrie peut provenir de la production d'ions lors de l'excitation des atomes de Rydberg. Les ions, déplacés par le champ électrique statique $\mathcal{E}$, créent un champ électrique qui s'oppose à ce dernier. Les atomes de Rydberg de l'échantillon voient donc un champ électrique inférieur à $\mathcal{E}$, ce qui crée une asymétrie de la résonance vers $\mathcal{E} > \mathcal{E}_0$.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

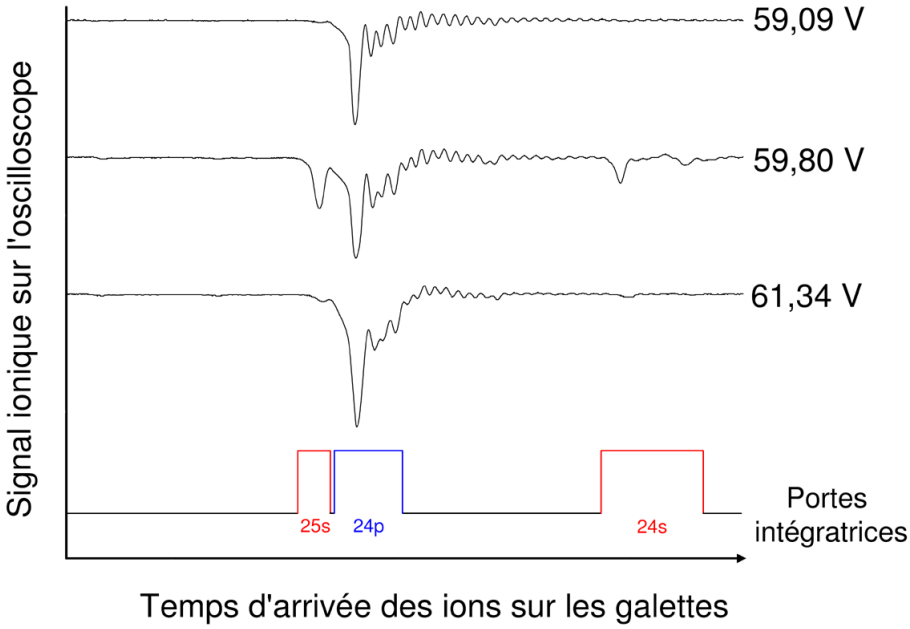

FIG. 4.44 – Mise en évidence de la réaction de transfert résonant d'énergie. Le signal représente les ions détectés par les galettes micro-canaux qui est visualisé à l'oscilloscope pour trois valeurs de champ électrique. A 59, 09 V/cm et 61,34 V/cm, la réaction de transfert d'énergie n'est pas résonante et l'on détecte uniquement les atomes de Rydberg dans l'état $24p$. A 59,80 V, la réaction est résonante et l'on peut détecté, en plus des atomes dans l'état $24p$, ceux dans l'état $25s$ (ils sont ionisés pour des valeurs de champ électrique plus faibles et arrivent donc plus tôt sur les galettes) et ceux dans l'état $24s$ (ionisés pour des valeurs de champs électriques plus élevées). Nous avons également représenté, en bas de la figure, les portes intégratrices qui nous permettent d'enregistrer le signal détecté.

Tout ce que l'on vient de présenter jusqu'ici a été étudié en détail dans les thèses entreprises précédemment au laboratoire Aimé Cotton [Nosbaum, 1996, Mourachko et al., 1998, Comparat, 1999]. La caractérisation de l'interaction dipôle-dipôle n'avait été réalisée que par un balayage de champ électrique autour de la résonance. Nous allons maintenant présenter deux expériences innovantes que nous avons réalisées et qui visent à caractériser à l'aide d'une spectroscopie optique haute résolution l'interaction dipôle-dipôle entre les atomes de Rydberg.

4.6.3 Spectroscopie du croisement évité de l'interaction dipôle-dipôle

Pour cette première expérience, nous avons utilisé le schéma d'excitation PC représenté sur la Fig. 4.40b) dans lequel l'excitation vers l'état de Rydberg se fait avec le laser pulsé (9 ns, $\sim$ 100 μJ) , puis la désexcitation vers l'état $7s$ est induite par le laser continu Ti:Sa ($\sim$ 400 mW). La séquence temporelle est représentée sur la Fig. 4.42. Les faisceaux laser sont focalisés sur un waist d'environ $\sim$ 200 μm et sont contrepropageants, de façon à maximiser leur recouvrement.
Aux alentours de 6×10^5 atomes du MOT sont excités vers l'état $25p_{3/2}$, en présence d'un champ électrique statique. Pour remplir la condition de résonance de la réaction de transfert d'énergie (4.69), la valeur du champ électrique est ajustée autour de $\mathcal{E}_0 = 44,03$ V/cm.

A résonance, l'énergie d'une paire d'atomes dans l'état $|np, np\rangle \equiv |pp\rangle$ est égale à l'énergie d'une paire d'atomes dans l'état $|ns, (n+1)s\rangle \equiv |ss'\rangle$. Dans une vision à deux atomes,

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

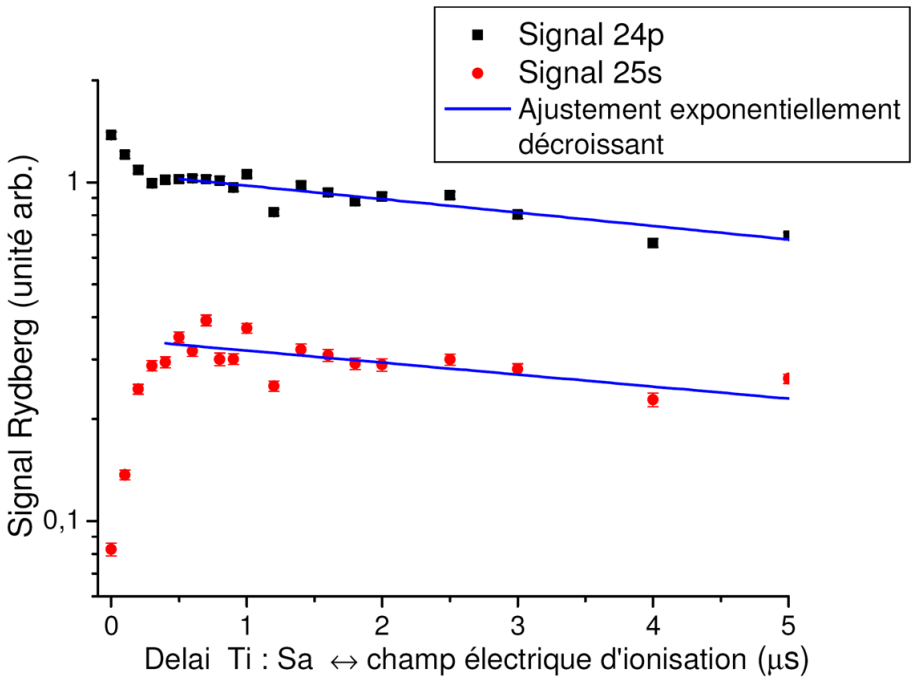

FIG. 4.45 – Evolution de la population des états de Rydberg, $24p$ et $25s$, impliqués dans le processus de transfert d'énergie. L'excitation des atomes de Rydberg $24p$ est réalisée simplement par une impulsion du laser à colorant à partir de l'état $6p$. Le signal de l'état p chute alors que celui de l'état s augmente : c'est le processus de transfert d'énergie qui a lieu. Le nombre maximum d'atomes s produits est atteint après un temps d'interaction d'environ 500 ns. Après une microseconde, le signal des atomes de Rydberg chute exponentiellement avec une constante de temps de l'ordre de 10 μs. Cette décroissance est la conséquence de la durée de vie finie des états de Rydberg.

l'interaction dipôle-dipôle lève la dégénérescence des états non perturbés $|pp\rangle$ et $|ss'\rangle$, qui se combinent linéairement pour donner les états propres répulsif $|+\rangle$ et attractif $|-\rangle$:

$$|+\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|pp\rangle + |ss'\rangle) \qquad |-\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|pp\rangle - |ss'\rangle) \tag{4.70}$$

Les courbes d'énergie $V_+(\mathcal{E})$ (pour $|+\rangle$) et $V_-(\mathcal{E})$ (pour $|-\rangle$) correspondent aux valeurs propres de l'Hamiltonien

$$H_{pp-ss'} = \begin{pmatrix} V_{pp}(\mathcal{E}) & \Delta V \\ \Delta V & V_{ss'}(\mathcal{E}) \end{pmatrix} \tag{4.71}$$

où $V_{pp}(\mathcal{E})$ et $V_{ss'}(\mathcal{E}$ correspondent respectivement aux énergies des états non perturbés $|pp\rangle$ et $|ss'\rangle$. ΔV représente l'énergie d'interaction dipôle-dipôle.

qui sont représentées sur la Fig. 4.47a) pour une distance interatomique fixée ($R = R_0$). Le diagramme énergétique, à résonance ($\mathcal{E} = \mathcal{E}_0$), est représenté quant à lui sur la Fig. 4.47b).

Dans l'expérience, après un temps d'interaction d'environ 300 ns, près de 50 % des atomes dans l'état $25p_{3/2}(|m_j| = 1/2)$ sont transférés dans les états s. Les atomes se trouvant dans l'état $25p_{3/2}(|m_j| = 1/2)$ subissent une transition vers l'état $7s$ à l'aide du laser Ti :Sa. Ce laser est appliqué continûment pendant 1 μs après l'excitation des atomes du MOT par le laser pulsé. Les atomes de Rydberg dans les états p et s sont ensuite ionisés

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

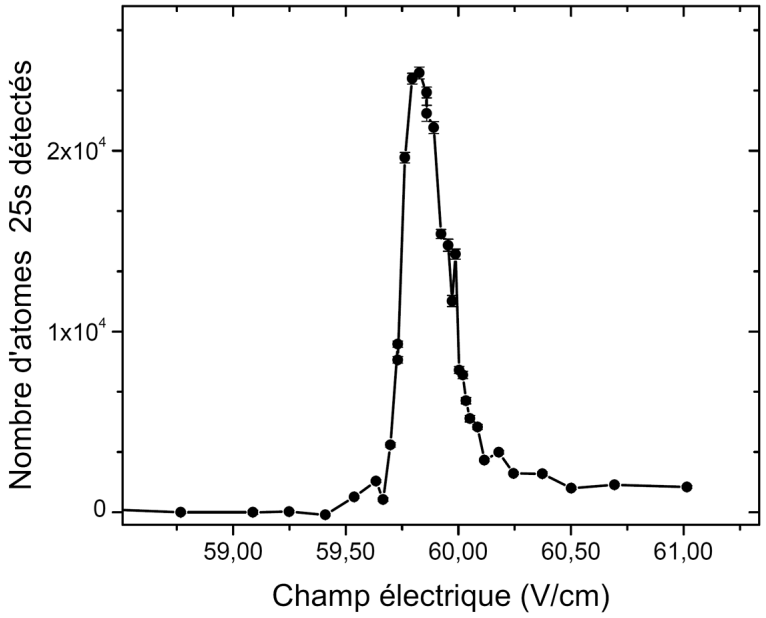

FIG. 4.46 – Spectroscopie par variation d'un champ électrique, de la résonance $24p + 24p \longrightarrow 24s + 25s$. Le signal $25s$ est représenté en fonction du champ électrique homogène. Le signal s atteint son maximum à résonance, c'est-à-dire pour un champ électrique d'environ 59,80 V/cm.

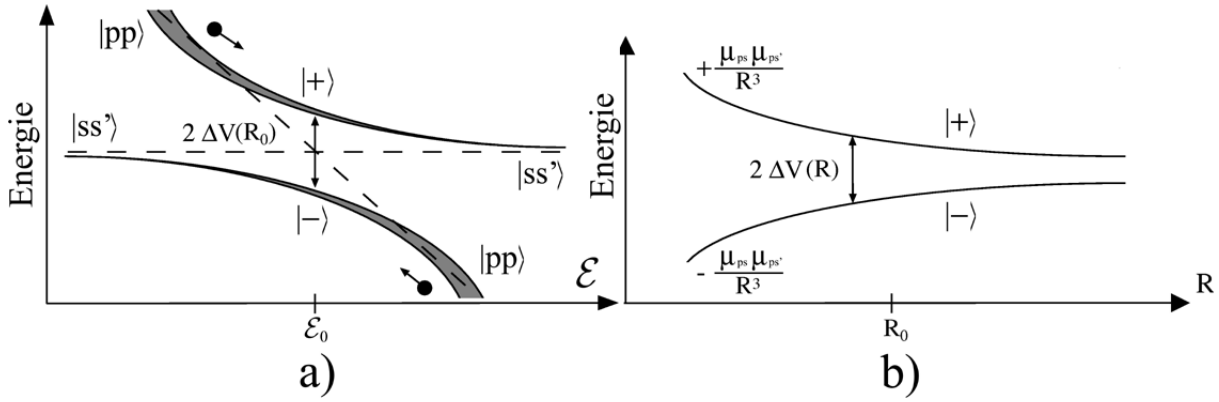

FIG. 4.47 – Diagramme énergétique pour les états de Rydberg à deux atomes. Dans a) pour une distance interatomique fixée $R = R_0$, et dans b), pour un champ électrique fixé $\mathcal{E} = \mathcal{E}_0$. L'écart énergétique entre les états $|+\rangle et |-\rangle$ est égal, à résonance, à $2\Delta V(R) = 2\mu_{ps}\mu_{ps'}/R^3$. L'épaisseur des traits des états $|+\rangle et |-\rangle$ sur a) représente la probabilité d'exciter l'état par le laser Ti:Sa à partir de l'état $7s$.

par une impulsion de champ électrique avec un temps de montée caractéristique d'environ 1 μs.

Deux spectres typiques de dé-excitation du niveau $25p_{3/2}$ sont représentés sur la Fig. 4.48 pour deux valeurs de champ électrique. Le nombre d'atomes $25p$ et $26s$ est normalisé par rapport au nombre d'atomes excités sans dépompage, qui est respectivement de 6×10^5 et $1,5 \times 10^5$ atomes. Lorsque le dépompage est maximal, le nombre d'atomes $25p$ ne décroît que d'environ 60 %, ce qui est expliqué par une largeur spectrale du laser pulsé ($\sim$ 1,5 GHz) qui permet d'exciter les deux composantes $|m_j| = 1/2$ et $|m_j| = 3/2$ alors que seule la composante $|m_j| = 1/2$ est dépompée par le Ti:Sa.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

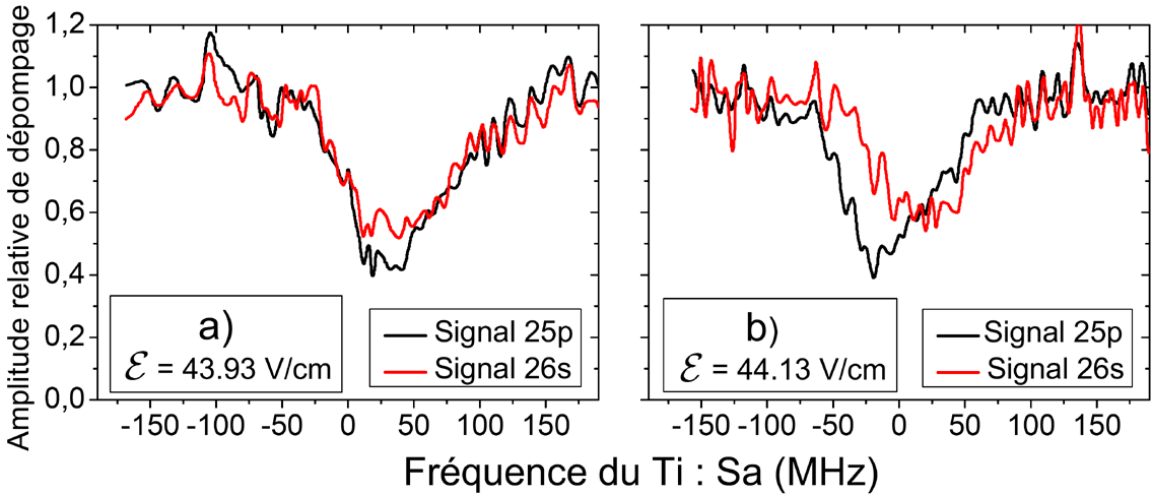

FIG. 4.48 – Spectres de dépompage PC de l'état $25p_{3/2}$, pour deux valeurs de champs électriques $\mathcal{E} = 43,93 V/cm$ (cas a)) et $\mathcal{E} = 44,13$ V/cm (cas b)). L'axe des fréquences est décalé de 12632,0107 cm^{-1}, ce qui correspond au centre de la raie de transition vers l'état $25p$, pour un champ électrique résonant $\mathcal{E} = \mathcal{E}_0 = 44,03$ V/cm. Les signaux des atomes de Rydberg détectés $25p$ et $26s$ sont normalisés par rapport au signal sans dépompage. On peut remarquer que même le signal s est dépompé alors que seul l'état p se trouve en résonance avec l'état $7s$. Cette observation met en évidence le caractère cohérent de l'interaction dipôle-dipôle, qui couple l'état p aux états s. Les atomes en interaction oscillent entre ces états et lorsqu'ils se trouvent dans l'état p, ils peuvent alors être dépompés. On observe aussi un décalage du centre des raies de dépompage de l'état $25p$ par rapport à celui des raies de l'état $26s$. C'est le résultat de la résolution spectroscopique du croisement évité résultant de l'interaction dipôle-dipôle (voir Fig. 4.49).

On peut remarquer, de façon surprenante, que le nombre d'atomes $26s$ chute lui aussi, et ce, jusqu'à environ 60 % de sa valeur sans laser Ti:Sa. Rappelons que le laser Ti:Sa n'est en résonance qu'entre l'état $25p_{3/2}$ et l'état $7s$. Cette observation implique que le couplage résonant des états s vers l'état p, initialement excité, est également efficace. Les atomes dans les états s vont être transférés vers l'état p et peuvent être alors dépompés.
Notons également que la position de la résonance de dépompage du signal $26s$ est déplacée légèrement vers les hautes fréquences lorsque la valeur du champ électrique augmente.

Sur la Fig. 4.49, les positions des raies de dé-excitation des signaux p et s, obtenues après un ajustement des spectres expérimentaux par une fonction lorentzienne, sont tracées en fonction du champ électrique statique. La fonction d'ajustement linéaire illustre le déplacement Stark V_{pp} de l'état $|pp\rangle$. Les points expérimentaux qui suivent cette droite correspondent aux atomes p n'ayant pas interagi ensemble.
Les points expérimentaux reflétant les positions du dépompage du signal s sont par contre le résultat d'interactions entre atomes de Rydberg. Le laser Ti:Sa a pour vocation de sonder le nuage d'atomes en interaction. Si le signal s peut être dépompé, alors le système est décrit par les états propres $|+\rangle$ et $|-\rangle$. La spectroscopie de dépompage est alors réalisée sur ces états propres. La courbe en tirets correspond à un ajustement des positions du signal s par la fonction $V_+(\mathcal{E})$ et $V_-(\mathcal{E})$, valeurs propres de l'hamiltonien (4.71). On voit que la position des raies de dépompage du signal s suit très bien l'énergie de l'état perturbé, répulsif, $V_+(\mathcal{E})$. Les paramètres libres de l'ajustement sont $V_{ss'}$, dont on fait l'hypothèse qu'il est indépendant du champ électrique, ΔV et le centre de la résonance $\mathcal{E}_0$. Le résultat

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

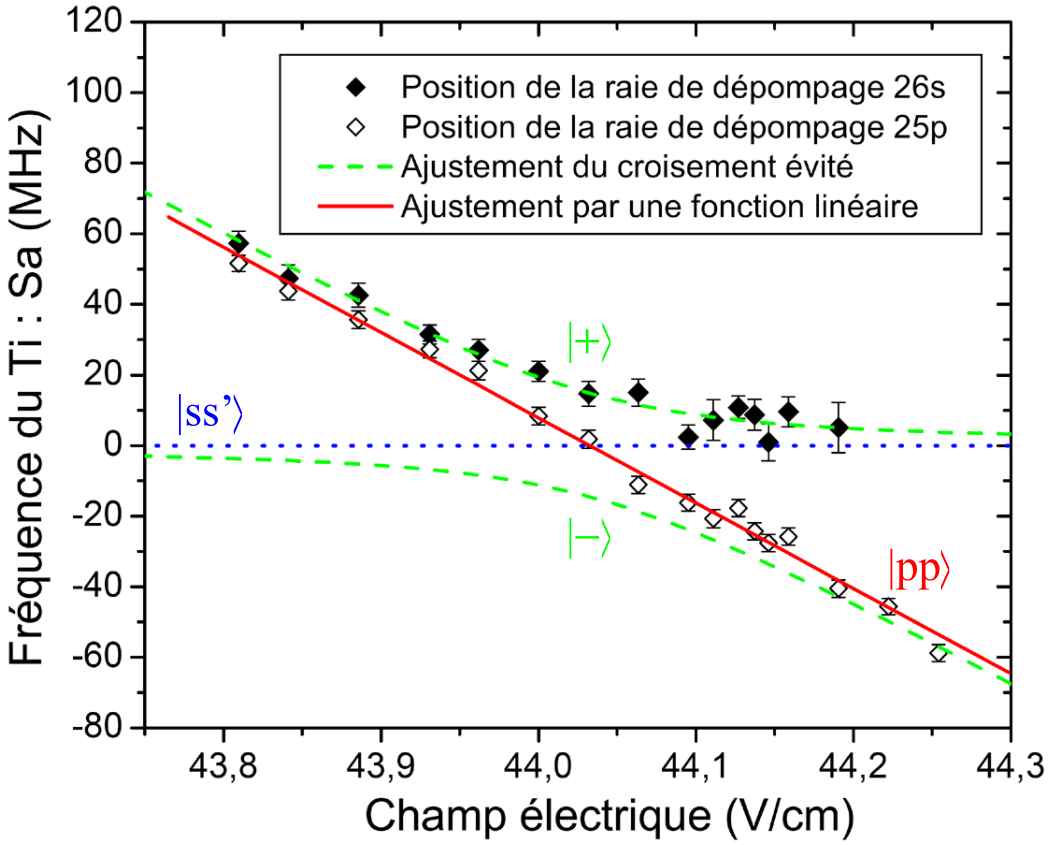

FIG. 4.49 – Spectroscopie de dépompage PC du croisement évité témoignant de l'interaction dipôle-dipôle entre l'état $|pp\rangle$ et $|ss'\rangle$. Les positions des centres de raie de dépompage du signal p (symboles vides) et du signal s (symboles pleins) sont représentées en fonction du champ électrique homogène. La ligne continue est un ajustement linéaire de la position des raies de dépompage p (atomes n'ayant pas interagi), et celles en tirets correspondent aux courbes de potentiel $V_+(\mathcal{E})$ et $V_-(\mathcal{E})$, obtenues après un ajustement, pour $V_+(\mathcal{E})$, de la position de la raie de dépompage du signal s (atomes ayant interagi). A résonance, l'écart en énergie séparant les deux états propres $|+\rangle$ et $|-\rangle$ nous renseigne sur l'intensité du couplage dipôle-dipôle, $\Delta V/h = 15(3)$ MHz.

de cet ajustement fournit une valeur de l'interaction dipôle-dipôle $\Delta V/h = 15(3)$ MHz, qui est bien plus grande que celle prédite théoriquement dans un modèle à deux corps, $\Delta V_{theo}/h \approx \mu_{25p25s}\mu_{25p26s}/\bar{R}^3 \approx 0,5$ MHz. Cette différence s'explique, comme on l'a vu dans la section 4.6.1, par des effets à N corps qui rendent le modèle à deux atomes trop simplifié pour rendre compte du transfert résonant d'énergie dans un gaz d'atomes de Rydberg froid en interaction.

Apparemment, le couplage résonant des atomes s vers l'état p, est efficace seulement si l'on excite l'état répulsif $|+\rangle$, qui reste parfaitement cohérent pendant la durée de dépompage. Ce n'est apparemment pas le cas avec l'état $|-\rangle$ puisqu'on ne détecte aucun signal correspondant cet état. Ce résultat peut être interprété comme la conséquence de mouvement relatif dans une paire d'atomes en interaction [Fioretti et al., 1999b, Li et al., 2005], menant probablement, dans le cas de l'excitation de l'état attractif $|-\rangle$, à un phénomène de l-mixing des états s avec ceux d'une multiplicité [Dutta et al., 2001, Walz-Flannigan et al., 2004], non détectés dans notre expérience. Pour une paire d'atomes dont la distance interatomique est cinq fois plus

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

petite que la distance moyenne entre atomes de l'échantillon, le déplacement d'un atome, pendant 1 μs, est d'environ 10 μm, ce qui est comparable à la distance moyenne entre les atomes de Rydberg de notre échantillon. Cette hypothèse est très probable vus les résultats obtenus récemment concernant le mouvement des atomes induit par les forces dipolaires [Li et al., 2005].

Une deuxième explication peut être donnée pour comprendre pourquoi la courbe attractive n'est pas mise en évidence par cette spectroscopie : nous allons considérer, pour commencer, que le laser Ti :Sa n'est pas présent ; nous détectons alors simplement les ions provenant de l'ionisation d'atomes de Rydberg dans les états s et dans les états p. La question que nous devons nous poser est ce qu'est réellement le signal s que nous détectons. Lorsque le nuage d'atomes de Rydberg est en interaction, le système est composé d'une portion d'atomes n'ayant pas interagi, se trouvant dans l'état p, mais également d'atomes ayant interagi et se trouvant dans les états perturbés $|+\rangle$ et $|-\rangle$. Ainsi, une paire d'atomes en interaction se trouve dans une superposition d'états $|pp\rangle$ et $|ss'\rangle$. Lorsque l'impulsion de champ électrique d'ionisation est créée entre les deux grilles entourant le nuage atomique, l'énergie des états propres du système va suivre les courbes d'énergie $|+\rangle$ et $|-\rangle$ représentées sur la Fig. théorique 4.47a) et la Fig. expérimentale 4.49. Pour un champ électrique statique inférieur à $\mathcal{E}_{res}$, le croisement évité est alors traversé de façon adiabatique[14]. L'état $|+\rangle$ suit alors asymptotiquement l'état non perturbé $|ss'\rangle$ et l'état $|-\rangle$ suit asymptotiquement l'état non perturbé $|pp\rangle$. Ainsi le signal s détecté témoigne de l'ionisation de paires d'atomes dans l'état $|+\rangle$ et le signal p témoigne de l'ionisation de paires d'atomes dans l'état $|-\rangle$.
Si l'on réalise maintenant la spectroscopie de dépompage et que l'on analyse la position des raies de dé-excitation du signal s, il est évident que l'on ne peut résoudre spectroscopiquement que l'état répulsif $|+\rangle$. Par contre, la position des raies de dépompage du signal p devrait nous permettre de résoudre la courbe attractive $|-\rangle$, que nous n'avons pas observée expérimentalement. Deux raisons peuvent expliquer cela. Premièrement le signal détecté de paires d'atomes dans l'état $|-\rangle$ devrait être difficilement distinguable car il est mêlé à celui, plus important, des atomes p n'ayant pas interagi. Deuxièmement, le mouvement des atomes induit par la force dipolaire attractive empêche la détection de l'état $|-\rangle$ car des processus de l-mixing, ou d'ionisation peuvent intervenir. Le résultat de tels processus n'a cependant pas été observé dans notre expérience.

Nous tenons à faire remarquer que nous avons également réalisé cette expérience en utilisant la méthode d'excitation CC sur l'état $24p$. On peut voir sur la Fig. 4.50 que le minimum du signal de dépompage du signal s est également décalé vers les hautes fréquences par rapport au minimum de dépompage du signal p. Nous avons observé le même phénomène que celui reporté sur la Fig. 4.49, à la seule différence que l'énergie d'interaction obtenue, après un ajustement semblable à celui déjà présenté sur la Fig. 4.49, est $\Delta V/h \approx 1$ MHz ; cette différence est expliquée par une densité d'atomes de Rydberg excités six fois plus faible comparée à l'expérience réalisée avec le schéma de spectroscopie PC.

Cohérence de l'interaction :
Ce qui nous a permis d'observer la diminution du signal s en dépompant les états p, vient du caractère cohérent de l'interaction couplant l'état $|pp\rangle$ à l'état $|ss'\rangle$. En considérant une paire d'atomes en interaction, le système oscille entre ces deux états à la fréquence $\Delta V/h$. La cohérence de ce système, à travers le processus de transfert résonant

[14] La variation de la valeur du champ électrique de l'impulsion d'ionisation sur les premiers volts est très lente ; la traversée du croisement évité est considérée comme adiabatique.

d'énergie, a clairement été démontrée en utilisant une méthode d'interférence de Ramsey [Anderson et al., 2002, Anderson, 1996]. L'idée de l'expérience des franges de Ramsey est, dans un premier temps, d'exciter hors résonance les atomes vers l'état np. L'état initial est donc l'état $|np, np\rangle$. Ensuite, une impulsion de champ électrique est appliquée pendant un temps t_r pour amener à résonance le processus de transfert d'énergie. L'état initial évolue alors vers l'état final $|ns, (n+1)s\rangle$. A la fin de l'impulsion de champ électrique, l'état du système est décrit par une superposition cohérente des états $|np, np\rangle$ et $|ns, (n+1)s\rangle$. Après un temps τ_0, pendant lequel le transfert d'énergie est hors résonance, une deuxième impulsion de champ électrique, identique à la première, est appliquée. Pendant la période τ_0 (hors résonance), les deux parties de la fonction d'onde vont acquérir un déphasage relatif dû à la différence d'énergie $(E_{ss'} - E_{pp})$ entre l'état final $|ns, (n+1)s\rangle$ et l'état initial $|np, np\rangle$. Le déphasage total obtenu pendant la période hors résonance est donné par :

$$\phi = \int_0^{\tau_0} (E_{ss'} - E_{pp}) dt \tag{4.72}$$

Si $\phi = 2\pi m$, où m est un entier, la deuxième résonance interfère de manière constructive avec la première. Si par contre, $\phi = 2\pi(m + 1/2)$, les interférences sont destructives. En variant la durée τ_0 entre les deux impulsions, le signal de transfert d'énergie (signal s) oscille alors de façon sinusoïdale, ce qui témoigne du caractère cohérent du processus.

Dans la prochaine partie, nous allons étudier l'évolution temporelle de cette cohérence, en mesurant l'efficacité du couplage entre les états $|pp\rangle$ et $|ss'\rangle$ pour différents temps d'évolution de l'échantillon.

4.6.4 Dynamique de cohérence de l'interaction dipôle-dipôle

Spectroscopie Continu-Continu

Nous avons sondé l'évolution temporelle du couplage cohérent entre les états $|24p, 24p\rangle$ et $|24s, 25s\rangle$ en réalisant la méthode de spectroscopie CC (voir Fig. 4.40a) et Fig. 4.41). Les atomes du piège magnéto-optique sont excités par l'action combinée du laser pulsé et du laser Ti:Sa vers l'état de Rydberg $24p_{3/2}, |m_j| = 1/2$. Pour cela le laser est allumé pendant une durée de 300 ns après l'impulsion du laser à colorant, transférant un maximum d'atomes vers l'état de Rydberg. Après une période variable $\Delta t_p = 0, 1 - 10$ μs, une seconde impulsion du Ti :Sa d'une durée de 1 μs est envoyée sur l'échantillon pour stimuler la désexcitation des atomes de Rydberg de l'état $24p_{3/2}, |m_j| = 1/2$ vers l'état $7s$. L'impulsion de champ électrique, ionisant les états de Rydberg p et s, est appliquée à un temps fixe de 5 μs après l'impulsion du laser à colorant pour les mesures où $\Delta t_p = 0 - 3$ μs, et de 15 μs après l'impulsion du laser à colorant pour les mesures où $\Delta t_p = 4 - 10$ μs.

La spectroscopie de l'état $24p$ est représentée sur la Fig. 4.50 en tirets. L'expérience a été réalisée pour un champ électrique statique $\mathcal{E} = \mathcal{E}_{res} = 59,11$ V/cm qui correspond au transfert maximum d'excitation. Comme on l'a déjà expliqué, le dépompage des atomes p se produit au centre de la transition, sans être perturbé par des effets parasites pouvant provenir de la production d'ions lors de l'excitation des atomes. Le minimum de la raie de dépompage atteint quasiment zéro puisqu'avec ce schéma de spectroscopie, tous les atomes de Rydberg excités sont censés être dépompés par la seconde impulsion du Ti:Sa.
Le résultat de la spectroscopie sur le signal $26s$ est également représenté sur la Fig. 4.50 pour trois différentes périodes Δt_p, chacune décalée verticalement par rapport à aux autres pour

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

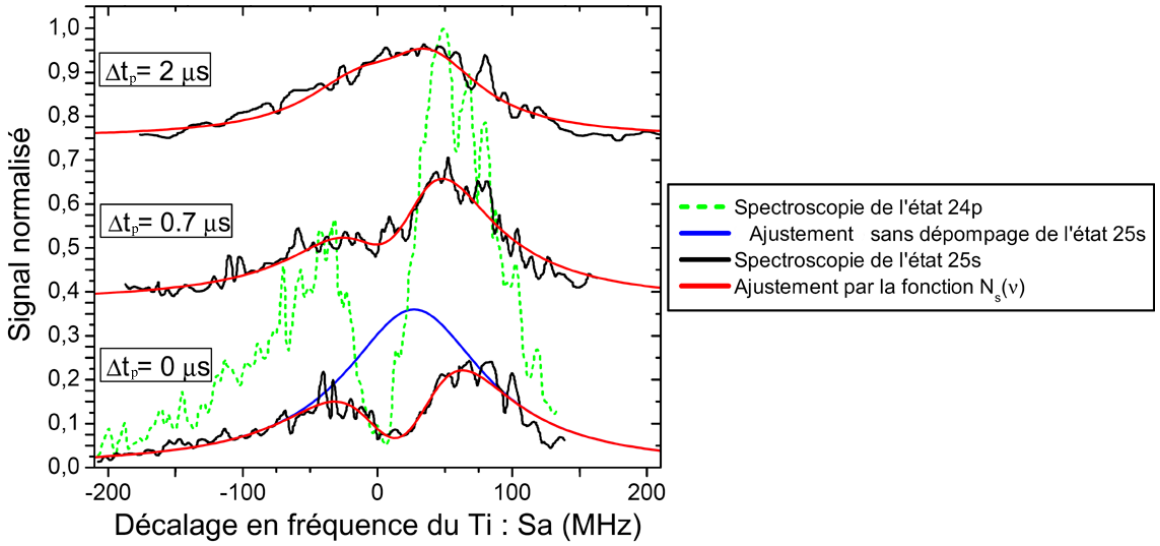

FIG. 4.50 – Spectroscopie de dépompage CC de l'état $24p$ en variant le temps d'interaction, Δt_p, entre les deux impulsions du Ti:Sa (où $\Delta t_1 = 300$ ns et $\Delta t_2 = 1$ μs). Nous avons représenté la variation du signal p (en pointillés) et du signal s (ligne continue noire) en fonction de la fréquence du Ti:Sa (la fréquence est décalée de 12608,0256 cm^{-1}, qui correspond à la position du maximum de dé-excitation du signal $24p$). Nous avons également représenté en ligne continue des fonctions d'ajustement (voir texte ci-dessous) des raies de dépompage du signal s et d'une raie sans dépompage (pour $\Delta t_p = 0$ μs), toujours pour le signal s. On observe une chute de l'efficacité de dépompage du signal s lorsque l'on augmente la période d'interaction entre les atomes de Rydberg. Ce phénomène est interprété comme un perte de cohérence du système entre les états $|pp\rangle$ et $|ss'\rangle$, induit par les réactions de migration d'excitation.

plus de lisibilité. L'échelle verticale correspond à l'amplitude du signal s normalisée par le maximum du signal p.

On peut remarquer que jusqu'à 30 % des atomes p sont convertis en atomes s, ce qui ne peut s'expliquer simplement par un modèle d'interaction uniquement entre deux atomes ; on doit faire intervenir des effets à N corps, qui vont participer aux réactions de transfert résonant d'énergie. Nous reviendrons sur ce point dans l'interprétation de nos résultats.

En augmentant la période Δt_p d'évolution du système entre les deux impulsions du Ti:Sa, l'efficacité de dépompage diminue de façon évidente. Nous n'observons concrètement un trou dans le spectre d'excitation que pour des périodes $\Delta t_p \lesssim 1,5$ μs, et un signal réduit pour des périodes plus longues. Dans le but de quantifier la dynamique du dépompage, le signal s est ajusté par une fonction $N(\nu) = L(\nu) \times (1 - G(\nu))$, où $L(\nu)$ et $G(\nu)$ correspond respectivement à une fonction lorentzienne et gaussienne. La procédure d'ajustement consiste à maintenir fixée la position des raies ainsi que l'amplitude de la raie d'excitation lorentzienne qui est obtenue par un ajustement du signal s sans dépompage (fonction lorentzienne représentée sur la Fig. 4.50 sur le spectre du bas en ligne continue). Après ajustement, l'amplitude de la fonction gaussienne, pouvant varier entre 0 (pas de dépompage) et 1 (dépompage jusqu'à zéro), est représentée, en fonction de la période d'évolution libre du système Δt, par des symboles noirs sur la Fig. 4.51. On peut voir que l'efficacité du dépompage décroît continûment avec une chute assez rapide pendant les premières microsecondes. Nous avons ajouté sur la Fig. 4.51, des courbes en loi de puissance décroissante pour guider l'oeil et pouvoir comparer les deux méthodes de spectroscopie CC et PC (voir la suite), qui fournissent des résultats équivalents.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

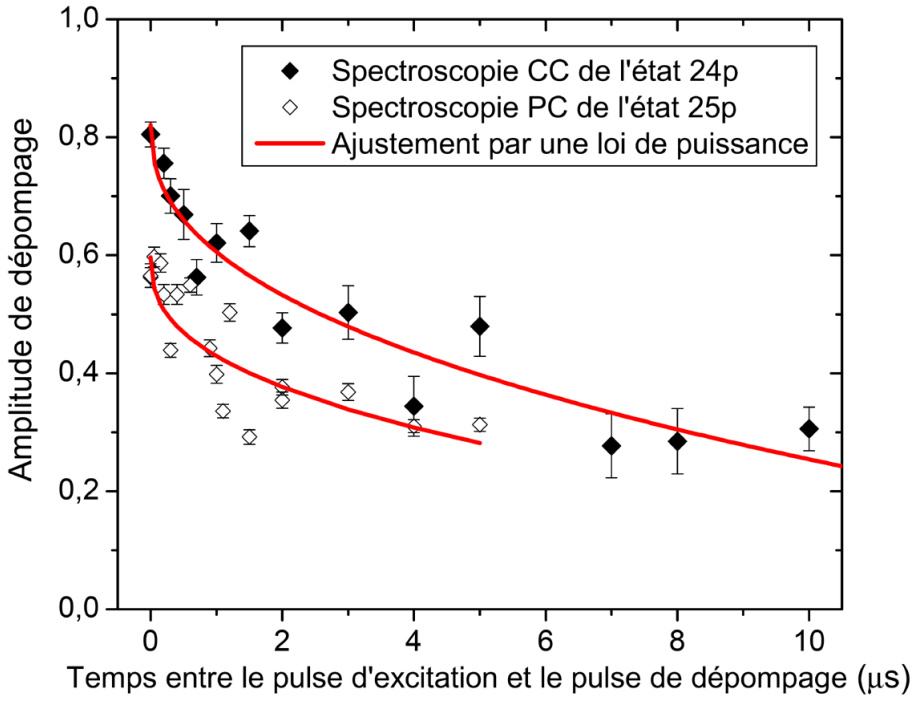

FIG. 4.51 – Evolution temporelle de l'amplitude de dépompage du signal s après une spectroscopie de dépompage CC (symboles pleins) et PC (symboles vides). La différence d'amplitude de dépompage entre les deux types d'expériences provient, dans le cas du schéma PC, de l'excitation des deux sous-états $|m_j| = 1/2, 3/2$, alors que seul l'état $|m_j| = 1/2$ est dépompé. On observe, avec les deux méthodes de spectroscopie, une chute de l'amplitude de dépompage lorsque le temps d'interaction entre les atomes de Rydberg augmente. Les lignes continues sont le résultat d'un ajustement des données par une fonction en loi de puissance. Nous avons interprété ce comportement comme une perte de cohérence du système entre les états $|pp\rangle$ et $|ss'\rangle$, induite par les réactions de migration d'excitation.

Spectroscopie Pulsé-Continu

Nous avons également étudié la dynamique de la cohérence entre les états $|25p, 25p\rangle$ et $|25s, 26s\rangle$ en réalisant la méthode de spectroscopie PC (voir Fig. 4.40b) et la séquence temporelle décrite sur la Fig. 4.42). A cette fin, l'impulsion de dépompage du Ti:Sa est décalée temporellement par rapport à l'impulsion d'excitation (laser à colorant) des atomes. L'impulsion de champ électrique d'ionisation est, quant à elle, appliquée après une période constante de 10 μs, après l'impulsion laser d'excitation. Les symboles blancs, sur la Fig. 4.51, représentent l'amplitude de dépompage du signal des atomes dans l'état $26s$, obtenue après un ajustement des raies de dé-excitation par une fonction lorentzienne. Les amplitudes sont normalisées par rapport au signal $26s$ enregistré sans dépompage. L'amplitude de déplétion du signal s, initialement d'environ 60 %, décroît continûment jusqu'aux alentours de 30 % après 1 μs de temps d'interaction.

Interprétation de la perte de cohérence

Cette chute de l'efficacité du dépompage reflète une perte de la cohérence du système, puisque les paires d'atomes $|ss'\rangle$ n'oscillent plus vers l'état $|pp\rangle$, dans lequel les atomes peuvent être dépompés. Cette perte de cohérence est sans doute due aux réactions de migration des

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

états s et s' dans l'ensemble des états p du nuage de Rydberg. L'oscillation entre les états $|ss'\rangle$ et $|pp\rangle$ est rompue car les deux atomes dans les états s et s' réagissent chacun avec un atome p environnant suivant les réactions :

$$p + s \longleftrightarrow s + p \tag{4.73}$$

$$p + s' \longleftrightarrow s' + p \tag{4.74}$$

Pour des temps d'évolution Δt longs, le système est un ensemble d'atomes dans les états p, s et s', dans lequel les réactions secondaires entre atomes s et s' expliquent le dépompage résiduel de l'ordre de 30 % (une fois la première paire d'atomes proches $|pp\rangle$ ayant réagi pour donner une paire d'atomes $|ss'\rangle$, les états s s' migrent vers l'extérieur, permettant à la paire d'atomes proches de se trouver une nouvelle fois dans l'état $|pp\rangle$ et de réagir une seconde fois : cette dernière réaction est ce que l'on entend par réaction secondaire).

4.6.5 Conclusion

Nous avons réalisé une spectroscopie haute résolution d'un gaz d'atomes de Rydberg froids en interaction. L'étude du processus de transfert résonant d'énergie nous a permis, dans un premier temps, de résoudre spectroscopiquement le croisement évité témoignant de l'interaction dipôle-dipôle entre deux atomes de Rydberg, puis, dans un deuxième temps, de caractériser la dynamique de cohérence du système [Mudrich et al., 2005].
La cohérence du transfert d'énergie, après excitation de l'état attractif d'une paire d'atomes de Rydberg, semble être détruite, à des échelles de temps inférieures à la microseconde, par les collisions induites par les forces dipolaires. L'excitation de l'état répulsif mène quant à elle à une décohérence du système après ~ 1 μs et semble provenir du phénomène de migration d'excitation, qui témoigne des effets à N corps intervenant dans les réactions de transfert d'énergie.
Ces résultats marquent une profonde avancée dans l'étude de la possibilité d'utiliser des atomes de Rydberg dans le domaine de l'information quantique, domaine dans lequel la manipulation de systèmes cohérents, sur une échelle de temps longs, s'avère indispensable.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

4.7 Conclusion

Un premier aspect du travail présenté dans ce chapitre a consisté à étudier l'initiation du processus d'ionisation dans un gaz d'atomes de Rydberg froids. Cette étude a permis de mettre en avant le rôle des collisions froides entre atomes de Rydberg dans la formation d'un plasma. Plus précisément, l'interaction dipôle-dipôle résonante induit un mouvement des atomes qui entrent en collision et s'ionisent ; ceci a été confirmé par la suite par [Li et al., 2005].

Le rôle primordial de l'interaction dipôle-dipôle dans l'évolution d'un gaz de Rydberg vers un plasma, ainsi que l'intérêt que l'on y porte dans le cadre de l'information quantique, nous ont poussés tout naturellement à l'étudier en détail. Pour cela, nous avons utilisé une spectroscopie optique de haute résolution, en utilisant un laser continu Ti:Sa. Au cours de cette étude nous avons mis en évidence et caractérisé l'effet parasite d'une quantité très faible d'ions (quelques centaines), principalement formés lors de l'excitation des atomes vers les états de Rydberg. La présence de ces ions empêche la réalisation d'une spectroscopie précise et rigoureuse de l'interaction dipôle-dipôle. Nous avons donc mis au point une méthode originale de spectroscopie par dépompage pour sonder le nuage d'atomes de Rydberg en interaction. Malheureusement, dans nos conditions expérimentales actuelles, le moment dipolaire permanent des atomes, excités en présence d'un champ électrique, semble trop faible pour nous permettre la mise en évidence spectroscopique des effets de l'interaction dipolaire. Les effets de cette interaction se sont uniquement manifestés par la création d'ions formés par collisions dipolaires ionisantes.
Une technique originale d'excitation, ne mettant en jeu que des lasers continus, est actuellement en cours d'utilisation. Une diode laser à 1470 nm induit la transition du niveau $6p$ vers le niveau $7s$, puis le laser Ti:Sa excite les atomes du niveau $7s$ vers un état de Rydberg np. Cette approche semble très prometteuse et permettra, entre autres, une étude détaillée des collisions ionisantes induites par l'interaction dipôle-dipôle.

Vu la difficulté que nous avons rencontrée pour mettre en évidence les effets de l'interaction dipolaire entre atomes de Rydberg excités en champ électrique, nous nous sommes attachés à étudier un phénomène résultant de l'interaction dipôle-dipôle résonante bien plus probable et donc plus facile à étudier. Nous avons en effet analysé le phénomène de transfert résonant d'énergie à l'aide de la méthode de spectroscopie par dépompage mise au point. Nous avons pu ainsi résoudre spectroscopiquement le croisement évité témoignant de l'interaction dipôle-dipôle entre deux atomes de Rydberg, et caractériser la dynamique de cohérence de ce système à deux atomes en interaction. Aucun résultat de ce type n'avait été jusqu'à présent rapporté. Le système de deux atomes, baignant dans un environnement avec lequel ils interagissent également, voit sa cohérence détruite dans le meilleur des cas[15] après un temps caractéristique d'environ 1 μs ; cette décohérence provient sans doute du phénomène de migration d'excitation, qui témoigne des effets à N corps intervenant dans les réactions de transfert d'énergie.
Ce dernier résultat permet d'envisager la manipulation des atomes de Rydberg dans le cadre de l'information quantique [Jaksch et al., 2000, Lukin et al., 2001] pendant des temps inférieurs à la microseconde et lorsque les atomes sont excités sur la courbe d'interaction répulsive.

[15] Le meilleur des cas correspond à l'excitation des atomes sur la courbe d'interaction répulsive, situation pour laquelle le temps de cohérence semble bien plus long que lorsque les atomes sont excités sur la courbe attractive et qu'ils sont, par conséquent, sujets à des collisions ionisantes ou des réactions de l-mixing.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Le mouvement des atomes induit par les forces dipolaires pose un réel problème dans le cas d'un potentiel d'interaction attractif. Une solution pour éviter les phénomènes de collisions ionisantes serait de piéger les atomes de Rydberg dans un réseau optique et de contraindre ainsi leur mouvement. Un réseau optique 1D permettrait également d'imposer l'orientation des dipôles par rapport à la direction de l'axe interatomique ; l'interaction dipôle-dipôle serait alors bien définie et l'orientation des dipôles pourrait être choisie de façon à maximiser l'interaction. Il est à noter que nous avons tenté de placer des atomes de Rydberg dans un piège dipolaire constitué par un laser continu CO_2 de forte puissance (≈ 110 W), focalisé au niveau du piège magnéto-optique. Il semble que les atomes de Rydberg soient instantanément ionisés par la lumière de piègeage qui induit des transitions vers le continuum d'ionisation. La longueur d'onde de ce laser ne semble donc pas adaptée pour réaliser un réseau optique dans lequel seraient confinés les atomes de Rydberg.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Conclusion générale

Mon travail de thèse s'est articulé autour de trois expériences différentes, ayant pour thème commun la physique des collisions et des interactions froides. Chacune d'elles possède sa spécificité : la première permet l'étude des collisions élastiques entre atomes froids de césium dans un piège conservatif optique et magnétique ; dans la deuxième, les collisions froides molécule-atome et molécule-molécule au sein d'un piège dipolaire ont été étudiées ; quant à la troisième expérience, elle consistait à sonder l'interaction dipôle-dipôle entre des atomes de Rydberg froids.
Nous allons rappeler les résultats obtenus dans le cadre de ces trois expériences.

Dans la première expérience, un gaz d'atomes de césium froids est transféré dans un piège conservatif original puisqu'il permet leur confinement en utilisant une force magnétique verticale et une force optique dipolaire horizontale. Ce piège permet le confinement d'atomes polarisés dans leur état de plus basse énergie. On s'affranchit alors des collisions inélastiques qui, pour l'atome de césium, rendent impossible toute tentative de condensation de Bose-Einstein dans un piège purement magnétique. Notre travail a consisté à évaluer la possibilité d'atteindre le seuil de dégénérescence quantique avec un tel dispositif. Nous avons pour cela étudié le régime de collisions élastiques au sein du piège [Hoang et al., 2005]. La caractérisation de ce régime a reposé sur l'étude de l'amortissement des oscillations de la taille du nuage en fonction de la longueur de diffusion.

Ce travail a révélé un faible taux de collisions au sein du piège hybride, ce qui est donc peu favorable à l'obtention d'un condensat de Bose-Einstein par refroidissement évaporatif optique ou magnétique [Boussen et al., 2004]. Nous avons évalué qu'il faudrait augmenter la densité au minimum d'un facteur 10 pour envisager un refroidissement évaporatif efficace. De plus, la durée de vie de notre piège conservatif, limitée à environ 3,5 s, réduit encore plus les possibilités d'obtenir un condensat en conservant un tel dispositif.

Après quelques modifications techniques de l'expérience, une nouvelle voie prometteuse a été empruntée pour observer la transition de phase. La condensation devrait être obtenue au sein d'un piège dipolaire croisé, réalisé par deux faisceaux laser Nd:YAG et chargé par un piège magnétique.

La deuxième expérience que nous avons menée a été réalisée sur un dispositif différent. Mon travail a consisté à mettre en place un piège optique dipolaire destiné à confiner des atomes mais également des molécules froids. Ce piège conservatif est obtenu en focalisant un laser CO_2 de forte puissance au sein d'un nuage d'atomes froids. Une fois les atomes transférés dans le piège lumineux, nous formons des molécules froides par photoassociation des atomes confinés. Ce piège dipolaire constitue également un piège conservatif pour les molécules produites. En expulsant les atomes par une impulsion lumineuse résonante, nous avons été capables de réaliser un piège purement moléculaire d'une durée de vie de l'ordre de la seconde, limitée par les collisions avec le gaz résiduel. Cette expérience, permettant la détection directe des molécules, est jusqu'à présent la seule de ce type à avoir obtenu des durées de vie aussi longues. Cette particularité nous a permis d'étudier en détail les phénomènes collisionnels atome-molécule mais également molécule-molécule [Zahzam et al., 2006]. Les taux de collisions inélastiques mesurés pour ces deux processus sont très élevés, de l'ordre de 10^{-11} cm^3 s^{-1}, et ne semblent pas varier avec l'état moléculaire photoassocié. Nous avons photoassocié plusieurs potentiels moléculaires excités, chacun menant théoriquement vers la formation de molécules froides dans des niveaux des deux potentiels fondamentaux différents. Ce résultat est assez surprenant car des études théoriques prédisent des taux de collisions inélastiques qui dépendent fortement du niveau de vibration de la molécule en collision. Il est néanmoins nécessaire, dans notre expérience, de pouvoir contrôler très précisément l'état interne des molécules formées pour définitivement conclure.
La mesure des taux de collisions inélastiques atome-molécule et molécule-molécule montre à quel point il est difficilement envisageable d'atteindre la condensation de Bose-Einstein moléculaire avec l'atome de césium. Ceci est dû à la nature bosonique du césium. Jusqu'à présent, les seuls condensats moléculaires obtenus ont été réalisés à partir d'atomes fermioniques. Toutes les tentatives basées sur l'utilisation d'atomes bosoniques ont échoué à cause des pertes de molécules engendrées par ces collisions inélastiques.
L'obtention d'un échantillon de molécules froides dans l'état de plus basse énergie ($v = 0$, $J = 0$), situation dans laquelle les collisions inélastiques sont supprimées, revêt donc une importance capitale pour atteindre la condensation moléculaire à partir d'espèces bosoniques.

La dernière expérience que nous avons menée a été réalisée sur le dispositif expérimental qui a permis l'étude du piège dipolaire d'atomes et de molécules.
Un premier aspect de ce travail a consisté à étudier l'évolution d'un gaz d'atomes de Rydberg froids vers la formation d'un plasma. Nous nous sommes concentrés plus particulièrement sur les phénomènes physiques entrant en jeu lors de l'initiation du processus qui, jusqu'à maintenant, n'avaient pas été clairement identifiés. En étudiant le rôle des atomes de Rydberg chauds dans la formation d'un plasma, nous avons mis en avant le rôle probable de l'interaction dipôle-dipôle entre atomes de Rydberg froids dans les premiers processus d'ionisation [Li et al., 2004]. L'intérêt incontestable de ces interactions dans le domaine de l'information quantique et leur implication dans la formation d'un plasma froid, nous ont poussés à les étudier en détail.
L'excitation en champ électrique d'atomes de Rydberg dans un état p confère un moment dipolaire électrique permanent aux atomes qui peuvent du coup interagir entre eux. Nous avons par conséquent mis au point une méthode originale de spectroscopie haute résolution d'états de Rydberg pour sonder et mettre en évidence ces interactions dipolaires. La méthode

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

de spectroscopie repose sur l'utilisation d'un laser continu Ti :Sa d'une largeur spectrale de l'ordre du mégahertz. Cependant, ce schéma d'excitation a fait apparaître des ions qui influençaient grandement la forme des raies d'excitation et empêchaient toute mise en évidence de l'interaction dipôle-dipôle. Nous avons par conséquent caractérisé l'effet de ces ions sur notre spectroscopie et trouvé un moyen de s'en affranchir par une nouvelle méthode spectrocopique, dite de dépompage. Cette méthode consiste, dans un premier temps, à exciter les atomes vers les états de Rydberg puis, une fois les ions éjectés par un champ électrique, à stimuler la désexcitation des atomes de Rydberg vers un état fortement lié. Un "trou", traduisant le dépompage des atomes de Rydberg apparaît alors dans le spectre d'excitation. L'analyse de ce trou, nous permet de sonder le nuage d'atomes de Rydberg en interaction. Malheureusement, même en s'affranchissant de l'effet parasite des ions, nous n'avons pas pu mettre en évidence spectroscopiquement l'interaction dipôle-dipôle, sans doute trop faible, entre les atomes de Rydberg. Nous avons tout de même observé l'apparition d'ions qui semble témoigner de l'effet indirect de l'interaction dipôle-dipôle. Ces ions proviendraient de collisions ionisantes induites par la force dipolaire qui attire deux atomes l'un vers l'autre. Pour des raisons techniques, nous n'avons pas pu analyser immédiatement en détail ce phénomène. Une étude est actuellement en cours à cette fin.

Face à la difficulté rencontrée de mettre en évidence l'interaction dipolaire entre atomes de Rydberg excités en champ électrique, nous avons étudié le phénomène bien plus probable de transfert résonant d'énergie, qui est le résultat clairement démontré de l'interaction dipôle-dipôle entre atomes de Rydberg. A l'aide des méthodes de spectroscopie haute résolution que nous avons mises au point, nous avons été capables d'une part, de résoudre le croisement évité témoignant de l'interaction dipolaire entre deux atomes de Rydberg et d'autre part, de caractériser la dynamique de cohérence du système de deux atomes en interaction. Aucun résultat de ce type n'avait été juqu'à présent rapporté [Mudrich et al., 2005].
Les résultats de cette étude nous montrent que lorsque le système de deux atomes est excité vers un état attractif, les forces dipolaires semblent induire des processus de collisions ionisantes ou de "l-mixing", brisant immédiatement la cohérence de l'interaction entre les deux atomes. Par contre, lorsque le système de deux atomes est excité vers un état répulsif, la cohérence est détruite après un temps caractéristique d'environ 1 μs. Cette décohérence provient sans doute du phénomène de migration d'excitation, qui témoigne des effets à N corps intervenant dans les réactions de transfert d'énergie. En effet, les deux atomes ne sont pas isolés, mais interagissent également avec les atomes de Rydberg alentour. Ce dernier résultat permet d'envisager la manipulation des atomes de Rydberg dans le cadre de l'information quantique, pendant des temps inférieurs à la microseconde et lorsque les atomes sont excités sur des courbes d'interaction répulsive.

Ces trois années de thèse m'ont permis de découvrir et d'approfondir sous des angles différents le vaste domaine d'application des collisions et des interactions froides qui ne cesse de s'enrichir de nouvelles découvertes à un rythme effréné.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Bibliographie

[Abraham et al., 1995a] Abraham, E. R. I., McAlexander, W. I., Sackett, C. A., and Hulet, R. (1995a). Spectroscopic determination of the s-wave scattering length of lithium. *Phys. Rev. Lett.*, **74** :1315.

[Abraham et al., 1995b] Abraham, E. R. I., Ritchie, N. W. M., McAlexander, W. I., and Hulet, R. G. (1995b). Photoassociative spectroscopy of long-range states of ultracold $^6Li_2$ and $^7Li_2$. *J. Chem. Phys.*, **103** :7773.

[Afrousheh et al., 2004] Afrousheh, K., Bohlouli-Zanjani, P., Vagale, D., Mugford, A., Fedorov, M., and Martin, J. D. D. (2004). Spectroscopic Observation of Resonant Electric Dipole-Dipole Interactions between Cold Rydberg Atoms. *Phys. Rev. Lett.*, **93** :233001.

[Akulin et al., 1999] Akulin, V. M., de Tomasi, F., Mourachko, I., and Pillet, P. (1999). Level-band problem and many-body effects in a cold Rydberg atoms. *Physica D*, **131** :125.

[Al Khawaja et al., 2000] Al Khawaja, U., Pethick, C. J., and Smith, H. (2000). Kinetic theory of collective modes in atomic clouds above the Bose-Einstein transition temperature. *Journal of low temperature physics*, **118** :127.

[Anderson et al., 1995] Anderson, M. H., Ensher, J. R., Matthews, M. R., Wieman, C. E., and Cornell, E. A. (1995). Observation of Bose-Einstein condensation in a dilute atomic vapor. *Science*, **269** :198.

[Anderson, 1996] Anderson, W. R. (1996). *Resonant Dipole-Dipole Collisions of Rydberg Atoms in a Magneto-Optical Trap*. PhD thesis, University of Virginia.

[Anderson et al., 2002] Anderson, W. R., Robinson, M. P., Martin, J. D. D., and Gallagher, T. F. (2002). Dephasing of resonant energy transfer in a cold Rydberg gas. *Phys. Rev. A*, **65** :063404.

[Anderson et al., 1998] Anderson, W. R., Veale, J. R., and Gallagher, T. F. (1998). Resonant Dipole-Dipole Energy Transfer in a Nearly Frozen Rydberg Gas. *Phys. Rev. Lett.*, **80** :249.

[Arlt et al., 1998] Arlt, J., Bance, P., Hopkins, S., Martin, J., Webster, S., Wilson, A., Zetie, K., and Foot, C. J. (1998). Suppression of collisional loss from a magnetic trap. *J. Phys. B*, **31** :L321.

[Arndt et al., 1997] Arndt, M., Ben-Dahan, M., Guéry-Odelin, D., Reynolds, M. W., and Dalibard, J. (1997). Observation of a Zero-Energy Resonance in Cs-Cs Collisions. *Phys. Rev. Lett.*, **79** :625.

[Azizi et al., 2004] Azizi, S., Aymar, M., and Dulieu, O. (2004). Prospects for the formation of ultracold ground state polar molecules from mixed alkali atom pairs. *Eur. Phys. J. D*, **31** :195.

[Bahns et al., 1996] Bahns, J. T., Stwalley, W. C., and Gould, P. L. (1996). Laser cooling of molecules : a sequential scheme for rotation, translation, and vibration. *J. Chem. Phys.*, **104** :9689.

[Balakrishnan et al., 1998] Balakrishnan, N., Forrey, R. C., and Dalgarno, A. (1998). Quenching of H_2 Vibrations in Ultracold ^3He and ^4He Collisions. *Phys. Rev. Lett.*, **80** :3224.

[Balykin et al., 2000] Balykin, V. I., Minogin, V. G., and Letokhov, V. S. (2000). Electromagnetic trapping of cold atoms. *Rep. Prog. Phys.*, **63** :1429–1510.

[Barrett et al., 2001] Barrett, M. D., Sauer, J. A., and Chapman, M. S. (2001). All-Optical Formation of an Atomic Bose-Einstein Condensate. *Phys. Rev. Lett.*, **87** :010404.

[Bennett and DiVincenzo, 2000] Bennett, C. H. and DiVincenzo, D. P. (2000). Quantum information and computation. *Nature*, **404** :247.

[Bethe and Salpeter, 1957] Bethe, H. A. and Salpeter, E. A. (1957). *Quantum Mechanics of One- and Two-Electron Atoms*. Springer Verlag, Berlin.

[Bethlem et al., 2000] Bethlem, H. L., Berden, G., Crompvoets, F. M. H., Jongma, R. T., van Roij, A. J. A., and Meijer, G. (2000). Electrostatic trapping of ammonia molecules. *Nature*, **406** :491.

[Bethlem et al., 1999] Bethlem, H. L., Berden, G., and Meijer, G. (1999). Decelerating neutral dipolar molecules. *Phys. Rev. Lett.*, **83** :1558.

[Bjorkholm et al., 1978] Bjorkholm, J. E., Freeman, R. R., Ashkin, A., and Pearson, D. B. (1978). Observation of focusing of neutral atoms by the dipole forces of resonance-radiation pressure. *Phys. Rev. Lett.*, **41** :1361–1364.

[Bleton, 1996] Bleton, A. (1996). *Contribution expérimentale et théorique à l'étude de la photoassociation d'atomes de césium refroidis dans un piège magnéto-optique*. PhD thesis, Université Paris VI.

[Boesten et al., 1997] Boesten, H. M. J. M., Tsai, C. C., Gardner, J. R., Heinzen, D. J., and Verhaar, B. J. (1997). Observation of a shape resonance in the collision of two cold ^{87}Rb atoms. *Phys. Rev. A*, **55** :636.

[Bohn and Julienne, 1999] Bohn, J. L. and Julienne, P. S. (1999). Semianalytic theory of laser-assisted cold collisions. *Phys. Rev. A*, **60**(1) :414–425.

[Boisseau et al., 2002] Boisseau, C., Simbotin, I., and Côté, R. (2002). Macrodimers : Ultralong Range Rydberg Molecules. *Phys. Rev. Lett.*, **88** :133004.

[Bouloufa et al., 1995] Bouloufa, N., Cacciani, P., Delande, D., Delsart, C., Gay, J. C., and anf J. Pinard, E. L.-K. (1995). Experimental observation of the transition from regularity to chaos in diamagnetic Rydberg spectra. *J. Phys. B*, **28** :L755.

[Bourdel et al., 2004] Bourdel, T., Khaykovich, L., Cubizolles, J., Zhang, J., Chevy, F., Teichmann, M., Tarruel, L., Kokkelmans, S. J. J. M. F., and Salomon, C. (2004). Experimental Study of the BEC-BCS Crossover Region in Lithium 6. *Phys. Rev. Lett.*, **93** :050401.

[Boussen, 2002] Boussen, S. (2002). *Etude d'un piège hybride magnétique et optique pour la condensation de Bose-Einstein de l'atome de césium*. PhD thesis, Université Paris XI.

[Boussen et al., 2004] Boussen, S., Hoang, N., Guibal, S., Zahzam, N., Pruvost, L., Marescaux, D., Pinard, J., and Pillet, P. (2004). Prospect for BEC in a cesium gas : one dimensional evaporative cooling in a hybrid magnetic and optical trap. *Eur. Phys. J. D*, **28** :259.

[Bradley et al., 1995] Bradley, C. C., Sackett, C. A., Tollett, J. J., and Hulet, R. G. (1995). Evidence of Bose-Einstein condensation in an atomic gas with attractive interactions. *Phys. Rev. Lett.*, **75** :1687.

[Brennen et al., 1999] Brennen, G. K., Caves, C. M., Jessen, P. S., and Deutsch, I. H. (1999). Quantum Logic Gates in Optical Lattices. *Phys. Rev. Lett.*, **82** :1060.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

[Brieger, 1984] Brieger, M. (1984). Stark effect, polarizabilities and the electric dipole moment of heteronuclear diatomic molecules in $^1\Sigma$ states. *Chem. Phys.*, **89** :275–295.

[Carroll et al., 2004] Carroll, T. J., Claringbould, K., Goodsell, A., Lim, M. J., and Noel, M. (2004). Angular dependence of the Dipole-Dipole Interaction in a Nearly One-Dimensional Sample of Rydberg Atoms. *Phys. Rev. Lett.*, **93** :153001.

[Chin et al., 2005] Chin, C., Kraemer, T., Mark, M., Herbig, J., Waldburger, P., Nägerl, H. C., and Grimm, R. (2005). Observation of Feshbach-Like Resonances in Collisions between Ultracold Molecules. *Phys. Rev. Lett.*, **94** :123201.

[Chin et al., 2000] Chin, C., Vuletic, V., Kerman, A. J., and Chu, S. (2000). High resolution Feshbach spectroscopy of cesium. *Phys. Rev. Lett.*, **85** :2717.

[Chu, 1998] Chu, S. (1998). The manipulation of neutral particules. *Rev. Mod. Phys.*, **70** :685.

[Chu et al., 1986] Chu, S., Bjorkholm, J. E., Ashkin, A., and Cable, A. (1986). Experimental observation of optically trapped atoms. *Phys. Rev. Lett.*, **57** :314–317.

[Chuang et al., 1998] Chuang, I. L., Vandersypen, L. M. K., Zhou, X., Leung, D. W., and Lloyd, S. (1998). Experimental realization of a quantum algorithm. *Nature*, **393** :143.

[Cline and Heinzen, 1993] Cline, J. D. M. R. A. and Heinzen, D. J. (1993). Photoassociation spectrum of ultracold Rb atoms. *Phys. Rev. Lett.*, **71** :2204.

[Cohen-Tannoudji, 1992] Cohen-Tannoudji, C. (1992). Laser cooling and trapping of neutral atoms : theory. *Phys. Rep.*, **219** :153.

[Cohen-Tannoudji, 1997] Cohen-Tannoudji, C. (1996-1997). Atomes ultrafroids - Piégeage non dissipatif et refroidissement évaporatif. In *Cours de Physique atomique et moléculaire.* Collège de France.

[Cohen-Tannoudji, 1998a] Cohen-Tannoudji, C. (1997-1998a). Condensation de Bose-Einstein ; gaz sans interaction. In *Cours de Physique atomique et moléculaire.* Collège de France.

[Cohen-Tannoudji, 1998b] Cohen-Tannoudji, C. (1998b). Manipulating atoms with photons. *Rev. Mod. Phys.*, **70** :707.

[Cohen-Tannoudji et al., 1996] Cohen-Tannoudji, C., Diu, B., and Laloé, F. (1996). *Mécanique quantique.* Hermann, Paris.

[Cohen-Tannoudji et al., 1988] Cohen-Tannoudji, C., Dupond-Roc, J., and Grynberg, G. (1988). *Processus d'Interaction entre Photons et Atomes.* InterEdition, Paris.

[Comparat, 1999] Comparat, D. (1999). *Molécules froides : Formation de molécules froides par photoassociation d'atomes froids de césium. Mise en évidence de forces à longue portée entre atomes froids excités de césium.* PhD thesis, Université Paris XI Orsay.

[Comparat et al., 2000] Comparat, D., Drag, C., Laburthe-Tolra, B., Fioretti, A., Pillet, P., Crubellier, A., Dulieu, O., and Masnou-Seeuws, F. (2000). Formation of cold Cs_2 ground state molecules through photoassociation in the 1_u pure long-range state. *Eur. Phys. J. D*, **11** :59.

[Cooke and Gallagher, 1980] Cooke, W. E. and Gallagher, T. F. (1980). Effects of blackbody radiation on highly excited atoms. *Phys. Rev. A*, **21** :588.

[Crompvoets et al., 2001] Crompvoets, F. M. H., Bethlem, H. L., Jongma, R. T., and Meijer, G. (2001). A prototype storage ring for neutral molecules. *Nature*, **411** :174.

[Cubizolles et al., 2003] Cubizolles, J., Bourdel, T., Kokelmans, S. J. J. M. F., Shlyapnikov, G. V., and Salomon, C. (2003). Production of Long-Lived Ultracold Li_2 Molecules from a Fermi Gas. *Phys. Rev. Lett.*, **91** :240401.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

[Cvitas et al., 2005] Cvitas, M. T., Soldan, P., and Hutson, J. M. (2005). Ultracold Li + Li_2 Collisions : Bosonic and Fermionic Cases. *Phys. Rev. Lett.*, **94** :033201.

[Dalfovo et al., 1999] Dalfovo, F., Giorgini, S., Pitaevskii, L. P., and Stringari, S. (1999). Theory of Bose-Einstein condensation in trapped gases. *Rev. Mod. Phys.*, **71** :463.

[Dalibard, 1998] Dalibard, J. (1998). Collisional dynamics of ultra-cold atomic gases. In *Bose-Einstein Condesation in Atomic Gases*, page 321, Varenna, Italie. Enrico Fermi Summer School.

[Dalibard and Cohen-Tannoudji, 1985] Dalibard, J. and Cohen-Tannoudji, C. (1985). Dressed-atom approach to atomic motion in laser light : the dipole force revisited. *J. Opt. Soc. Am. B*, **2** :1707–1720.

[Davis et al., 1995] Davis, K. B., Mewes, M. O., Andrews, M. R., van Druten, N. J., Durfee, D. S., Kurn, D. M., and Ketterle, W. (1995). Bose-Einstein condensation in a gas of sodium atoms. *Phys. Rev. Lett.*, **75** :3969.

[Dion et al., 2001] Dion, C., Drag, C., Dulieu, O., Laburthe-Tolra, B., Masnou-Seeuws, F., and Pillet, P. (2001). Resonant coupling in the formation of ultracold ground state molecules via photoassociation. *Phys. Rev. Lett.*, **86** :2253.

[Dion et al., 2002] Dion, C., Dulieu, O., Comparat, D., de Souza Melo, W., Vanhaecke, N., Pillet, P., Beuc, R., Milosevic, S., and Pichler, G. (2002). Photoionization and detection of ultracold Cs_2 molecules through diffuse bands. *Eur. Phys. J. D*, **18** :365.

[Donley et al., 2002] Donley, E. A., Claussen, N. R., Thompson, S. T., and Wieman, C. E. (2002). Atom-molecule coherence in a Bose-Einstein condensate. *Nature*, **417** :529.

[Doyle et al., 2004] Doyle, J., Friedrich, B., Krems, R. V., and Masnou-Seeuws, F. (2004). Editorial. Quo vadis, cold molecules ? *Eur. Phys. J. D*, **31** :149.

[Drag, 2000] Drag, C. (2000). *Photoassociation d'atomes de césium froids. Formation et caractérisation d'un nuage froid de molécules diatomiques de césium.* PhD thesis, Université Paris XI Orsay.

[Drag et al., 2000] Drag, C., Laburthe-Tolra, B., T'Jampens, B., Comparat, D., Crubellier, M., and Pillet, P. (2000). Photoassociative spectroscopy as a self-sufficient tool for the determination of the Cs triplet scattering length. *Phys. Rev. Lett.*, **85** :1408.

[Dürr et al., 2004] Dürr, S., Volz, T., Marte, A., and Rempe, G. (2004). Observation of Molecules Produced from a Bose-Einstein Condensate. *Phys. Rev. Lett.*, **92** :020406.

[Dulieu et al., 2003] Dulieu, O., Amiot, C., Gutterres, R., and Masnou-Seews, F. (2003). Accurate Determination of Cs($6^2P_{1/2,3/2}$) Atomic Radiative Lifetimes from Photoassociation Spectroscopy. In *Interactions in Ultracold Gases*, page 447. Enrico Fermi Summer School : From Atoms to Molecules.

[Dutta et al., 2001] Dutta, S. K., Feldbaum, D., Walz-Flannigan, A., Guest, J. R., and Raithel, G. (2001). High-Angular-Momentum States in Cold Rydberg Gases. *Phys. Rev. Lett.*, **86** :3993.

[Engler, 2000] Engler, H. (2000). *A quasi-electrostatic trap for neutral atoms.* PhD thesis, Universität Heidelberg.

[Engler et al., 2000] Engler, H., Weber, T., Mudrich, M., Grimm, R., and Weidemüller, M. (2000). Very long storage times and evaporative cooling of cesium atoms in a quasielectrostatic dipole trap. *Phys. Rev. A*, **62** :R031402.

[Fabre, 1982] Fabre, C. (1982). Etats très excités des atomes alcalins. I. Description générale et propriétés radiatives. *Ann. Phys.*, **7** :5.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

[Fabre, 2000] Fabre, C. (2000). Atomes et lumière - Interaction matière rayonnement. Cours du D.E.A. de Physique Quantique.

[Farooqi et al., 2003] Farooqi, S. M., Tong, D., Krishnan, S., Stanojevic, J., Zhang, Y. P., Ensher, J. R., Estrin, A. S., Boisseau, C., and Côté, R. (2003). Long-Range Molecular Resonances in a cold Rydberg Gas. *Phys. Rev. Lett.*, **91** :183002.

[Feldbaum et al., 2002] Feldbaum, D., Morrow, N. V., Dutta, S. K., and Raithel, G. (2002). Coulomb Expansion of Laser-Excited Ion Plasmas. *Phys. Rev. Lett.*, **89** :173004.

[Fioretti et al., 1998] Fioretti, A., Comparat, D., Crubellier, A., Dulieu, O., Masnou-Seeuws, F., and Pillet, P. (1998). Formation of Cs_2 cold molécules through photoassociation. *Phys. Rev. Lett.*, **80** :4402.

[Fioretti et al., 1999a] Fioretti, A., Comparat, D., Drag, C., Amiot, C., Dulieu, O., Masnou-Seeuws, F., and Pillet, P. (1999a). Photoassociative spectroscopy of the Cs_2 0_g^- long-range state. *Eur. Phys. J. D*, **5** :389.

[Fioretti et al., 1999b] Fioretti, A., Comparat, D., Drag, C., Gallagher, T. F., and Pillet, P. (1999b). Long-Range Forces between Cold Atoms. *Phys. Rev. Lett.*, **82** :1839.

[Fioretti et al., 2004] Fioretti, A., Lozeille, J., Massa, C. A., Mazzoni, M., and Gabbanini, C. (2004). An optical trap for cold rubidium molecules. *Opt. Comm.*, **243** :203.

[Frasier et al., 1999] Frasier, J. S., Celli, V., and Blum, T. (1999). Resonant processes in a frozen gas. *Phys. Rev. A*, **59** :4358.

[Fried et al., 1998] Fried, D. G., Killian, T. C., Willmann, L., Landhuis, D., Moss, S. C., Kleppner, D., and Greytak, T. J. (1998). Bose-Einstein condensation of atomic hydrogen. *Phys. Rev. Lett.*, **81** :3811.

[Friedrich and Herschbach, 1995] Friedrich, B. and Herschbach, D. (1995). Alignment and trapping of molecules in intense laser fields. *Phys. Rev. Lett.*, **74**(23) :4623–4626.

[Förster, 1959] Förster, T. (1959). Transfer Mechanisms of Electronic Excitation. *Discuss. Faraday Soc.*, **27** :7.

[Gallagher, 1992] Gallagher, T. F. (1992). Resonant collisional energy transfer between rydberg atoms. *Physics reports*, **210** :319.

[Gallagher, 1994] Gallagher, T. F. (1994). *Rydberg Atoms*. Cambridge monographs on atomic, molecular and chemical physics. Cambridge University Press, Cambridge.

[Gallagher et al., 1982] Gallagher, T. F., Safinya, K. A., Gounand, F., Delpech, J. F., Sandner, W., and Kachru, R. (1982). Resonant Rydberg-atom–Rydberg-atom Collisions. *Phys. Rev. A*, **25** :1905.

[Gounand, 1979] Gounand, F. (1979). Calculation of radial matrix elements and radiative lifetimes for highly excited states of alkali atoms using the coulomb approximation. *J. Phys. (Paris)*, **40** :457.

[Goy et al., 1982] Goy, P., Raymond, J. M., Vitrant, G., and Haroche, S. (1982). Millimeter-wave spectroscopy in cesium Rydberg states. Quantum defects, fine- and hyperfine-structure measurements. *Phys. Rev. A*, **26** :2733.

[Greene et al., 2000] Greene, C. H., Dickinson, A. S., and Sadeghpour, H. R. (2000). Creation of Polar and Nonpolar Ultra-Long-Range Rydberg Molecules. *Phys. Rev. Lett.*, **85** :2458.

[Greiner et al., 2003] Greiner, M., Regal, C. A., and Jin, D. S. (2003). Emergence of a molecular Bose-Einstein condensate from a Fermi gas. *Nature*, **426** :537.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

[Griesmaier et al., 2005] Griesmaier, A., J.Werner, Hensler, S., Stuhler, J., and Pfau, T. (2005). Bose-Einstein Condensation of Chromium. *Phys. Rev. Lett.*, **94** :160401.

[Guery-Odelin, 1998a] Guery-Odelin, D. (1998a). *Dynamique collisionnelle des gaz d'alcalins lourds : Du refroidissement évaporatif à la condensation de Bose-Einstein.* PhD thesis, Université Paris VI.

[Guery-Odelin, 1998b] Guery-Odelin, D. (1998b). *Dynamique collisionnelle des gaz d'alcalins lourds : Du refroidissement évaporatif à la condensation de Bose-Einstein.* PhD thesis, Laboratoire Kastler Brossel.

[Guéry-Odelin et al., 1998a] Guéry-Odelin, D., Söding, J., Desbiolles, P., and Dalibard, J. (1998a). Is Bose-Einstein condensation of atomic cesium possible ? *Europhys. Lett.*, **44** :25.

[Guéry-Odelin et al., 1998b] Guéry-Odelin, D., Söding, J., Desbiolles, P., and Dalibard, J. (1998b). Strong evaporative Cooling of a Trapped Cesium Gas. *Optics Express*, **2** :323.

[Guéry-Odelin et al., 1999] Guéry-Odelin, D., Zambelli, F., Dalibard, J., and Stringari, S. (1999). Collective oscillations of a classical gas confined in harmonic traps. *Phys. Rev. A*, **60** :4851.

[Heinzen, 1998] Heinzen, D. J. (1998). Ultracold Atomic Interactions. In *Bose-Einstein Condesation in Atomic Gases*, page 351, Varenna, Italie. Enrico Fermi Summer School.

[Helmerson and Phillips, 1998] Helmerson, K. and Phillips, W. D. (1998). Cooling, trapping and manipulation of neutral atoms and BEC by electromagnetic fields. In *Bose-Einstein Condesation in Atomic Gases*, page 394, Varenna, Italie. Enrico Fermi Summer School.

[Herbig et al., 2003] Herbig, J., Kraemer, T., Mark, M., Weber, T., Chin, C., Nägerl, H. C., and Grimm, R. (2003). Preparation of a Pure Molecular Quantum Gas. *Science*, **301** :1510.

[Herzberg, 1950] Herzberg, G. (1989 (réédition corrigée de 1950)). *Volume I - Spectra of Diatomic Molecules.* Molecular Spectra and Molecular Structure. Krieger Publishing Company, Malabar, Florida.

[Hettich et al., 2002] Hettich, C., Schmitt, C., Zitzmann, J., Kühn, S., Gerhardt, I., and Sandoghdar, V. (2002). Nanometer Resolution and Coherent Optical Dipole Coupling of Two Individual molecules. *Science*, **298** :385.

[Hinds, 1997] Hinds, E. A. (1997). Testing time reversal symetry using molecules . *Phys. Scripta*, **T70** :34.

[Hoang, 2003] Hoang, N. (2003). *Développement d'un piège atomique lumineux et magnétique : Etude du régime de collisions, Perspectives pour la condensation de Bose-Einstein du césium.* PhD thesis, Université Paris XI Orsay.

[Hoang et al., 2005] Hoang, N., Zahzam, N., Guibal, S., and Pillet, P. (2005). Collisions in a cesium hybrid optical and magnetic trap. *Eur. Phys. J. D*, **36** :95.

[Hopkins et al., 2000] Hopkins, S. A., Webster, S., Arlt, J., Bance, P., Cornish, S., Marago, O., and Foot, C. J. (2000). Measurement of elastic cross section for cold cesium atoms. *Phys. Rev. A*, **61** :032707.

[Hu and Schulten, 1997] Hu, X. and Schulten, K. (1997). How Nature Harvests Sunlight. *Physics Today*, page 28.

[Inouye et al., 1998] Inouye, S., Andrews, M. R., Stenger, J., Miesner, H. J., Stamper-Kurn, D. M., and Ketterle, W. (1998). Observation of Feshbach resonances in a Bose-Einstein condensate. *Nature*, **392** :151.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

[Inouye et al., 2004] Inouye, S., Goldwin, J., Olsen, M. L., Ticknor, C., Bohn, J. L., and Jin, D. S. (2004). Observation of Heteronuclear Feshbach Resonances in a Mixture of Bosons and Fermions. *Phys. Rev. Lett.*, **93** :183201.

[Jaksch et al., 2000] Jaksch, D., Cirac, J. I., Zoller, P., Rolston, S. L., Côté, R., and Lukin, M. D. (2000). Fast Quantum Gates for Neutral Atoms. *Phys. Rev. Lett.*, **85** :2208.

[Javanainen and Mackie, 1998] Javanainen, J. and Mackie, M. (1998). Probability of photoassociation from a quasicontinuum approach. *Phys. Rev. A*, **58** :R789.

[Jochim et al., 2003a] Jochim, S., Bartenstein, M., Altmeyer, A., Hendl, G., Chin, C., Denschlag, J. H., and Grimm, R. (2003a). Pure Gas of Optically Trapped Molecules Created from Fermionic Atoms. *Phys. Rev. Lett.*, **91** :240402.

[Jochim et al., 2003b] Jochim, S., Bartenstein, M., Altmeyer, A., Hendl, G., Riedl, S., Chin, C., Denschlag, J. H., and Grimm, R. (2003b). Bose-Einstein Condensation of Molecules. *Science*, **302** :2101.

[Jones et al., 1999] Jones, K. M., Lett, P. D., Tiesinga, E., and Julienne, P. S. (1999). Fitting line shapes in photoassociation spectroscopy of ultracold atoms : A useful approximation. *Phys. Rev. A*, **61** :012501.

[Julienne et al., 2004] Julienne, P. S., Tiesinga, E., and Koehler, T. (2004). Making cold molecules by time-dependent Feshbach resonances. *J. Mod. Opt.*, **51** :1787.

[Julienne and Vigué, 1991] Julienne, P. S. and Vigué, J. (1991). cold collisions of ground- and excited-state alkali-metal atoms. *Phys. Rev. A*, **44** :4464.

[Kavoulakis et al., 1998] Kavoulakis, G. M., Pethick, C. J., and Smith, H. (1998). Damping of hydrodynamic modes in a trapped Bose gas above the Bose-Einstein transition temperature. *Phys. Rev. A*, **57** :2938.

[Kerman et al., 2004a] Kerman, A. J., Sage, J. M., Sainis, S., Bergeman, T., and DeMille, D. (2004a). Photoassociation and state-selective detection of ultracold RbCs molecules. *Phys. Rev. Lett.*, **92** :153001.

[Kerman et al., 2004b] Kerman, A. J., Sage, J. M., Sainis, S., Bergeman, T., and DeMille, D. (2004b). Production of ultracold, polar RbCs* molecules via photoassociation. *Phys. Rev. Lett.*, **92** :033004.

[Ketterle et al., 1998] Ketterle, W., Durfee, D. S., and Stamper-Kurn, D. M. (1998). Making, probing and understanding Bose-Einstein condensates. In *Bose-Einstein Condesation in Atomic Gases*, page 67, Varenna, Italie. Enrico Fermi Summer School.

[Killian et al., 1999] Killian, T. C., Kulin, S., Bergeson, S. D., Oroczo, L. A., Orzel, C., and Rolston, S. L. (1999). Creation of an Ultracold Neutral Plasma. *Phys. Rev. Lett.*, **83** :4776.

[Killian et al., 2001] Killian, T. C., Lim, M. J., Kulin, S., Dumke, R., Bergeson, S. D., and Rolston, S. L. (2001). Formation of Rydberg Atoms in an Expanding Ultracold Neutral Plasma. *Phys. Rev. Lett.*, **86** :3759.

[Kim et al., 1997] Kim, J., Friedrich, B., Katz, D. P., Patterson, D., Weinstein, J. D., and deCarvalho, R. (1997). Buffer-gas loading and magnetic trapping of atomic europium. *Phys. Rev. Lett.*, **78** :3665.

[Kleppner, 2004] Kleppner, D. (2004). Professor Feshbach and his resonance. *Phys. Today*, **57** :12.

[Koch et al., 2005] Koch, C. P., Masnou-Seeuws, F., and Kosloff, R. (2005). Creating Ground State Molecules with Optical Feshbach Resonances in Tight Traps. *Phys. Rev. Lett.*, **94** :193001.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

[Kokkelmans et al., 1998] Kokkelmans, S. J. J. M. F., Verhaar, B. J., and Gibble, K. (1998). Prospects for Bose-Einstein condensation in cesium. *Phys. Rev. Lett.*, **81** :951.

[Kotochigova et al., 2000] Kotochigova, S., Tiesinga, E., and Julienne, P. (2000). Relativistic ab initio treatment of the second order spin-orbit splitting of the $a^3\Sigma_u^+$ potential of rubidium and cesium dimers. *Phys. Rev. A*, **63** :012517.

[Kraemer et al., 2004] Kraemer, T., Herbig, J., Mark, M., Weber, T., Chin, C., Nägerl, H.-C., and Grimm, R. (2004). Optimized production of a cesium Bose Einstein condensate. *Appl. Phys. B*, **79** :1013.

[Kraft et al., 2005] Kraft, S. D., Mudrich, M., Staudt, M. U., Lange, J., Dulieu, O., Wester, R., and Weidemüller, M. (2005). Saturation of Cs_2 photoassociation in an optical dipole trap. *Phys. Rev. A*, **71** :013417.

[Kurucz and Bell, 1995] Kurucz, R. L. and Bell, B. (1995). *Atomic line data.* Cambridge, Mass., Smithsonian Astrophysical observatory.

[Kuzmin and O'Neil, 2002] Kuzmin, S. G. and O'Neil, T. M. (2002). Numerical Simulation of Ultracold Plasmas : How Rapid Intrinsic Heating Limits the Development of Correlation. *Phys. Rev. Lett.*, **88** :065003.

[Laburthe-Tolra, 2001] Laburthe-Tolra, B. (2001). *Atomes, molécules et plasmas ultra-froids : - Transition d'un gaz de Rydberg gelé vers un plasma ultra-froid. - Contrôle de collsions de photoassociation dans des schémas de résonance de Feshbach et de transition Raman stimulée.* PhD thesis, Université Paris XI Orsay.

[Laburthe Tolra et al., 2003] Laburthe Tolra, B., Hoang, N., T'Jampens, B., Vanhaecke, N., Drag, C., Crubellier, A., Comparat, D., and Pillet, P. (2003). Controlling the formation of cold molecules via a Feshbach resonance. *Europhys. Lett.*, **64** :171.

[Landau and Lifchitz, 1966] Landau, L. and Lifchitz, E. (1966). *Physique théorique - TOME 3 Mécanique quantique.* MIR MOSCOU.

[Lankjuijzen and Noordam, 1996] Lankjuijzen, G. M. and Noordam, L. D. (1996). Rydberg ionization : From field to photon. *Adv. At. Mol. Opt. Phys.*, **38** :121.

[Lemonde et al., 1995] Lemonde, P., Morice, O., Peik, E., Reichel, J., Perrin, H., Hänsel, W., and Salomon, C. (1995). An Opto-electric Trap for Cold Atoms. *Europhys. Lett.*, **32** :555–560.

[Leo et al., 1998] Leo, P. J., Williams, C. J., Julienne, P. S., Walter, D. K., Kadlecek, S., and Walker, T. G. (1998). Elactic and inelastic collisions of cold spin-polarized ^{133}Cs atoms. *Phys. Rev. Lett.*, **81** :1389.

[Letokhov, 1968] Letokhov (1968). Narrowing of the Doppler width in a standing light wave. *JETP Lett.*, **7** :272.

[Lett et al., 1993] Lett, P. D., Helmerson, K., Ratliff, W. D. P. L. P., Rolston, S. L., and Wagshul, M. (1993). Spectroscopy of Na_2 by photoassociation of laser-cooled Na. *Phys. Rev. Lett.*, **71** :2200.

[Li, 2005] Li, W. (2005). *Probing Dipole-Dipole Interactions in a Frozen Rydberg Gas with Millimeter Waves.* PhD thesis, University of Virginia.

[Li et al., 2004] Li, W., Noel, M. W., Robinson, M. P., Tanner, P. J., Gallagher, T. F., Comparat, D., Laburthe-Tolra, B., Vanhaecke, N., Vogt, T., Zahzam, N., Pillet, P., and Tate, D. (2004). Evolution dynamics of a dense frozen Rydberg gas to plasma. *Phys. Rev. A*, **70** :042713.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

[Li et al., 2005] Li, W., Tanner, P. J., and Gallagher, T. F. (2005). Dipole-Dipole Excitation and Ionization in an Ultracold Gas of Rydberg Atoms. *Phys. Rev. Lett.*, **94** :173001.

[Lisdat et al., 2002] Lisdat, C., Vanhaecke, N., Comparat, D., and Pillet, P. (2002). Line shape analysis of two-colour photoassociation spectra on the example of the Cs_2 ground state. *Eur. Phys. J. D*, **21** :299.

[Léonard et al., 2003] Léonard, J., Walhout, M., Mosk, A. P., Müller, T., Leduc, M., and Cohen-Tannoudji, C. (2003). Helium Dimers Produced by Photoassociation of Ultracold Metastable Atoms. *Phys. Rev. Lett.*, **91** :073203.

[Lukin et al., 2001] Lukin, M. D., Fleischhauer, M., Côté, R., Duan, L. M., Jaksch, D., Cirac, J. I., and Zoller, P. (2001). Dipole Blockade and Quantum Information Processing in Mesoscopic Atomic Ensembles. *Phys. Rev. Lett.*, **87** :037901.

[Makarov and Fedorov, 1976] Makarov, V. P. and Fedorov, M. V. (1976). Rotational spectrum of diatomic molecules in the field of an intense electromagnetic wave. *Sov. Phys. JETP*, **43**(4) :615–621.

[Mancini et al., 2004] Mancini, M. W., Telles, G. D., Caires, A. R. L., Bagnato, V. S., and Marcassa, L. G. (2004). Observation of ultracold ground-state heteronuclear molecules. *Phys. Rev. Lett.*, **92** :133203.

[Marrus et al., 1966] Marrus, R., McColm, D., and Yellin, J. (1966). Atomic-Beam study of the stark effect in the cesium and rubidium D lines. *Phys. Rev.*, **147**(2) :55–59.

[Masnou-Seeus and Pillet, 2001] Masnou-Seeus, F. and Pillet, P. (2001). Formation of ultracold molecules ($T < 200\ \mu K$) via photoassociation in a gas of laser-cooled atoms. *Adv. At. Mol. Opt. Phys.*, **47** :53.

[Mazevet et al., 2002] Mazevet, S., Collins, L. A., and Kress, J. D. (2002). Evolution of Ultracold Neutral Plasmas. *Phys. Rev. Lett.*, **88** :055001.

[Metcalf and der Straten, 1994] Metcalf, H. and der Straten, P. V. (1994). Cooling and trapping of neutral atoms. *Phys. Rep.*, **244** :203.

[Mies et al., 1996] Mies, F. H., Williams, C. J., Julienne, P. S., and Krauss, M. (1996). Estimating bounds on collisional relaxation rates of spin-polarized ^{87}Rb atoms at ultracold températures. *J. Res. Natl. Inst. Stand. Tech.*, **101** :521.

[Miller et al., 1993] Miller, J. D., Cline, R. A., and Heinzen, D. J. (1993). Far-off-resonance optical trapping of atoms. *Phys. Rev. A*, **47** :R4567–R4570.

[Miller and Bederson, 1988] Miller, T. M. and Bederson, B. (1988). Electric dipole polarizability measurements. *Adv. At. Mol. Opt. Phys.*, **25** :37–60.

[Müller and Meyer, 1986] Müller, W. and Meyer, W. (1986). Static dipole polarizabilities of Li_2, Na_2, and K_2. *J. Chem. Phys.*, **85**(2) :953–957.

[Modugno et al., 2001] Modugno, G., Ferrari, G., Roati, G., Brecha, R. J., Simoni, A., and Inguscio, M. (2001). Bose-Einstein condensation of potassium atoms by sympathetic cooling. *Science*, **294** :1320.

[Molof et al., 1974] Molof, R. W., Miller, T. M., Schwartz, H. L., Bederson, B., and Park, J. T. (1974). Measurements of the average electric dipole polarizabilities of the alkali dimers. *J. Chem. Phys.*, **61**(5) :1816–1822.

[Monroe et al., 1995] Monroe, C., Meekhof, D. M., King, B. E., Itano, W. M., and Wineland, D. J. (1995). Demonstration of a fundamental Quantum logic gate. *Phys. Rev. Lett.*, **75** :4714.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

[Mosk et al., 1999] Mosk, A. P., Reynolds, M. W., Hijmans, T. W., and Walraven, J. T. M. (1999). Photoassociation of spin-polarized hydrogen. *Phys. Rev. Lett.*, **82** :307.

[Mourachko, 1999] Mourachko, I. (1999). *Contribution Expérimentale et Théorique de l'Etude des effets à N Corps dans un Gaz de Rydberg Gelé de Césium.* PhD thesis, Université Paris XI Orsay.

[Mourachko et al., 1998] Mourachko, I., Comparat, D., de Tomasi, F., Fioretti, A., Nosbaum, P., Akulin, V. M., and Pillet, P. (1998). Many-Body Effects in a Frozen Rydberg Gas. *Phys. Rev. Lett.*, **80** :253.

[Mourachko et al., 2004] Mourachko, I., Li, W., and Gallagher, T. F. (2004). Controlled many-body interactions in a frozen Rydberg gas. *Phys. Rev. A*, **70** :031401.

[Mudrich, 2003] Mudrich, M. (2003). *Interactions in an optically trapped mixture of ultracold lithium and cesium atoms : Thermalization, spin-exchange collisions and photoassociation.* PhD thesis, Universität Heidelberg.

[Mudrich et al., 2004] Mudrich, M., Kraft, S., Lange, J., Mosk, A., Weidemüller, M., and Tiesinga, E. (2004). Hyperfine-changing collisions in a optically trapped gas of ultracold cesium and lithium. *Phys. Rev. A*, 70 :062712.

[Mudrich et al., 2005] Mudrich, M., Zahzam, N., Vogt, T., Comparat, D., and Pillet, P. (2005). Back and forth transfer and coherent coupling in a cold Rydberg dipole gas. *Phys. Rev. Lett.*, **95** :233002.

[Mukaiyama et al., 2004] Mukaiyama, T., Abo-Shaeer, J. R., Xu, K., Chin, J. K., and Ketterle, W. (2004). Dissociation and Decay of Ultracold Sodium Molecules. *Phys. Rev. Lett.*, **92** :180402.

[Nagel et al., 2005] Nagel, S. B., Mickelson, P. G., Saenz, D., Martinez, Y. N., Chen, Y. C., Killian, T. C., Pellegrini, P., and Côté, R. (2005). Photoassociative Spectroscopy at Long Range in Ultracold Strontium. *Phys. Rev. Lett.*, **94** :083004.

[Napolitano, 1997] Napolitano, R. (1997). A two-state model for controlling scattering lenghts and photoassociation spectral line shapes of alkali-metal atoms by resonant light in the regime of finite ultracold temperature. *Brazilian Journal of Physics*, **27** :162–177. http ://sbf.if.usp.br/.

[Neijzen and Dönszelmann, 1982] Neijzen, J. H. M. and Dönszelmann, A. (1982). Diabatic field ionisation of highly excited indium atoms. *J. Phys. B*, **15** :L87.

[Nosbaum, 1996] Nosbaum, P. (1996). *Contributions à l'étude des collisions et des interactions dans un gaz froid d'atomes de Rydberg de césium : - Entonnoir à atomes - Spectroscopie de croisements évités - Des collisions résonnantes au gaz de Rydberg gelé.* PhD thesis, Université Paris XI Orsay.

[Osterwalder and Merkt, 1999] Osterwalder, A. and Merkt, F. (1999). Using High Rydberg States as Electric Field Sensors. *Phys. Rev. Lett.*, **82** :1831.

[Petrov et al., 2004] Petrov, D. S., Salomon, C., and Shlyapnikov, G. V. (2004). Weakly Bound Dimers of Fermionic Atoms. *Phys. Rev. Lett.*, **93** :090404.

[Phillips, 1998] Phillips, W. D. (1998). Lser cooling and trapping of neutral atoms. *Rev. Mod. Phys.*, **70** :721.

[Pillet et al., 1997] Pillet, P., Crubellier, A., Bleton, A., Dulieu, O., Nosbaum, P., Mourachko, I., and Masnou-Seeuws, F. (1997). Photoassociation in a gas of cold alkali atoms : I. perturbative quantum approach. *J. Phys. B. : At. Mol. Opt. Phys.*, **30** :2801–2820.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

[Porter, 1976] Porter, G. (1976). Some reflections on the work of Theodor Förster. *Die Naturwissenschaften*, **63** :207.

[Protsenko et al., 2002] Protsenko, I. E., Reymond, G., Schlosser, N., and Grangier, P. (2002). Operation of a quantum phase gate using neutral atoms in microscopic dipole traps. *Phys. Rev. A*, **65** :052301.

[Quéméner et al., 2005] Quéméner, G., Honvault, P., and Launay, J. M. (2005). Ultracold quantum dynamics : Spin-polarized K + K_2 collisions with three identical bosons or fermions. *Phys. Rev. A*, **71** :032722.

[Raab et al., 1987] Raab, E. L., Prentis, M., Cable, A., Chu, S., and Pritchard, D. E. (1987). Trapping neutral sodium atoms with radiation pressure. *Phys. Rev. Lett.*, **59** :2631–.

[Raimond et al., 1981] Raimond, J. M., Vitrant, G., and Haroche, S. (1981). Spectral line broadening due to the interaction between very excited atoms : 'the dense Rydberg gas'. *J. Phys. B*, **14** :L655.

[Rauschenbeutel et al., 1999] Rauschenbeutel, A., Nogues, G., Osnaghi, S., Bertet, P., Brune, M., Raimond, J. M., and Haroche, S. (1999). Coherent operation of a tunable quantum phase gate in cavity QED. *Phys. Rev. Lett.*, **83** :5166.

[Regal et al., 2004] Regal, C. A., Greiner, M., and Jin, D. S. (2004). Lifetime of Molecule-Atom Mixtures near a Feshbach Resonance in ^{40}K. *Phys. Rev. Lett.*, **92** :083201.

[Regal et al., 2003] Regal, C. A., Ticknor, C., Bohn, J. L., and Jin, D. S. (2003). Creation of ultracold molecules from a Fermi gas of atoms. *Nature*, **424** :47.

[Riebe et al., 2004] Riebe, M., Häffner, H., Roos, C. F., Hänsel, W., Benhelm, J., Lancaster, G. P. T., Körber, T. W., Becher, C., Schmidt-Kaler, F., James, D. F. V., and Blatt, R. (2004). Deterministic quantum teleportation with atoms. *Nature*, **429** :734.

[roadmap, 2004] roadmap (2004). *Quantum Computation Roadmap*. Disponible sur le web à l'adresse *http* : *//qist.lanl.gov/qcomp_map.shtml*.

[Robert et al., 2001] Robert, A., Sirjean, O., Browaeys, A., Poupard, J., Nowak, S., Boiron, D., Westbrook, C. I., and Aspect, A. (2001). A Bose-Einstein condensate of metastable atoms. *Science*, **292** :461.

[Roberts et al., 2001] Roberts, J. L., Claussen, N. R., Cornish, S. L., Donley, E. A., Cornell, E. A., and Wieman, C. E. (2001). Controlled collapse of a Bose-Einstein condensate. *Phys. Rev. Lett.*, **86** :4211.

[Robicheaux and Hanson, 2002] Robicheaux, F. and Hanson, J. D. (2002). Simulation of the Expansion of an Ultracold Neutral Plasma. *Phys. Rev. Lett.*, **88** :055002.

[Robinson et al., 2000] Robinson, M. P., Laburthe Tolra, B., Noel, M. W., Gallagher, T. F., and Pillet, P. (2000). Spontaneous Evolution of Rydberg Atoms into an Ultracold Plasma. *Phys. Rev. Lett.*, **85** :4466.

[Rost et al., 1992] Rost, J. M., Griffin, J. C., Friedrich, B., and Herschbach, D. R. (1992). Pendular states and spectra of oriented linear molecules. *Phys. Rev. Lett.*, **68**(9) :1299–1302.

[Ryabtsev et al., 2005] Ryabtsev, I., Tretyakov, D. B., and Beterov, I. I. (2005). Applicability of Rydberg atoms to quantum computers. *J. Phys. B*, **38** :S421.

[Rychtarik et al., 2004] Rychtarik, D., Engeser, B., Nägerl, H. C., and Grimm, R. (2004). Two-Dimensional Bose-Einstein Condensate in an Optical Surface Trap. *Phys. Rev. Lett.*, **92** :173003.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

[Sackett et al., 1998] Sackett, C. A., Stoof, H. T. C., and Hulet, R. G. (1998). Growth and collapse of a Bose-Einstein condensate with attractive interactions. *Phys. Rev. Lett.*, **80** :2031.

[Safinya et al., 1981] Safinya, K. A., Delpech, J. F., Gounand, F., and Gallagher, W. S. T. F. (1981). Resonant Rydberg-atom–Rydberg-atom Collisions. *Phys. Rev. Lett.*, **47** :405.

[Sakai et al., 1999] Sakai, H., Safvan, C. P., Larsen, J. J., Hilligsoe, K. M., Hald, K., and Stapelfeldt, H. (1999). Controlling the alignement of neutral moecules by a strong laser field. *J. Chem. Phys.*, **110**(21) :10235–10238.

[Savard et al., 1997] Savard, T., O'Hara, K., and Thomas, J. (1997). Laser-noise-induced heating in far-off resonance optical traps. *Phys. Rev. A*, **56** :R1095.

[Söding et al., 1998] Söding, J., Guéry-Odelin, D., Desbiolles, P., Ferrari, G., and Dalibard, J. (1998). Giant Spin Relaxation of an Ultracold Cesium Gas. *Phys. Rev. Lett.*, **80** :1869.

[Seaton, 1983] Seaton, M. J. (1983). Quantum defect theory. *Rep. Prog. Phys.*, **46** :167.

[Sekar and Periasamy, 2003] Sekar, R. B. and Periasamy, A. (2003). Fluorescence resonance energy transfer (FRET) microscopy imaging of live cell protein localizations. *The Journal of Cell Biology*, **160** :629. Cet article est disponible en ligne à l'adresse http ://www.jcb.org/cgi/content/full/160/5/629.

[Simoni et al., 2002] Simoni, A., Julienne, P. S., Tiesinga, E., and Williams, C. J. (2002). Intensity effects in ultracold photoassociation line shapes. *Phys. Rev. A*, **66** :063406.

[Singer et al., 2002] Singer, K., Jochim, S., Mudrich, M., Mosk, A., and Weidemüller, M. (2002). Low-cost mechanical shutter for light beams. *Rev. Sci. Instrum.*, **73** :4402.

[Singer et al., 2004] Singer, K., Reetz-Lamour, M., Amthor, T., Marcassa, L. G., and Weidemüller, M. (2004). Suppression of Excitation and Spectral Broadening Induced by Interactions in a Cold Gas of Rydberg Atoms. *Phys. Rev. Lett.*, **93** :163001.

[Staanum et al., 2006] Staanum, P., Kraft, S. D., Lange, J., Wester, R., and Weidemüller, M. (2006). Experimental investigation of ultracold atom-molecule collisions. *Phys. Rev. Lett.*, **96** :023201.

[Stan et al., 2004] Stan, C. A., Zwierlein, M. W., Schunck, C. H., Raupach, S. M. F., and Ketterle, W. (2004). Observation of Feshbach Resonances between Two Different Atomic Species. *Phys. Rev. Lett.*, **93** :143001.

[Stapelfeldt and Seideman, 2003] Stapelfeldt, H. and Seideman, T. (2003). Aligning molecules with strong laser pulses. *Rev. Mod. Phys.*, **75**(2) :543–557.

[Steck, 2004] Steck, D. A. (2004). Cesium D Line Data. *http ://george.ph.utexas.edu/ dsteck/alkalidata/cesiumnumbers.pdf*, pages 1–29.

[Stoneman et al., 1987] Stoneman, R. C., Adams, M. D., and Gallagher, T. F. (1987). Resonant-collision spectroscopy of Rydberg atoms. *Phys. Rev. Lett.*, **58** :1324.

[Stwalley, 1976] Stwalley, W. C. (1976). Stability of spin-aligned hydrogen at low temperatures and high magnetic fields : new fiel-dependent scattering resonances and predissociations. *Phys. Rev. Lett.*, **37** :1628.

[Stwalley et al., 1978] Stwalley, W. C., Uang, Y. H., and Pichler, G. (1978). Pure Long-Range Molecules. *Phys. Rev. Lett.*, **41** :1164.

[Takasu et al., 2003] Takasu, Y., Maki, K., Komori, K., Takano, T., Honda, K., Kumakura, M., Yabuzaki, T., and Takahashi, Y. (2003). Spin-singlet Bose-Einstein condensation of two-electron atoms. *Phys. Rev. Lett.*, **91** :040404.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

[Takekoshi and Knize, 1996] Takekoshi, T. and Knize, R. J. (1996). CO_2 laser trap for cesium atoms. *Opt. Lett.*, **21**(1) :77–79.

[Takekoshi et al., 1998] Takekoshi, T., Patterson, B. M., and Knize, R. J. (1998). Observation of optically trapped cold cesium molecules. *Phys. Rev. Lett.*, **81**(23) :5105–5108.

[Takekoshi et al., 1995] Takekoshi, T., Yeh, J. R., and Knize, R. J. (1995). Quasi-electrostatic trap neutral atoms. *Opt. Commun.*, **114** :421–424.

[Tarnovsky et al., 1993] Tarnovsky, V., Bunimovicz, M., Vuskovic, L., Stumpf, B., and Bederson, B. (1993). Measurements of the dc electric dipole polarizabilities of the alkali dimer molecules, homonuclear and heteronuclear. *J. Chem. Phys.*, **98**(5) :3894–3904.

[Theodosiou, 1984] Theodosiou, C. E. (1984). Lifetimes of alkali-metal–atom Rydberg states. *Phys. Rev. A*, **30** :2881.

[Thorsheim et al., 1987] Thorsheim, H. R., Weiner, J., and Julienne, P. S. (1987). Laser-induced photoassociation of ultracold sodium atoms. *Phys. Rev. Lett.*, **58** :2420.

[Tiesinga et al., 1992] Tiesinga, E., Moerdijk, A. J., Verhaar, B. J., and Stoof, H. T. C. (1992). Conditions for Bose-Einstein condensation in magnetically trapped atomic cesium. *Phys. Rev. A*, **46** :1167.

[Tiesinga et al., 1993] Tiesinga, E., Verhaar, B. J., and Stoof, H. T. C. (1993). Threshold and resonance phenomena in ultracold ground-state collisions. *Phys. Rev. A*, **47** :4114.

[Tiesinga et al., 1996a] Tiesinga, E., Williams, C. J., Julienne, P. S., Jones, K. M., Lett, P. D., and Phillips, W. D. (1996a). A Spectroscopic Determination of scattering Lengths for Sodium Atom Collisions. *J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol.*, **101** :505.

[Tiesinga et al., 1996b] Tiesinga, E., Williams, C. J., Julienne, P. S., Jones, K. M., Lett, P. D., and Phillips, W. D. (1996b). A Spectroscopic Determination of scattering Lengths for Sodium Atom Collisions. *J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol.*, **101** :505.

[T'Jampens, 2002] T'Jampens, B. (2002). *Développement de méthodes asymptotiques pour l'étude des interactions entre atomes froids. Détermination de longueurs de diffusion du sodium et du césium.* PhD thesis, Université Paris XI Orsay.

[Tong et al., 2004] Tong, D., Farooqi, S. M., Stanojevic, J., Krishnan, S., Zhang, Y. P., Côté, R., Eyler, E. E., and Gould, P. L. (2004). Local Blockade of Rydberg Excitation in an ultracold Gas. *Phys. Rev. Lett.*, **93** :063001.

[Treutlein et al., 2001] Treutlein, P., Chung, K. Y., and Chu, S. (2001). High-brightness atom source for atomic fountains. *Phys. Rev. A*, **63** :051401.

[Tulub and Balmakov, 1975] Tulub, A. V. and Balmakov, M. D. (1975). General formula for dynamic polarizability in the absence of complete information on the system. *Opt. Spectrosc.*, **39**(6) :605–608.

[van Grondell et al., 1994] van Grondell, R., Dekker, J. P., Gillbro, T., and Sundström, G. (1994). Energy transfer and trapping in photosynthesis. *Biochim. Biophys. Acta-Bioenergetics*, **1187** :1.

[Vandersypen et al., 2001] Vandersypen, L. M. K., Steffen, M., Breyta, G., Yannoni, C. S., Sherwood, M. H., and Chuang, I. L. (2001). Experimental realization of Shor's quantum factoring algorithm using nuclear magnetic resonance. *Nature*, **414** :883.

[Vanhaecke, 2003] Vanhaecke, N. (2003). *Molécules froides : formation, piégeage et spectroscopie. Accumulation de dimères de césium dans un piège quadrupolaire magnétique, Spectroscopie par frustration de photoassociation.* PhD thesis, École polytechnique.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

[Vanhaecke et al., 2002] Vanhaecke, N., de Souza-Melo, W., Laburthe-Tolra, B., Comparat, D., and Pillet, P. (2002). Accumulation of cold cesium molecules via photoassociation in a mixed atomic and molecular trap. *Phys. Rev. Lett.*, **89** :063001.

[Vanhaecke et al., 2004] Vanhaecke, N., Lisdat, C., T'Jampens, B., Comparat, D., Crubellier, A., and Pillet, P. (2004). Accurate asymptotic ground state potentiel curves of Cs_2 from two-colour photoassociation. *Eur. Phys. J. D*, **28** :351.

[Vatasescu, 1999] Vatasescu, M. (1999). *Etude théorique de la réaction de photoassociation entre deux atomes de césium froids : mise en évidence d'un effet tunnel et traitement dépendant du temps.* PhD thesis, Université Paris XI Orsay.

[Vatasescu et al., 2000] Vatasescu, M., Dulieu, O., Amiot, C., Comparat, D., Drag, C., Kokoouline, V., Masnou-Seeuws, F., and Pillet, P. (2000). Multichannel tunneling in the Cs_2 0_g^- photoassociation spectrum. *Phys. Rev. A*, **61** :044701.

[Vitrant et al., 1982] Vitrant, G., Raimond, J. M., Gross, M., and Haroche, S. (1982). ... *J. Phys. B*, **15** :L49.

[Vuletic et al., 1999] Vuletic, V., Kerman, A. J., Chin, C., and Chu, S. (1999). Observation of low-field Feshbach resonances in collisions of cesium atoms. *Phys. Rev. Lett.*, **82** :1406.

[Walz-Flannigan et al., 2004] Walz-Flannigan, A., Guest, J. R., Choi, J.-H., and Raithel, G. (2004). Cold-Rydberg-gas dynamics. *Phys. Rev. A*, **69** :063405.

[Wang et al., 2004] Wang, D., Qi, J., Stone, M. F., Nikolayeva, O., Wang, H., Hattaway, B., Gensemer, S. D., Gould, P. L., Eyler, E. E., and Stawlley, W. C. (2004). Photoassociative production and trapping of ultracold KRb molecules. *Phys. Rev. Lett.*, **93** :243005.

[Wang et al., 1996] Wang, H., Gould, P. L., and Stwalley, W. (1996). Photoassociation spectroscopy of ultracold ^{3}9K atoms in a high density vapor-cell magneto-optical trap. *Phys. Rev. A*, **53** :R1216.

[Wang and Stwalley, 1998] Wang, H. and Stwalley, W. C. (1998). Ultracold photoassociative spectroscopy of heteronuclear alkali-metal diatomic molecules. *J. Chem. Phys.*, **108** :5767.

[Weber et al., 2003a] Weber, T., Herbig, J., Mark, M., Nägerl, H. C., and Grimm, R. (2003a). Bose-Einstein Condensation of Cesium. *Science*, **299** :232.

[Weber et al., 2003b] Weber, T., Herbig, J., Mark, M., Nägerl, H. C., and Grimm, R. (2003b). Bose-Einstein Condensation of Cesium ; materials and methods. *Science*, **299**. Disponible sur Science Online.

[Weber et al., 2003c] Weber, T., Herbig, J., Mark, M., Nägerl, H. C., and Grimm, R. (2003c). Three-Body Recombination at Large Scattering Lengths in an Ultracold Atomic Gas. *Phys. Rev. Lett.*, **91** :123201.

[Webster, 2000] Webster, S. (2000). *Prospects for Bose-Einstein condensation in caesium : cold collisions and dipole-force trapping.* PhD thesis, University of Oxford.

[Weinstein et al., 1998] Weinstein, J., deCarvalho, R., Guillet, T., Friedrich, B., and Doyle, J. M. (1998). Magnetic trapping of calcium monohydride molecules at millikelvin temperatures. *Nature*, **395** :148.

[Wester et al., 2004] Wester, R., Kraft, S. D., Mudrich, M., Staudt, M. U., Lange, J., Vanhaecke, N., Dulieu, O., and Weidemüller, M. (2004). Photoassociation inside an optical dipole trap : absolute rate coefficients and Franck-Condon factors. *Applied Physics B*, **79** :993.

[Wigner, 1948] Wigner, E. P. (1948). On the Behavior of Cross Sections Near Thresholds. *Phys. Rev.*, **73** :1002.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

[Wynar et al., 2000] Wynar, R., Freeland, R. S., Han, D. J., Ryu, C., and Heinzen, D. J. (2000). Molecules in a Bose-Einstein Condensate. *Science*, **287** :1016.

[Xu et al., 2003] Xu, K., Mukaiyama, T., Abo-Shaeer, J. R., Chin, J. K., Miller, D. E., and Ketterle, W. (2003). Formation of Quantum-Degenerate Sodium Molecules. *Phys. Rev. Lett.*, **91** :210402.

[Yang et al., 1993] Yang, S. T., Exkardt, R. C., and Byer, R. L. (1993). Continuous-wave singly resonant optical parametric oscillator pumped by a single-frequency resonantly doubled Nd:YAG laser. *Opt. Lett.*, **18** :971.

[Yurovski and Ben-Reuven, 2003] Yurovski, V. A. and Ben-Reuven, A. (2003). Formation of a molecular Bose-Einstein condensate and an entangled atomic gas by Feshbach resonance. *Phys. Rev. A*, **67** :043611.

[Yurovski et al., 2000] Yurovski, V. A., Ben-Reuven, A., Julienne, P. S., and Williams, C. J. (2000). Atom loss and the formation of a molecular Bose-Einstein condensate by Feshbach resonance. *Phys. Rev. A*, **62** :043605.

[Zahzam et al., 2006] Zahzam, N., Vogt, T., Mudrich, M., Comparat, D., and Pillet, P. (2006). Atom-molecule collisions in an optically trapped gas. *Phys. Rev. Lett.*, **96** :023202.

[Zimmerman et al., 1979] Zimmerman, M. L., Littman, M. G., Kash, M. M., and Kleppner, D. (1979). Stark structure of the Rydberg states of alkali-metal atoms. *Phys. Rev. A*, **20** :2251.

[Zinner et al., 2000] Zinner, G., Binnewies, T., Riehle, F., and Tiemann, E. (2000). Photoassociation of Cold Ca Atoms. *Phys. Rev. Lett.*, **85** :2292–2295.

[Zwierlein et al., 2003] Zwierlein, M. W., Stan, C. A., Schunk, C. H., Raupach, S. M. F., Gupta, S., Hadzibabic, Z., and Ketterle, W. (2003). Observation of Bose-Einstein Condensation of Molecules. *Phys. Rev. Lett.*, **91** :250401.

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

tel-00011696, version 1 - 27 Feb 2006

Résumé

Cette thèse s'inscrit dans la thématique des collisions et des interactions impliquant des atomes et des molécules ultrafroids de césium. Ces travaux ont un lien étroit avec les différents domaines que sont la condensation de Bose-Einstein atomique et moléculaire, les atomes de Rydberg, les plasmas froids et l'information quantique.
Trois expériences sont décrites dans cette thèse. Dans la première, la caractérisation du régime de collisions élastiques dans un piège hybride optique et magnétique a été menée. Cette étude est d'une grande importance pour évaluer, dans un tel piège, les possibilités d'atteindre la phase quantique de condensation de Bose-Einstein pour l'atome de césium. Dans la deuxième expérience, un dispositif de piégeage dipolaire de molécules de césium, réalisé à l'aide d'un laser CO_2, a permis d'obtenir un échantillon dense et froid de molécules, créées par photoassociation d'atomes froids. Le confinement d'atomes et de molécules a été mis en évidence et des études quantitatives de collisions froides inélastiques molécule-atome ont pu être réalisées. Une mesure de ce taux de collisions est donnée dans le manuscrit. Nous abordons, dans la troisième expérience, l'étude détaillée des phénomènes d'interactions à longue distance dipôle-dipôle qui règnent au sein d'un gaz d'atomes de Rydberg froids. Ces interactions ont été mises en évidence et caractérisées à l'aide d'une méthode originale de spectroscopie optique de haute résolution.

Abstract

This thesis is in keeping with collisions and interactions implying ultracold atomic and molecular cesium samples. The work presented is closely linked to the field of atomic and molecular Bose-Einstein condensation, Rydberg atoms, cold plasmas and quantum information.
Three experiments are described in this thesis. In the first one, caracterisation of the elastic collision regime in a hybrid optical and magnetic trap was done. This study is of great importance to evaluate in such a trap the possibility to reach Bose-Einstein condensation with cesium atoms. In the second experiment, a dipole trap of cesium molecules, obtained in the focus of a CO_2 laser, permit us to achieve a dense and cold sample of molecules, created via photoassociation of cold atoms. Trapping simultaneously atoms and molecules allowed us to study cold inelastic molecule-atom collisions. A measure of this collision rate is given in the manuscript. In the third experiment, long range dipole-dipole interactions inside a cold sample of Rydberg atoms are investigated in detail. Those interactions are clearly resolved and caracterized using an original high resolution optical spectroscopy.

Mots clés

Collisions froides	Atomes de Rydberg	Interaction dipôle-dipôle
Molécules froides	Information quantique	Condensation de Bose-Einstein
Plasmas froids	Photoassociation	Interaction ions-atomes
Spectroscopie haute résolution	Piège dipolaire	Taux de collisions
Transfert résonant d'excitation	Effet à N corps	Cohérence