



**HAL**  
open science

# Thermodynamique de la réponse électrique dans les isolants de bande - Synchronisation et écho de spin dans une horloge atomique

Frédéric Combes

► **To cite this version:**

Frédéric Combes. Thermodynamique de la réponse électrique dans les isolants de bande - Synchronisation et écho de spin dans une horloge atomique. Matière Condensée [cond-mat]. Université Paris Saclay (COMUE), 2018. Français. NNT: 2018SACLS540 . tel-02137505

**HAL Id: tel-02137505**

**<https://theses.hal.science/tel-02137505>**

Submitted on 23 May 2019

**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.

# Thermodynamique de la réponse électrique dans les isolants de bande

## Synchronisation et écho de spin dans une horloge atomique

Thèse de doctorat de l'Université Paris-Saclay  
préparée à l'Université Paris-Sud

Ecole doctorale n°564 Physique en Île de France (EDPIF)  
Spécialité de doctorat : Physique

Thèse présentée et soutenue à Orsay, le 7 Décembre 2018, par

**FRÉDÉRIC COMBES**

Composition du Jury :

Anu Jagannathan Professeur, Université Paris-Sud	Présidente du Jury
Janós Asbóth Research Fellow, Wigner Research Centre for Physics of the Hungarian Academy of Sciences, Budapest, Hungary	Rapporteur
Tommaso Roscilde Maître de conférences, ENS Lyon	Rapporteur
Laurent Vernac Maître de conférences, Université Paris 13	Examineur
Jean-Noël Fuchs Directeur de recherche CNRS, Sorbonne Université	Directeur de thèse
Frédéric Piéchon Chargé de recherche CNRS, Université Paris-Sud	Directeur de thèse



# Table des matières

<b>Introduction</b>	<b>5</b>
<b>1 Thermodynamique de la réponse électrique dans les isolants de bande</b>	<b>13</b>
1 Introduction	13
2 De Clausius-Mossotti à la théorie moderne de la polarisation	15
2.1 L'approche de Clausius-Mossotti	15
2.2 Symétries, invariances et polarisation	16
2.3 L'échec de l'approche de Clausius-Mossotti pour les solides cristallins	16
2.4 Théorie moderne de la polarisation	18
2.5 Approche thermodynamique	22
3 États propres sous champ : les états de Wannier-Stark	22
3.1 Généralités	23
3.2 Échelle de Wannier-Stark et diagonalisation par bloc	26
3.3 États de Wannier	28
3.4 Opérateur position et connexion de Berry	29
3.5 Approche perturbative	31
3.6 Chaîne de dimères découplés : un modèle jouet analytique	33
3.7 Modèle de Rice-Mele	35
4 Réponse thermodynamique d'un gaz d'électrons à un champ électrique statique	47
4.1 Thermodynamique et spectre non-borné	49
4.2 Potentiel chimique local	49
4.3 Expression de la polarisation et de la susceptibilité électrique	50
4.4 Interactions et neutralité à l'échelle locale	52
5 Extension aux matériaux bidimensionnels	55
5.1 Champ électrique parallèle	55
5.2 Champ électrique quelconque	61
6 Conclusion	69
<b>2 Synchronisation et écho de spin dans une horloge atomique</b>	<b>71</b>
1 Introduction	71
2 Dynamique d'atomes piégés	74

2.1	Atomes dans un piège dipolaire . . . . .	74
2.2	Généralités sur l'interaction atome-atome . . . . .	78
2.3	Interactions atome-atome pour des atomes à deux niveaux . . . . .	80
2.4	Perte de cohérence . . . . .	82
2.5	Dynamique d'un gaz d'atomes de $^{87}\text{Rb}$ dans un piège dipolaire . . . . .	84
2.6	Dynamique dans l'espace énergie-angle . . . . .	87
3	Expérience Forca-G . . . . .	94
3.1	Protocole expérimental . . . . .	95
3.2	Impulsion $\pi$ et écho de spin . . . . .	95
4	Phénomènes de synchronisation . . . . .	98
4.1	Mécanismes de désynchronisation . . . . .	98
4.2	Impulsion $\pi$ et écho de spin . . . . .	102
4.3	Auto-synchronisation : l'effet de rotation des spin identiques . . . . .	103
4.4	Compétition entre les mécanismes . . . . .	104
4.5	Écho de spin en présence d'interactions . . . . .	112
5	Conclusion . . . . .	116
	<b>Conclusion et perspectives</b>	<b>119</b>
	<b>A Statistical mechanics approach to the electric polarization and dielectric constant of band insulators</b>	<b>123</b>
	<b>B Competition between Spin Echo and Spin Self-Rephasing in a Trapped Atom Interferometer</b>	<b>139</b>

# Table des figures

1	Quantum de polarisation . . . . .	7
2	Principe d'une séquence interférométrique de Ramsey . . . . .	10
3	Franges de Ramsey . . . . .	12
1.1	Ambiguïté de la formule de Clausius-Mossotti . . . . .	17
1.2	Protocole de mesure de la polarisation électrique . . . . .	19
1.3	Échelle de Wannier-Stark . . . . .	25
1.4	Comparaison entre un état de Wannier et un état de Wannier-Stark . . . . .	30
1.5	Chaîne de dimères . . . . .	33
1.6	Chaîne de Rice-Mele . . . . .	36
1.7	Spectre du modèle de Rice-Mele . . . . .	38
1.8	Échelle de Wannier-Stark du modèle de Rice-Mele . . . . .	39
1.9	Polarisation et susceptibilité électrique du modèle de Rice-Mele . . . . .	40
1.10	Comparaison entre les échelles de Wannier-Stark d'un système de taille finie et infini . . . . .	42
1.11	Déviation de l'échelle de Wannier-Stark liée au effets de bords . . . . .	43
1.12	États de Wannier-Stark et effets de bords . . . . .	45
1.13	Effets de bords sur la position des états de Wannier-Stark . . . . .	46
1.14	Modèle de Haldane . . . . .	61
1.15	Spectre de Wannier-Stark du modèle de Haldane . . . . .	62
1.16	Échelle de Wannier-Stark du modèle de Haldane dans le régime trivial . . . . .	63
1.17	Échelle de Wannier-Stark du modèle de Haldane dans le régime topologique $C = 1$ . . . . .	64
1.18	Échelle de Wannier-Stark du modèle de Haldane dans le régime topologique $C = -1$ . . . . .	65
1.19	Modèle sur réseau carré . . . . .	66
1.20	Modèle sur réseau carré : doublement de la cellule unité . . . . .	68
1.21	Polarisation pour le réseau carré avec et sans doublement de la cellule unité . . . . .	68
2.1	Expérience <i>ForCa-G</i> du <i>SYRTE</i> . . . . .	73
2.2	Noyau $K(1, E')$ . . . . .	90
2.3	Modèle à deux macrospins . . . . .	93
2.4	Séquence interférométrique utilisée pour <i>ForCa-G</i> . . . . .	96

---

2.5	Effet d'une impulsion $\pi$ sur un ensemble de pseudo-spins . . . . .	97
2.6	Effet d'une impulsion $\pi$ de durée finie sur un ensemble de pseudo-spins . . . . .	99
2.7	Efficacité d'une impulsion $\pi$ de largeur finie . . . . .	99
2.8	Réduction du contraste liée à l'inhomogénéité du champ Zeeman . . . . .	100
2.9	Réduction du contraste à temps courts . . . . .	101
2.10	Effet d'une impulsion $\pi$ en présence de relaxation . . . . .	102
2.11	Comparaison expérience-simulation en présence d'une impulsion $\pi$ . . . . .	103
2.12	Représentation schématique de l'effet de l' <i>ISRE</i> . . . . .	105
2.13	Auto-synchronisation liée à l' <i>ISRE</i> . . . . .	106
2.14	Apparition d'une composante selon $\vec{z}$ en présence d' <i>ISRE</i> . . . . .	107
2.15	Augmentation du temps de cohérence lié à l'auto-synchronisation via l' <i>ISRE</i> . . . . .	108
2.16	Augmentation du temps de cohérence via l' <i>ISRE</i> . . . . .	109
2.17	Action négative d'une impulsion $\pi$ en présence d' <i>ISRE</i> . . . . .	110
2.18	Effet d'une impulsion $\pi$ sur le contraste en présence d' <i>ISRE</i> . . . . .	111
2.19	Effet d'une impulsion $\pi$ sur la composante $S_z$ en présence d' <i>ISRE</i> . . . . .	112
2.20	Effet schématique d'une impulsion $\pi$ en présence d' <i>ISRE</i> . . . . .	113
2.21	Contraste au moment où l'écho est attendu, après une impulsion $\pi$ . . . . .	114
2.22	Écho en présence d'interactions . . . . .	115

# Introduction

Le travail présenté dans ce manuscrit de thèse comporte plusieurs sujets distincts. Il reflète mon travail de thèse, scindé en trois projets :

- en physique des solides, concernant la polarisation et la susceptibilité électrique des isolants de bande. Ce sujet fait l'objet du chapitre 1 de ce manuscrit,
- en physique atomique, sur la synchronisation et l'écho de spin dans les horloges atomiques. Le travail effectué est présenté dans le chapitre 2,
- en physique des solides ; ce sujet, concernant la susceptibilité magnétique orbitale d'un paquet d'onde, n'est pas présenté ici car le travail effectué n'est pas suffisamment abouti.

## Thermodynamique de la réponse électrique dans les isolants de bande

Le premier projet concerne la polarisation et la susceptibilité électrique des diélectriques cristallins, et nous pouvons le décrire brièvement par cette question : « Du point de vue de la thermodynamique, quelle est la réponse d'un cristal diélectrique à un champ électrique externe ? ». La réponse est nettement moins brève que la question.

Un matériau quelconque peut présenter une réponse à un champ électrique tout en restant à l'équilibre : les isolants électriques (nommés diélectriques) ne présentent ni transport de charge ni courant permanent. Leur énergie libre prend la forme générique

$$F(\vec{\epsilon}) = F_0 - V\vec{\epsilon} \cdot \vec{\mathcal{P}} - \dots$$

$\vec{\epsilon}$  est le champ électrique,  $V$  est le volume du matériau,  $\vec{\mathcal{P}}$  est la polarisation électrique spontanée (la polarisation à champ nul). Les matériaux solides possédant une polarisation spontanée sont nommés solides polaires. Il en existe diverses catégories en fonction du comportement de leur polarisation [1]

- les électrets sont des solides polaires amorphes tels que, par exemple, de la cire soumise à un champ électrique durant sa solidification,
- les matériaux pyro-électriques sont les matériaux polaires dont la polarisation dépend fortement de la température via un effet de dilatation thermique,
- les matériaux piézo-électriques sont des solides polaires, dont la polarisation change lorsqu'ils sont soumis à des contraintes mécaniques (déformations). Cet effet est particulièrement intéressant car réversible : lorsque qu'un matériau piézo-électrique est soumis

à un champ électrique qui vient changer sa polarisation, celui-ci se déforme. Un exemple d'un tel matériau est le sel de Rochelle,

- les matériaux ferro-électriques sont des solides pyro-électriques dont la polarisation peut être retournée via l'application d'un champ électrique suffisamment fort. À haute température, ces derniers subissent une transition de phase et deviennent para-électriques (dans cette phase, leur polarisation spontanée est nulle). C'est l'équivalent électrique de la transition de ferro- vers para-magnétique.

La description et la compréhension des propriétés de la polarisation sont arrivées étape par étape. Dans un premier temps, avant même de s'intéresser aux matériaux et aux solides cristallins, il est nécessaire de comprendre ce qu'est la polarisation pour un ensemble de charges décrites classiquement (c'est à dire ponctuelles), électrons et ions. Cette compréhension initiale arrive avec l'approche de Clausius-Mossotti <sup>1</sup> [2], à la fin du XIX-ème siècle. Lorsque des charges ponctuelles sont plongées dans un champ électrique, leur énergie varie linéairement avec la valeur du champ électrique, de leur position  $\vec{r}$  et de leur charge  $q$  :  $E = -q\vec{E} \cdot \vec{r}$ . L'approche de Clausius-Mossotti montre alors que pour un ensemble de charges, la variation de l'énergie est la somme des contributions individuelles de chacune des charges de l'ensemble.

Pour un ensemble de charges, la polarisation spontanée, qui est la dérivée de l'énergie par rapport au champ, correspond au barycentre des positions des charges du système. Lorsque l'ensemble est décrit via sa densité de charge  $\rho$ , alors la polarisation se calcule par

$$\vec{P} = \frac{e}{V} \int_V \vec{r} \rho(\vec{r}) d^3\vec{r}$$

Plusieurs constats ressortent alors immédiatement : si l'ensemble de charges n'est pas neutre, alors le barycentre des charges dépend du choix de l'origine des positions. Une quantité physique telle que la polarisation ne peut pas être sensible à un tel choix : la polarisation est une quantité définie uniquement pour les systèmes neutres électriquement. Un autre constat qui apparaît dans l'approche de Clausius-Mossotti est que la polarisation hérite des propriétés de symétrie spatiale de la distribution de charges. Par conséquent, lorsque la polarisation est étudiée dans le cadre des solides cristallins, cette dernière hérite des propriétés de symétrie du cristal.

Avant même de décrire les propriétés des solides cristallins avec les outils de la mécanique quantique, King-Smith, Vanderbilt et Resta, auteurs de la *théorie moderne de la polarisation* [3-5] notent que, puisque la polarisation hérite des propriétés de symétrie du cristal, alors elle hérite de la propriété d'invariance par translation du réseau cristallin. Cette invariance se traduit par la propriété contre-intuitive que si nous déplaçons toutes les charges électroniques selon un des vecteurs de Bravais du cristal (qui sont les vecteurs décrivant l'invariance par translation), nous retrouvons un système identique, donc de même polarisation. Cependant,

---

1. Habituellement, la formule de Clausius-Mossotti désigne spécifiquement la constante diélectrique en milieu dense  $\chi = 1 - \epsilon = \frac{N\alpha}{1 - \frac{1}{3}N\alpha}$  où  $N$  est la densité volumique de molécules et  $\alpha$  leur polarisabilité. Ici nous employons le terme *approche de Clausius-Mossotti* pour désigner la description classique de la réponse électrique dans les matériaux.

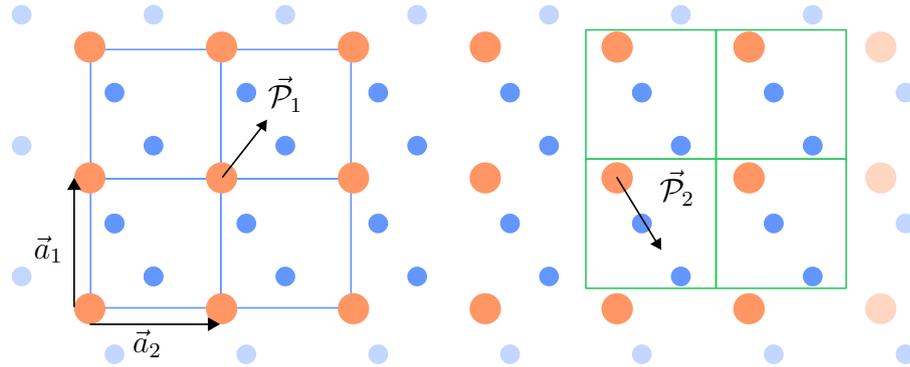


FIGURE 1 – Un cristal est un assemblage périodique de cellules unités. Celui représenté ici comprend une charge positive (ions, en orange, de charge  $2e$  ici) et deux charges négatives (électrons, en bleu, de charge  $-e$ ) par cellule unité, répétées selon les vecteurs de Bravais  $\vec{a}_1$  et  $\vec{a}_2$ . Lorsque le choix de la cellule unité bleue est fait, la polarisation, qui est le barycentre des charges, vaut  $\vec{\mathcal{P}}_1$ , mais si le choix de la cellule unité verte est fait, alors la polarisation vaut  $\vec{\mathcal{P}}_2 \neq \vec{\mathcal{P}}_1$ . Ces deux valeurs de la polarisation diffèrent de  $e\vec{a}_1$  : c'est un multiple entier du quantum de polarisation qui vaut  $\frac{1}{2}\frac{e}{v}\vec{a}_1$  où  $v$  est le volume de la cellule unité et le facteur  $\frac{1}{2}$  provient du nombre de charges par cellule unité (deux charges négatives et deux charges positives). En dimension deux, comme c'est le cas ici, il existe un deuxième quantum de polarisation qui vaut  $\frac{1}{2}\frac{e}{v}\vec{a}_2$ .

selon l'image de Clausius-Mossotti nous avons déplacé des charges, et comme la polarisation correspond à la position des charges, nous avons changé la valeur de la polarisation. Cette conséquence contre-intuitive se comprend en introduisant le *quantum de polarisation* (qui n'a rien à voir avec la quantification en mécanique quantique, et qui n'a rien à voir avec une quelconque quantification de la valeur de la polarisation) : pour les diélectriques cristallins, la polarisation est une quantité définie modulo le *quantum de polarisation*, qui traduit cette propriété d'invariance par translation, comme l'illustre la figure 1. La valeur du quantum de polarisation est détaillée dans la légende de cette figure.

Pour décrire la susceptibilité électrique des matériaux, il est nécessaire de spécifier la dynamique des charges électriques en son sein. Lorsque cela est fait, l'énergie libre en fonction du champ se développe en

$$F(\vec{\varepsilon}) = F_0 - V\vec{\varepsilon} \cdot \vec{\mathcal{P}} - \frac{1}{2}V\varepsilon_i\varepsilon_j\chi_{ij} - \dots$$

où  $\chi$  est la susceptibilité électrique. En dimension 1, c'est une grandeur scalaire, tandis qu'en dimension 2 et 3,  $\chi$  est un tenseur. La susceptibilité électrique est reliée à la constante diélectrique (ou permittivité)  $\epsilon$  du matériau via  $\chi = 1 + \epsilon$  et à l'indice optique  $n$  via  $n^2 = \epsilon$ . La susceptibilité électrique est toujours positive [6], ce qui signifie deux choses

Type	Amplifie ou écran te le champ extérieur	Attiré ou repoussé par les champs forts
Diamagnétique	écran te	repoussé (lévitation possible)
Paramagnétique	amplifie	attiré
Diélectrique	écran te	attiré

TABLE 1 – Comparaison des différents comportement vis à vis des champs magnétiques (dia- et para-magnétique) et électriques (diélectriques).

- lorsque la polarisation spontanée est nulle, le matériau est attiré par les zones de champ fort. Cette propriété est typiquement illustrée en chargeant en électricité statique une règle en plastique qui attire alors des boulettes de papier : de polarisation nulle, les boulettes de papier sont attirées par le champ crée par la règle chargée. Un autre exemple est celui du ballon de baudruche chargé électrostatiquement s'accrochant au plafond : le plafond, diélectrique, est attiré par le champ produit par le ballon. En traçant un parallèle avec la susceptibilité magnétique, cette propriété ressemble au paramagnétisme,
- le champ électrique au sein d'un diélectrique est écran té : le champ à l'intérieur du matériau diélectrique est plus faible d'un facteur  $\frac{1}{\epsilon}$  que le champ externe appliqué. Cette propriété ressemble au diamagnétisme : le mot diélectrique est une contraction de di-électrique.

La comparaison entre les propriétés des cas dia- et para-magnétique et diélectrique est résumée dans la table 1.

Au début du XX-ème siècle apparaît la mécanique quantique, et avec elle se développe une description quantique des solides, notamment sous l'impulsion de Bloch [7]. Une des descriptions apparaissant alors est la théorie des bandes où les ions sont décrits classiquement (en tant que charges ponctuelles) tandis que les électrons de valence, responsables des propriétés électroniques du solide sont décrits avec les outils de la mécanique quantique. Ces derniers sont alors décrits par une relation de dispersion  $E_\alpha(\vec{k})$  et par des fonctions d'ondes  $u_{\alpha,\vec{k}}(\vec{r})$ <sup>2</sup>. La relation de dispersion, associée au niveau de Fermi du système nous informe sur le caractère diélectrique (isolant) ou métallique du cristal : le cristal est un isolant si le niveau de Fermi est dans une bande interdite de la relation de dispersion. En revanche, si le niveau de Fermi traverse une des bandes d'énergie du système, celle-ci est partiellement remplie et le cristal est un métal. Il conduit le courant est n'est plus à l'équilibre lorsqu'il est plongé dans un champ électrique. La polarisation est une propriété qui ne concerne que les isolants car les métaux répondent à un champ électrique via l'apparition d'un courant électrique. Les fonctions d'onde, quant à elles, fournissent une description délocalisée des électrons de valence qui n'est pas compatible avec l'approche de Clausius-Mossotti. Dans un cristal, la densité de charge est continue et périodique de même période que le cristal et la formule  $\mathcal{P} \propto \int \vec{r} \rho(\vec{r}) d^3\vec{r}$  perd son sens. C'est

2.  $\alpha$  et  $\vec{k}$  sont les nombres quantiques, respectivement l'indice de bande et le vecteur d'onde.

cette constatation qui pousse King-Smith, Vanderbilt et Resta à développer la *théorie moderne de la polarisation*.

La description de la polarisation donnée par la *théorie moderne de la polarisation* se base sur les propriétés géométriques de la théorie des bandes (telles que la connexion de Berry), et en particulier sur les travaux de Zak [8]. En définissant la polarisation électrique à partir d'un courant adiabatique dans un isolant de bande (plutôt qu'à partir d'une densité de charge), King-Smith, Vanderbilt et Resta montrent que la polarisation électrique d'une bande d'énergie est proportionnelle à la phase de Zak associée à cette bande. Elle ne dépend pas de la relation de dispersion  $E_\alpha(\vec{k})$  mais seulement des fonctions d'ondes  $u_{\alpha,\vec{k}}(\vec{r})$  : elle dépend de leur module  $|u_{\alpha,\vec{k}}(\vec{r})|$  et également de leur phase  $\text{Arg } u_{\alpha,\vec{k}}(\vec{r})$ . La polarisation, qui est une quantité physique mesurable, ne peut pas dépendre du choix arbitraire de la phase globale des fonctions d'ondes  $u_{\alpha,\vec{k}}(\vec{r})$  permis par la mécanique quantique. Heureusement, les propriétés de la phase de Zak sont telles que sa valeur est insensible au choix arbitraire des phases des fonctions d'onde et contient naturellement le *quantum de polarisation* (qui est en fait une conséquence de ce choix arbitraire). Via l'introduction des fonctions de Wannier, qui proposent une description sous forme localisée des électrons de valence dans un solide diélectrique, il est possible d'établir un parallèle entre la *théorie moderne de la polarisation* et l'approche de Clausius-Mossotti. Les fonctions d'ondes de Wannier sont des états localisés qui possèdent une position bien définie. Il est à nouveau possible de décrire les électrons de valence du solide sous la forme de particules localisées, pour lesquelles l'approche de Clausius-Mossotti est valide [9, 10].

Le travail présenté dans le premier chapitre de ce manuscrit complète la compréhension de la polarisation donnée par King-Smith, Vanderbilt et Resta. Nous partons de la question suivante : de la même manière que l'aimantation spontanée et la susceptibilité magnétique d'un métal ou d'un isolant sont calculées à partir de la mécanique statistique d'un gaz de Fermi-Dirac et du spectre d'un électron en présence d'un champ magnétique (les niveaux de Landau), pouvons-nous calculer la polarisation et la susceptibilité électrique d'un isolant à partir des outils de la mécanique statistique et du spectre d'un électron en présence d'un champ électrique statique (le spectre dit de Wannier-Stark) ? L'approche prise dans la *théorie moderne de la polarisation* n'est pas basée sur le spectre d'énergie des électrons ; elle est basée sur le courant adiabatique apparaissant lors d'un changement de la polarisation.

Dans un premier temps je décris le spectre de Wannier-Stark d'un diélectrique cristallin en présence d'un champ électrique uniforme, via un développement perturbatif en puissances du champ électrique. Le spectre de Wannier-Stark obtenu est inhabituel dans le sens où il ne possède ni borne inférieure, ni borne supérieure. L'approche thermodynamique réalisée dans un second temps néglige la rupture diélectrique (l'effet tunnel Zener, où un électron saute d'une bande remplie vers une bande vide, permettant la conduction d'un courant dans un isolant de bandes) : j'étudie un système métastable de grande durée de vie lorsque le champ électrique est faible. Je résous la difficulté causée par l'absence d'un minimum d'énergie en introduisant un potentiel chimique local qui contraint le système dans son état métastable.

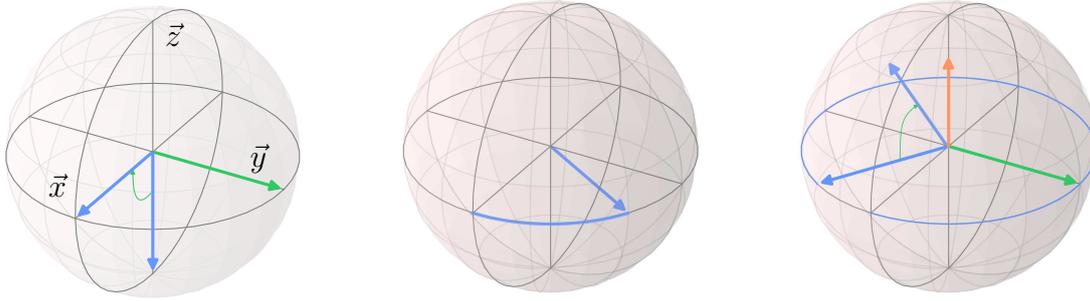


FIGURE 2 – A gauche : le spin (bleu) initialement préparé selon  $|\downarrow\rangle$  tel que  $\langle\downarrow|\vec{\sigma}|\downarrow\rangle = -\vec{z}$  est amené sur la superposition proportionnelle à  $|\downarrow\rangle + |\uparrow\rangle \sim \vec{x}$  via l’impulsion  $\frac{\pi}{2}$  qui est une rotation de  $\frac{\pi}{2}$  radians autour de l’axe  $\vec{y}$ . Elle est matérialisée en vert. Sur la sphère du milieu, du fait de la différence d’énergie entre  $|\downarrow\rangle$  et  $|\uparrow\rangle$ , une différence de phase est accumulée et se traduit par une précession dans le plan de l’équateur, matérialisée en bleu. À droite, à la fin de la séquence interférométrique, le spin bleu, dont la précession s’est poursuivie, subit une deuxième impulsion  $\frac{\pi}{2}$  autour de l’axe  $\vec{y}$ . Sa projection selon l’axe  $\vec{z}$ , matérialisée en orange, est reliée à sa probabilité  $P_R$  d’être mesuré dans l’état  $|\downarrow\rangle$  ou  $|\uparrow\rangle$ .

## Synchronisation et écho de spin dans les horloges atomiques

Le second projet présenté ici, et qui fait l’objet du deuxième chapitre concerne les gaz d’atomes froids, et plus précisément la dynamique de pseudo-spin observée dans les horloges atomiques.

Une horloge atomique est un dispositif de mesure du temps basé sur la fréquence du rayonnement électromagnétique émis par un électron lors du passage d’une orbitale atomique à une autre. La précision de ces appareils de mesure est telle qu’ils sont les dispositifs de référence pour la mesure du temps. Leur fonctionnement est basé sur le principe des oscillations de Rabi [11], et plus précisément sur une mesure interférométrique de type Ramsey [12].

L’interférométrie de Ramsey est une amélioration de la méthode de Rabi qui permet de mesurer la différence d’énergie  $\hbar\omega_0$  entre le niveau fondamental et un niveau excité d’un atome. Nous traitons par la suite les atomes comme des systèmes à deux niveaux, représentés par un pseudo-spin :  $|\downarrow\rangle$  correspond à l’état fondamental et  $|\uparrow\rangle$  au niveau excité. Un jet d’atomes préparés dans leur état fondamental est soumis à un champ électromagnétique d’amplitude  $B$  oscillant à la pulsation  $\omega$ , proche de  $\omega_0$ , pour une durée  $\tau$ . Ce champ induit une transition entre les états fondamental et excité des atomes qui se traduit par les oscillations de Rabi de la probabilité d’être mesuré dans l’état excité. Ainsi, à la fin de la durée  $\tau$ , une fraction  $P(\Delta = \omega - \omega_0, B, \tau)$  des atomes est mesurée dans l’état excité : la mesure de cette fraction permet d’obtenir le désaccord  $\Delta$  et par conséquent est une mesure du temps. La précision

de la mesure via la méthode des oscillations de Rabi est limitée par plusieurs quantités. Elle dépend du désaccord  $\Delta$  : plus il est faible, meilleure est la précision. Elle dépend également de l'homogénéité du champ électromagnétique  $B$  appliqué, de l'homogénéité des vitesses des atomes du jet atomique, ... La forme habituelle des oscillations de Rabi en fonction de  $\Delta$  pour  $\tau B = \pi$  est donnée par l'enveloppe de la courbe présentée par la figure 3.<sup>3</sup>

L'interférométrie de Ramsey permet d'améliorer la précision de la méthode de Rabi en utilisant les oscillations de Rabi pour transférer les atomes dans une superposition contrôlée de l'état fondamental et de l'état excité. La séquence est décrite par la figure 2. Une première impulsion laser, nommée impulsion  $\frac{\pi}{2}$ , transfère les atomes depuis l'état fondamental  $|\downarrow\rangle$  vers la superposition des états fondamental et excité, proportionnelle à  $|\downarrow\rangle + |\uparrow\rangle$ . Sur la sphère de Bloch où  $|\downarrow\rangle$  serait le pôle sud et  $|\uparrow\rangle$  le pôle nord, une impulsion  $\frac{\pi}{2}$  est une rotation de  $\frac{\pi}{2}$  rad autour de l'axe  $\vec{y}$ . Les atomes évoluent ensuite librement pour une durée  $T_R$ , le temps Ramsey, durant laquelle les états  $|\downarrow\rangle$  et  $|\uparrow\rangle$  acquièrent la différence de phase  $\omega_0 T_R$  : les atomes sont dans l'état  $|\downarrow\rangle + e^{i\omega_0 T_R} |\uparrow\rangle$ . Sur la sphère de Bloch, cette évolution libre se traduit par une précession le long de l'équateur à la fréquence  $\omega_0$ . Finalement, au bout de la durée  $T_R$ , les atomes sont soumis à une deuxième impulsion  $\frac{\pi}{2}$  qui se modélise sur la sphère de Bloch par une nouvelle rotation de  $\frac{\pi}{2}$  rad autour de l'axe  $\vec{y}$ . À cause de la précession libre durant  $T_R$ , la deuxième impulsion  $\frac{\pi}{2}$  n'envoie pas nécessairement les atomes sur l'état  $|\uparrow\rangle$  : ils sont envoyés sur une superposition des états fondamental et excité qui dépend de la phase accumulée durant la précession libre. Après mesure, une fraction  $P_R(\Delta, \omega_0, T_R)$  des atomes est détectée dans l'état excité. La forme de  $P_R$  en fonction du désaccord  $\Delta$  est présentée par la figure 3. Elle présente deux oscillations : la première, nommée franges de Ramsey est une oscillation à la fréquence  $\frac{\Delta}{\omega_0 T_R}$  et est reliée à la durée  $T_R$  de l'évolution libre. La deuxième, qui enveloppe les franges de Ramsey, correspond à  $P(\Delta, B, \tau = \frac{\pi}{B})$  et apparaît via l'utilisation des deux impulsions  $\frac{\pi}{2}$  qui utilisent les oscillations de Rabi. La mesure des franges de Ramsey permet de mesurer  $\omega_0$  et constitue donc une mesure du temps.

Tout comme les oscillations de Rabi, la mesure des franges de Ramsey est réalisée via la projection d'une superposition des états fondamental et excité sur l'état fondamental : ces mesures sont donc soumises au bruit de projection quantique. Un grand nombre d'atomes est nécessaire pour obtenir une mesure de précision. De plus, pour l'interférométrie de Ramsey, la précision est d'autant plus grande que le temps de mesure  $T_R$  est grand. Il est donc nécessaire de maintenir les atomes dans la superposition cohérente  $|\downarrow\rangle + e^{i\phi} |\uparrow\rangle$  le plus longtemps possible. Dans le domaine des atomes froids, l'augmentation du temps de cohérence passe par le refroidissement et le piégeage spatial des atomes (ceci réduit les inhomogénéités présentes dans un jet d'atomes chauds). Ce procédé permet d'obtenir des temps de cohérence très longs, de l'ordre de plusieurs centaines de millisecondes à quelques secondes. Mais le piégeage des atomes introduit par la même occasion une source de déphasage, car la différence d'énergie entre le niveau fondamental et le niveau excité dépend alors de la position des atomes dans le piège. Afin de pallier à cette

---

3. Les unités sont choisies de sorte à ce que le moment gyromagnétique du système des deux niveaux soit égal à 1.

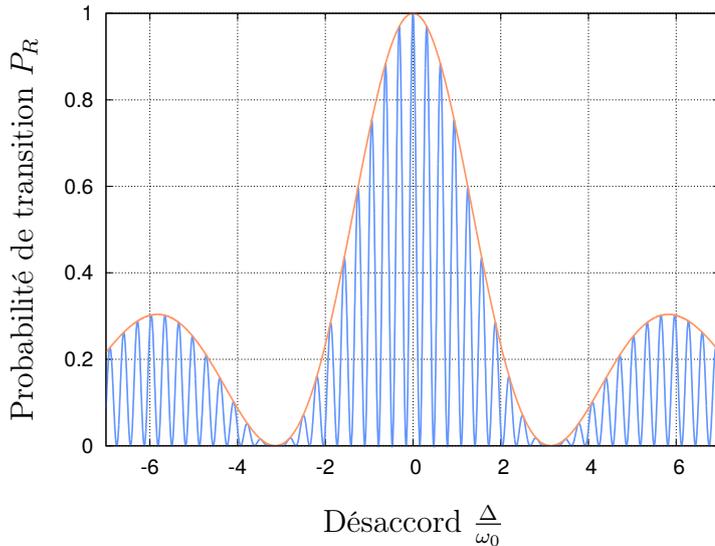


FIGURE 3 – Lors de la réalisation d’une séquence interférométrique de Ramsey, la probabilité de transition en fonction du désaccord à l’apparence suivante. Les franges de Ramsey, en bleu, sont d’autant plus serrées que la durée de la séquence est longue. L’enveloppe en orange correspond au profil des oscillations de Rabi créées par les impulsions  $\frac{\pi}{2}$  initiale et finale.

source de déphasage, la méthode de l’écho de spin, développée initialement pour l’imagerie par résonance nucléaire [13], peut être utilisée. Elle compense efficacement une partie des sources de déphasages introduites par le piégeage des atomes.

La course vers des temps de cohérence toujours plus longs conduit à utiliser des méthodes de refroidissement de plus en plus performantes et des températures toujours plus basses, de l’ordre de quelques centaines de nano-Kelvins. A cette température, les atomes piégés forment un gaz plus dense, dans lequel les interactions entre atomes entrent en jeu. L’effet principal de ces interactions est d’introduire une source supplémentaire d’inhomogénéité en raison des termes de champ moyen proportionnels à la densité, elle-même inhomogène. Cependant, lors des collisions entre atomes, l’effet de rotation des spins identiques [14] vient aussi modifier leur pseudo-spin via un « champ moyen d’échange ». À l’échelle du gaz, cet effet se traduit en un mécanisme d’auto-synchronisation qui vient augmenter le temps de cohérence [15].

Le travail présenté dans le deuxième chapitre de ce manuscrit est basé sur un projet, réalisé en collaboration avec le groupe expérimental *ForCa-G* (Forces de Casimir et Gravitation à courte distance) du laboratoire *SYRTE* (Systèmes de Référence Temps-Espace) de l’*Observatoire de Paris*. Je présente les équations qui décrivent la dynamique des pseudo-spin d’un gaz d’atomes froids, puis étudie la compétition inattendue entre l’écho de spin et le mécanisme d’auto-synchronisation. Ces mécanismes ne sont pas toujours compatibles : leur effet cumulé peut parfois être destructeur pour la cohérence de l’ensemble atomique. À chacun de ces deux phénomènes, il est possible d’associer une échelle de temps particulière ; je montre dans ce manuscrit qu’en l’absence de lien particulier entre ces deux échelles de temps, l’action cumulée des mécanismes détériore systématiquement le contraste.

# Chapitre 1

## Thermodynamique de la réponse électrique dans les isolants de bande

### 1 Introduction

La polarisation électrique et la susceptibilité électrique font partie des propriétés thermodynamiques qui caractérisent les matériaux diélectriques, et plus précisément, qui caractérisent la réponse d'un matériau à un champ électrique externe auquel ce dernier serait soumis.

Dans un solide diélectrique, ne comportant pas de charges libres susceptibles de se déplacer et donc de conduire le courant, la réponse à un champ électrique se produit à trois échelles différentes : la présence d'un champ électrique affecte les électrons de cœur, conduisant à la déformation des nuages électroniques des atomes et molécules constituant le solide, déplace les ions du solide, et affecte également les électrons de valence, génériquement décrits comme délocalisés sur l'ensemble du solide. La déformation des nuages électroniques atomiques et moléculaires peut être comprise à l'échelle d'un atome ou d'une molécule unique (et est traduite par les propriétés de polarisation et de polarisabilité atomique et moléculaire). Le déplacement des ions du solide est en général négligeable en l'absence de piézo-électricité. La contribution des charges électroniques délocalisées (les électrons de valence) est l'objet de ce chapitre.

Les premières étapes de la compréhension des propriétés de polarisation et de polarisabilité électrique remontent au XIX siècle. De cette compréhension découle l'approche de Clausius-Mossotti [2] : l'énergie de charges électriques classiques dans un champ électrique est proportionnelle à leur charge et à leur position. Les outils de la thermodynamique montrent qu'alors la polarisation est simplement le barycentre des charges électriques que sont les électrons et ions du solide. La polarisation peut donc être définie comme la densité de dipôles électriques par unité de volume, et en l'absence de dynamique spécifique associée aux ions ou aux électrons, la susceptibilité électrique provient de la polarisabilité atomique des ions constituant le réseau cristallin.

Lorsqu'un assemblage périodique de charges est réalisé, tel que c'est le cas dans un solide

cristallin, il suffit alors de s'intéresser à une unique cellule unité pour obtenir la polarisation. Cependant cette dernière acquiert une nouvelle propriété : celle de n'être définie que modulo la période du cristal formé. Ce modulo de polarisation est appelé *quantum du polarisation*. Il est important de noter que malgré son nom, le quantum de polarisation n'a aucun lien avec la constante de Plank  $\hbar$  apparaissant en mécanique quantique : ce dernier est déjà présent lorsqu'une description classique du cristal est employée. C'est une conséquence de l'invariance par translation de la distribution des charges. Ce modulo signifie qu'il n'est plus possible de connaître de manière exacte la polarisation présente dans le volume du cristal. Il reste cependant possible de lever cette ambiguïté, mais cela implique de connaître la façon dont est terminé le cristal et la charge de ses différentes surfaces.

Avec l'avènement de la description quantique des électrons, l'approche de Clausius-Mossotti perd sa signification lorsqu'elle est utilisée pour décrire les solides cristallins : la description quantique des électrons en ondes de Bloch conduit à une densité de charge continue et périodique. Définir la polarisation via  $\int \vec{r}\rho(\vec{r})d^3\vec{r}$  n'a plus de sens. Les travaux de King-Smith, Vanderbilt et Resta [3-5], revus de manière pédagogique dans [9], introduisent la *théorie moderne de la polarisation* qui pallie aux défauts de l'approche de Clausius-Mossotti. La *théorie moderne de la polarisation*, en accord avec la vision de [16], est une prescription de localisation pour les électrons de Bloch, dont les fonctions d'ondes sont délocalisées. Pour une bande donnée, cette prescription permet d'assigner de manière non-ambiguë une position aux électrons. La position associée aux électrons est elle-même définie modulo la période du cristal (le quantum de polarisation) introduisant ainsi de manière naturelle le quantum de polarisation dans l'approche de Clausius-Mossotti.

L'approche de King-Smith, Vanderbilt et Resta est basée sur l'observation suivante : comme la polarisation correspond à la densité de dipôles électriques par unité de volume, alors un changement de sa valeur correspond à un déplacement de charges électriques, c'est à dire à un courant adiabatique. Si le solide est déformé de manière à ce que cette densité de dipôles change, alors le courant électrique observé est proportionnel à la variation de la polarisation [10]. Si l'état final du cristal, après déformation, possède des propriétés de symétrie suffisantes pour que sa polarisation soit nulle modulo le quantum de polarisation, alors il est possible d'obtenir la valeur de la polarisation de l'état initial.

Cette approche, bien que parfaitement justifiée, est insatisfaisante sur un point particulier : la *théorie moderne de la polarisation* ne se base pas sur la définition thermodynamique de la polarisation, et ne permet pas d'accéder immédiatement à la polarisabilité électrique. Dans ce chapitre, nous explorons la polarisation et la polarisabilité électronique en nous basant sur leur définition thermodynamique.

- Dans la section 2, nous rappelons l'approche de Clausius-Mossotti et ses propriétés dans le cas d'un cristal périodique. Nous décrivons également les défauts de cette approche, et leur résolution via la *théorie moderne de la polarisation* de King-Smith, Vanderbilt et Resta,
- Dans la section 3, nous explorons le spectre dit de Wannier-Stark [8, 17, 18] d'un cris-

tal unidimensionnel en présence d'un champ électrique que nous introduisons dans le Hamiltonien de liaison forte en utilisant la jauge scalaire. Nous illustrons les résultats obtenus par l'utilisation de deux modèles jouets : une chaîne de dimères découplés et la chaîne de Rice-Mele, ou chaîne SSH,

- Dans la section 4 nous employons les outils de la physique statistique et nous nous attachons à résoudre les problèmes causés par le caractère non-borné du spectre de Wannier-Stark,
- Dans la section 5 nous étendons notre approche jusqu'alors purement unidimensionnelle au cas bidimensionnel en nous attachant à montrer les nouvelles caractéristiques entrant en jeu.

L'appendice A contient une copie de la publication correspondante [19].

## 2 De Clausius-Mossotti à la théorie moderne de la polarisation

Dans cette section, nous rappelons les propriétés basiques de la polarisation, associées à sa définition comme densité de dipôles électriques par la formule de Clausius-Mossotti, et nous détaillons brièvement la théorie moderne de la polarisation.

### 2.1 L'approche de Clausius-Mossotti

Lorsqu'un ensemble de charges est soumis à un champ électrique uniforme, son énergie est modifiée selon<sup>1</sup>

$$E(\vec{\varepsilon}) = E(\vec{\varepsilon} = 0) - \sum_i q_i \vec{\varepsilon} \vec{r}_i \quad (1.1)$$

où  $q_i$  est la charge de la particule située en  $\vec{r}_i$ . Lorsque la charge totale de l'ensemble de particules est nulle, alors l'énergie ne dépend pas de l'origine des positions, et sa dérivée première est la polarisation de l'ensemble. Elle vaut

$$\vec{\mathcal{P}} = -\frac{1}{V} \left. \frac{\partial}{\partial \vec{\varepsilon}} E \right|_{\vec{\varepsilon}=0} = \frac{1}{V} \sum_i q_i \vec{r}_i \quad (1.2)$$

où  $V$  est le volume de l'ensemble de charges. Pour un solide périodique comprenant  $N$  cellules unité de volume  $v$  contenant des paires de charges positives  $+q_i$  et négatives  $-q_i$  situées en  $r_i^+$  et  $r_i^-$ , la formule précédente se réécrit en

$$\vec{\mathcal{P}} = \frac{N}{V} \sum_i q_i \left( r_i^+ - r_i^- \right) = \frac{1}{v} \sum_{i \in \text{cellule unité}} \vec{d}_i \quad (1.3)$$

---

1. Nous considérons ici des charges sans dynamique : nous ne parlerons pas de la polarisabilité dans cette section.

où  $V = Nv$  et  $\vec{d}_i = q_i (r_i^+ - r_i^-)$  est le dipôle électrique associé à la paire de charges numéro  $i$ . Cette approche purement classique conduisant à la formule 1.3 montre que la polarisation est la densité de dipôles électriques par unité de volume.

## 2.2 Symétries, invariances et polarisation

À cause du lien entre polarisation et position, la polarisation doit respecter les symétries de la distribution de charges. Ainsi, pour une distribution possédant une invariance par rotation d'un angle  $\theta$ , si  $R_\theta$  est l'opérateur réalisant cette rotation, l'égalité  $R_\theta \vec{\mathcal{P}} = \vec{\mathcal{P}}$  doit être respectée : la polarisation est donc parallèle à l'axe de rotation. Lorsqu'une symétrie miroir est présente, la polarisation doit être parallèle au plan de symétrie, et lorsque deux symétries miroir sont présentes, la polarisation est contrainte à être orientée selon l'axe correspondant à l'intersection des deux plans définissant les symétries. En présence d'une symétrie miroir supplémentaire, la polarisation est nulle.

Lorsque nous considérons des solides cristallins, donc construits à partir d'une cellule unité répétée périodiquement selon les directions des vecteurs de Bravais  $\vec{a}_1, \vec{a}_2$  et  $\vec{a}_3$ , les relations entre les propriétés de symétrie de la polarisation et du solide changent drastiquement. En nous intéressant uniquement au volume du solide (donc en ignorant les bords et les conditions aux limites), nous ne pouvons pas définir la polarisation de manière absolue. Comme le volume est invariant par translation, alors la polarisation doit l'être également : elle est définie modulo les vecteurs  $\vec{q}_1 = \frac{e}{n_q v} \vec{a}_1, \vec{q}_2 = \frac{e}{n_q v} \vec{a}_2$  et  $\vec{q}_3 = \frac{e}{n_q v} \vec{a}_3$  qui sont parallèles aux directions d'invariance par translation du solide.  $n_q$  est le nombre de charges électroniques par cellules unité et  $v$  le volume de la cellule unité.

Les propriétés vis-à-vis des symétries de rotation et miroir sont modifiées : en présence d'une invariance par rotation d'angle  $\theta$ , il n'est pas nécessaire que la polarisation satisfasse  $R_\theta \vec{\mathcal{P}} = \vec{\mathcal{P}}$ , mais il faut qu'il existe des entiers  $n_1, n_2$  et  $n_3$  tels que  $R_\theta \vec{\mathcal{P}} = \vec{\mathcal{P}} + n_1 \vec{q}_1 + n_2 \vec{q}_2 + n_3 \vec{q}_3$ . De manière similaire, si la cellule unité possède une symétrie miroir orthogonale à l'axe  $\vec{a}_1$ , alors il existe un entier tel que  $\vec{\mathcal{P}} \cdot \vec{a}_1 = \frac{n}{2} \vec{q}_1$  : la polarisation peut posséder une composante non-nulle dans la direction orthogonale au plan de symétrie.

## 2.3 L'échec de l'approche de Clausius-Mossotti pour les solides cristallins

Dans [3-5], King-Smith, Vanderbilt et Resta reviennent sur l'approche jusqu'alors existante pour la définition et le calcul de la polarisation électrique, l'approche de Clausius-Mossotti. Comme détaillée précédemment, cette dernière stipule que, pour un solide cristallin, la polarisation est définie comme la somme des moments dipolaires à l'intérieur d'une cellule unité (équation 1.3). Cette approche serait valide dans le cas où il serait possible d'identifier sans ambiguïté les positions des charges électriques dans la cellule unité. Les matériaux réels ne vérifient cependant pas cette hypothèse car en mécanique quantique la distribution des charges

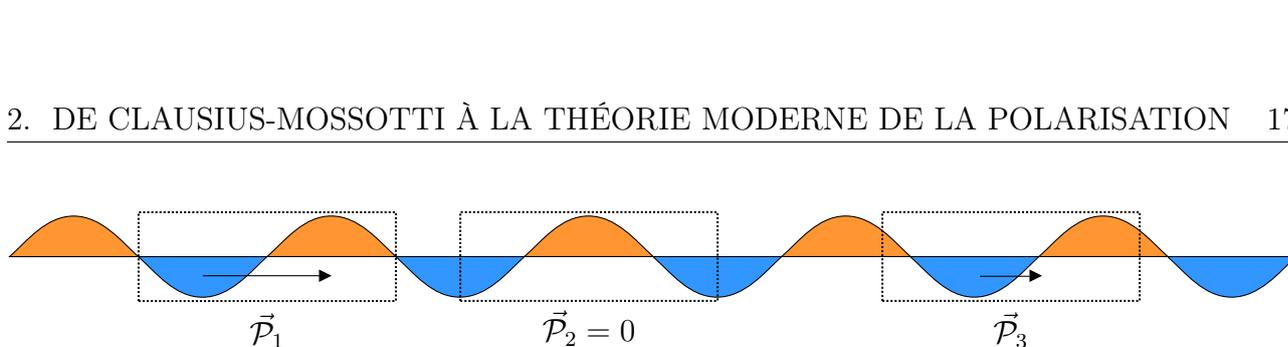


FIGURE 1.1 – Distribution périodique de charges, en orange les régions de charge positive, en bleu les zones de charge négative. Les trois choix arbitraires de cellule unité (en pointillés noir) présentés conduisent à trois valeurs différentes de la polarisation  $\vec{\mathcal{P}}_1 \neq \vec{\mathcal{P}}_2 \neq \vec{\mathcal{P}}_3$ . De manière générique pour une distribution de charge continue, pour n'importe quelle valeur de polarisation, il existe un choix de cellule unité conduisant à cette valeur.

électroniques est continue et périodique : il n'est pas possible d'identifier sans ambiguïté les dipôles électriques dans une cellule unité - leur identification dépend fortement du choix de la cellule unité comme le représente la figure 1.1. Un exemple typique d'un tel cas est le silicium cristallin dans la direction [111] [10].

Il n'est pas non plus satisfaisant de définir la polarisation sur l'entièreté d'un cristal de taille finie et de volume  $V$  via

$$\vec{\mathcal{P}} = \frac{1}{V} \int_V \vec{r} \rho(\vec{r}) d^3\vec{r} \quad (1.4)$$

où  $\rho(\vec{r})$  est la densité de charge, car il est possible de préparer un échantillon cubique en chargeant une surface par une charge  $+\delta\sigma$  et en chargeant la surface opposée par  $-\delta\sigma$ . La charge totale est conservée, mais la polarisation du cristal a changé, tandis que l'intérieur du cristal n'a pas été modifié. Une telle approche ne peut donc pas distinguer la contribution du volume de la contribution des bords. Il n'est pas non plus possible de définir la contribution du volume comme

$$\vec{\mathcal{P}} = \frac{1}{\text{Volume}(R)} \int_R \vec{r} \rho(\vec{r}) d^3\vec{r} \quad (1.5)$$

où  $R$  est une région située suffisamment au cœur de l'échantillon pour ne pas être sensible à l'ajout de charges à la surface. Comme la figure 1.1 l'illustre, cette définition est arbitrairement dépendante du choix de la région  $R$ . L'électromagnétisme dans les milieux diélectriques nous fournit une dernière tentative de définition de la polarisation : elle consisterait à chercher une quantité  $\vec{\mathcal{P}}_{micro}(\vec{r})$  vérifiant  $\vec{\nabla} \cdot \vec{\mathcal{P}}_{micro}(\vec{r}) = -\rho(\vec{r})$ , et de définir ensuite la polarisation comme la moyenne de  $\vec{\mathcal{P}}_{micro}$  sur une cellule unité, mais à nouveau cette tentative conduit à une définition arbitraire de la polarisation, car  $\vec{\mathcal{P}}_{micro}$  est définie à un champ de divergence nulle près.

Cette impossibilité de définir la polarisation de volume via une approche telle que Clausius-Mossotti [10] démontre que la polarisation dans un solide cristallin ne dépend pas uniquement de la densité de charge. La théorie moderne de la polarisation ainsi que l'approche prise dans

ce manuscrit montrent que la polarisation et la polarisabilité dépendent explicitement de l'amplitude complexe des fonctions de Bloch des électrons de valence : la polarisation électrique des diélectriques cristallins est donc une propriété quantique.

## 2.4 Théorie moderne de la polarisation

Ayant fait le constat que l'approche de Clausius-Mossotti ne permet pas de décrire la polarisation de volume d'un solide cristallin, Vanderbilt et Resta font la remarque suivante : si un solide est mis en court-circuit afin qu'il ne soit pas chargé en surface, comme le présente la figure 1.2, alors une déformation du cristal, qui se traduit par un changement de la polarisation, se traduit aussi par un courant électrique mesuré via le court-circuit. Cette remarque peut-être généralisée à toutes les déformations possibles du solide cristallin : quelque soit la déformation, non seulement liée à la pression, mais aussi à la déformation de la cellule unité, ou à un changement des termes de saut du modèle de liaison forte associé, ou encore à un champ électrique lentement modifié. Si cette déformation change la polarisation, alors elle produit également un courant électrique adiabatique au sein du matériau isolant, selon la loi suivante

$$\frac{d}{dt}\vec{\mathcal{P}}(t) = \vec{j}(t) \quad (1.6)$$

où  $\vec{j}$  est le courant électrique mesuré. Le changement de polarisation entre les configurations initiales (à  $t = t_i$ ) et finales (atteinte à  $t = t_f$ ) du cristal est donc

$$\Delta\vec{\mathcal{P}} = \vec{\mathcal{P}}_{t_f} - \vec{\mathcal{P}}_{t_i} = \int_{t_i}^{t_f} \vec{j}(t) dt \quad (1.7)$$

Lorsque la déformation est réalisée de manière adiabatique, c'est à dire lorsque  $t_f - t_i \gg \frac{\hbar}{W_{gap}}$  ( $W_{gap}$  est la largeur de la bande interdite), alors  $t_f$  tends vers l'infini et  $\vec{j}$  tends vers zéro, mais l'intégrale garde une valeur finie. Tout au long de la déformation, le cristal doit rester isolant, sinon il n'est pas possible de considérer la transformation comme adiabatique.

Dans le cas adiabatique, le paramètre temps n'est plus le bon paramètre de contrôle : seul le chemin suivi durant la transformation compte. Nous pouvons paramétrer le hamiltonien du système par le paramètre sans dimension  $\lambda$ , et la transformation consiste à faire passer  $\lambda$  de 0 à 1. En l'absence de spin et d'interactions entre électrons, les états accessibles à ces derniers sont les états propres du Hamiltonien  $H(\lambda)$ . Comme le solide est cristallin, le Hamiltonien est invariant sous les translations discrètes et ses états propres sont les ondes de Bloch  $|\psi_\alpha(k, \lambda)\rangle$  où  $\alpha$  est l'indice de bande et  $k$  l'impulsion cristalline de l'onde de Bloch.  $|\psi_\alpha(k, \lambda)\rangle$  se réécrit sous la forme d'une onde plane associée à une fonction  $u_\alpha(k, \lambda)$  définie sur la cellule unité :  $|\psi_\alpha(k, \lambda)\rangle = e^{i\vec{k}\cdot\hat{R}} |u_\alpha(k, \lambda)\rangle$ . La théorie de perturbation adiabatique [20] stipule qu'au premier ordre,

$$|\psi_\alpha(k, \lambda + \delta\lambda)\rangle = |\psi_\alpha(k, \lambda)\rangle - i\hbar\delta\lambda \sum_{\beta \neq \alpha} \frac{\langle u_\beta(k, \lambda) | \partial_\lambda u_\alpha(k, \lambda) \rangle}{E_\alpha(k, \lambda) - E_\beta(k, \lambda)} |\psi_\beta(k, \lambda)\rangle \quad (1.8)$$

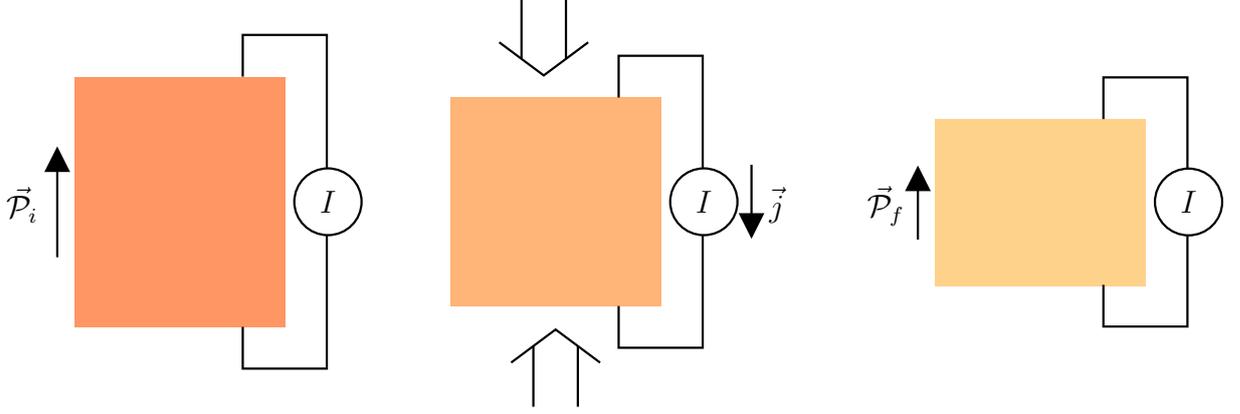


FIGURE 1.2 – Protocole de mesure d'un changement de polarisation dans un matériau au cours d'une déformation adiabatique. À gauche : le matériau, initialement de polarisation  $\vec{\mathcal{P}}_i$ , est mis en court-circuit afin de ne pas présenter de charges de surface. Au centre : il est ensuite déformé, et le changement de polarisation produit un courant qui est mesuré dans le fil de court-circuit. Après déformation, à droite, la polarisation du matériau vaut  $\vec{\mathcal{P}}_f = \vec{\mathcal{P}}_i + \int_{t_i}^{t_f} \vec{j}(t) dt$ .

où  $E_\alpha(k, \lambda)$  est l'énergie propre de l'état  $|\psi_\alpha(k, \lambda)\rangle$ . Nous obtenons donc le courant associé au changement de  $\lambda$  de  $\delta\lambda$  en un temps  $\delta t$ . Pour les électrons de la bande  $\alpha$ , intégralement remplie car le solide doit être isolant, le courant est

$$\vec{j}_\alpha = \frac{ie\hbar}{m} \frac{\delta\lambda}{\delta t} \sum_{\beta \neq \alpha} \int_{BZ} \frac{\langle \psi_\alpha(k, \lambda) | [\hat{r}, \hat{H}] | \psi_\beta(k, \lambda) \rangle \langle u_\beta(k, \lambda) | \partial_\lambda u_\alpha(k, \lambda) \rangle}{E_\alpha(k, \lambda) - E_\beta(k, \lambda)} \frac{d^3\vec{k}}{(2\pi)^3} + c.c. \quad (1.9)$$

Lorsque le cristal n'est pas de dimension 3, la formule diffère via le facteur  $\frac{1}{(2\pi)^3}$ . Le facteur  $\frac{\delta\lambda}{\delta t}$  est compensé en écrivant  $\partial_t \vec{\mathcal{P}}_\alpha = d_t \lambda \partial_\lambda \vec{\mathcal{P}}_\alpha$ . Il est ensuite possible de transformer l'intégrande de l'équation 1.9 en

$$\langle \vec{\nabla}_k u_\alpha(k, \lambda) | \partial_\lambda u_\alpha(k, \lambda) \rangle \quad (1.10)$$

donnant

$$\frac{d}{d\lambda} \vec{\mathcal{P}} = ie \int_{BZ} \langle \vec{\nabla}_k u_\alpha(k, \lambda) | \partial_\lambda u_\alpha(k, \lambda) \rangle \frac{d^3\vec{k}}{(2\pi)^3} \quad (1.11)$$

Finalement, si l'état initial du Hamiltonien est un état de polarisation nulle (car possédant suffisamment de symétries), alors la contribution des électrons de la bande  $\alpha$  à la polarisation de l'état final est

$$\vec{\mathcal{P}}_n = e \int_{BZ} \text{Im} \langle u_\alpha(k, \lambda = 1) | \vec{\nabla}_k | u_\alpha(k, \lambda = 1) \rangle \frac{d^3\vec{k}}{(2\pi)^3} \quad (1.12)$$

L'intégrande de cette équation est connu sous le nom de connexion de Berry.

Via cette approche, Vanderbilt et Resta peuvent définir la polarisation liée au volume d'un solide cristallin. Cette définition n'est pas soumise aux défauts de la formule de Clausius-Mossotti : sa valeur ne dépend pas d'un choix arbitraire de la cellule unité. Parce que la phase de Zak est définie modulo  $2\pi$ , la polarisation contient naturellement le quantum de polarisation, en accord avec le propriété d'invariance par translation du réseau cristallin.

Il est également possible de montrer que la théorie moderne de la polarisation correspond à l'approche de Clausius-Mossotti si une prescription de localisation est faite pour les électrons des bandes remplies : ces derniers peuvent être réécrits comme une superposition d'états localisés, les états de Wannier<sup>2</sup>, que nous étudierons plus en détails dans la suite du manuscrit. Pour la bande  $\alpha$ , ces états ont la particularité d'être localisés aux positions

$$\vec{R} + \int_{BZ} \text{Im} \left\langle u_\alpha(k) \left| \vec{\nabla}_k \right| u_\alpha(k) \right\rangle \frac{d^3\vec{k}}{(2\pi)^3} \quad (1.13)$$

où  $\vec{R} = n_1\vec{a}_1 + n_2\vec{a}_2 + n_3\vec{a}_3$  avec  $n_1, n_2$  et  $n_3$  des nombres entiers et  $\vec{a}_1, \vec{a}_2$  et  $\vec{a}_3$  les trois vecteurs de Bravais du cristal. La prescription de localisation peut être détaillée de la manière suivante. Comme le déterminant de Slater d'une bande remplie se réécrit en utilisant les fonctions de Wannier, nous pouvons considérer les électrons comme décrit par des fonctions d'ondes localisées. Il est alors possible de définir une cellule unité contenant un ions et un électron localisé (ou deux ions et deux électrons si deux bandes sont remplies, ...), telle que le cristal soit la répétition de cette cellule unité. De plus, nous pouvons lui associer une densité de charge  $\rho_l$  : la densité de charge reliée à la fonction de Wannier choisie, à laquelle s'ajoute la contribution des ions ponctuels. Cette densité de charge décroît rapidement en s'éloignant de la cellule unité, le calcul de  $\int \vec{r}\rho(\vec{r})d^3\vec{r}$  ne pose plus de problèmes et est proportionnel à la polarisation. Via cette prescription de localisation, l'approche de Clausius-Mossotti correspond à la théorie moderne de la polarisation. La densité de charge continue et périodique est découpée en contributions continues mais localisées, et associées à une cellule unité.

La théorie moderne de la polarisation a été ensuite adaptée par Nunes et Vanderbilt [22] pour pouvoir être ré-écrite directement dans l'espace réel en vue de calculs numériques, et traite également le cas de la polarisation induite et donc de la polarisabilité. Elle a été également appliquée aux calculs de type DFT (*density-functional theory*, fonctionnelle de densité) via l'introduction d'une fonctionnelle de l'énergie dépendante de la polarisation [23-25] : sous réserve que la polarisation est donnée par la formule de King-Smith, Vanderbilt et Resta, ces approches permettent d'accéder à la polarisabilité et aux ordres suivant de la dépendance en champ électrique de la polarisation.

---

2. Dans le cadre des solides cristallins, les états de Wannier désignent des états généralement localisés construits à partir des ondes de Bloch d'une bande particulière. Leur longueur de localisation minimale est reliée au tenseur métrique [21]. En présence d'un champ électrique, les états propres d'un cristal sous champ sont appelés états de Wannier-Stark. États de Wannier et états de Wannier-Stark sont deux concepts différents, bien que reliés.

### Notes sur la théorie géométrique des bandes

La théorie géométrique des bandes est une approche récente de la théorie des bandes. Elle intervient entre autres dans les domaines de la polarisation, de la susceptibilité magnétique orbitale et de la théorie topologique des bandes (isolants de Chern) [20, 26]. Les quantités d'intérêt dans la théorie géométrique des bandes sont construites à partir de la composante  $|u_\alpha(\vec{k})\rangle$  fonctions d'ondes.

La connexion de Berry est définie par

$$\mathcal{A}_i^\alpha(\vec{k}) = -\text{Im} \left\langle u_\alpha(\vec{k}) \left| \partial_{k_i} u_\alpha(\vec{k}) \right. \right\rangle \quad (1.14)$$

et intervient dans le calcul des phases de Berry qui sont des intégrales curvilignes le long de chemins fermés dans la zone de Brillouin. La phase de Berry décrit l'évolution de la phase des fonctions d'ondes le long de l'intégrale curviligne [27]. La phase de Zak est également une intégrale curviligne, mais le chemin d'intégration est une boucle qui traverse la zone de Brillouin. Les deux extrémités de la boucle sont identifiées grâce à la périodicité de la zone de Brillouin.

$$Z_x^\alpha(k_y, k_z) = \oint_{k_x} \vec{\mathcal{A}}^\alpha(\vec{k}) \cdot d\vec{k}_x \quad (1.15)$$

Les phases de Zak interviennent notamment dans le calcul de la polarisation.

La courbure de Berry est définie par

$$\vec{\Omega}^\alpha = \vec{\nabla}_{\vec{k}} \times \vec{\mathcal{A}}^\alpha \quad (1.16)$$

ce qui se réécrit sur la forme

$$\Omega_l^\alpha(\vec{k}) = \epsilon^{lij} (\partial_{k_i} \mathcal{A}_j^\alpha - \partial_{k_j} \mathcal{A}_i^\alpha) \quad (1.17)$$

où  $\epsilon^{ijl}$  est le tenseur totalement antisymétrique. En dimension deux, la courbure de Berry intervient notamment dans le calcul du nombre de Chern d'une bande

$$C^\alpha = \frac{1}{2\pi} \int_{BZ} \Omega_z^\alpha(\vec{k}) d^2\vec{k} = \frac{1}{2\pi} \int_{BZ} \vec{\Omega}^\alpha(\vec{k}) \cdot d\vec{S} \quad (1.18)$$

où nous avons réécrit la première égalité sous sa forme de flux au travers d'une surface, permettant la généralisation aux dimensions trois et supérieure. Le nombre de Chern est une quantité topologique et quantifiée. C'est un nombre entier qui vaut zéro pour les isolants dits non-topologiques et différent de zéro pour les isolants topologiques tel que le modèle de Haldane [28].

Le tenseur métrique est défini par [27]

$$g_{ij}^\alpha(\vec{k}) = \text{Re} \left\langle \partial_{k_i} u_\alpha(\vec{k}) \left| \partial_{k_j} u_\alpha(\vec{k}) \right. \right\rangle - \mathcal{A}_i^\alpha(\vec{k}) \mathcal{A}_j^\alpha(\vec{k}) \quad (1.19)$$

Le tenseur métrique et la courbure de Berry peuvent être combinés pour former le tenseur métrique

$$T_{ij}^\alpha(\vec{k}) = g_{ij}^\alpha(\vec{k}) - \frac{i}{2} \epsilon^{ijl} \Omega_l^\alpha(\vec{k}) \quad (1.20)$$

Il intervient notamment dans la susceptibilité magnétique orbitale [29].

## 2.5 Approche thermodynamique

La théorie moderne de la polarisation permet de réconcilier la vision classique de Clausius-Mossotti avec la nature quantique et délocalisée des électrons dans les solides cristallins. Son point de départ est une analogie avec la vision classique de la polarisation : dans la vision classique, une déformation conduisant à un changement de la polarisation correspond à un mouvement de charges, auquel est associé un courant. Dans la théorie moderne de la polarisation, les auteurs s'intéressent au courant associé à une déformation quelconque et l'associent au changement de la polarisation.

Dans ce chapitre, et comme annoncé dans l'introduction, nous repartons de la définition thermodynamique de la polarisation et de la polarisabilité : ces deux quantités sont la réponse au premier et au second ordre de l'énergie libre à un champ électrique externe. Cette volonté de se baser sur la définition thermodynamique structure la suite de ce chapitre. Dans la section suivante, la section 3, nous nous intéressons aux énergies propres d'un cristal unidimensionnel en présence d'un champ électrique, et nous détaillons ses propriétés. Une fois les énergies propres du système connues, nous pourrions utiliser les outils de la thermodynamique dans la section 4 afin d'obtenir la polarisation et la polarisabilité, en prenant soin de détailler les difficultés d'une telle approche. La section 5 présente la généralisation du travail effectué au cas de la dimension deux.

## 3 États propres sous champ : les états de Wannier-Stark

La première étape à réaliser en vue de faire l'étude des propriétés thermodynamiques d'un cristal soumis à un champ électrique consiste à obtenir les différents états accessibles au système, et en particulier ses niveaux d'énergie.

Nous proposons dans cette section une dérivation des états propres d'un système unidimensionnel soumis à un champ électrique statique. Nous nous intéressons donc à un cristal de dimension une, modélisé dans l'approximation des liaisons fortes, comprenant  $N$  cellules unités, chacune d'entre elle contribuant pour  $N_b$  orbitales atomiques. Nous adimensionnons toutes les longueurs par la taille d'une cellule unité, ainsi, la taille d'une cellule unité est  $a = 1$ .

Nous traitons la partie ionique du système de manière minimale : le réseau ionique est rigide, et n'a pas de dynamique, et ne contribue donc pas à la susceptibilité électrique. En revanche, les ions constituant le réseau portent une charge électrique, de sorte à ce que le cristal, dans son

intégralité, soit neutre électriquement. L'origine des positions est choisie de sorte à coïncider le barycentre des positions des ions, pondérés par leur charge. Ce choix permet de ne pas avoir à tenir compte de la contribution des ions à la polarisation.

Concernant la partie électronique, nous supposons de plus que chacune des bandes du spectre du système est isolée des autres<sup>3</sup>. Les électrons ne portent pas de spin, car le spin ne joue aucun rôle en l'absence d'un champ magnétique, et portent une charge électrique de  $-e = -1$ .

Finalement, nous prendrons la limite thermodynamique de ce système, où  $N$ , le nombre de cellules unités, tends vers l'infini.

### 3.1 Généralités

En l'absence de champ électrique, nous notons  $\widehat{H}_0$  le Hamiltonien du système. Il est invariant par translation dans le temps, et dans la limite thermodynamique il est également invariant par translations discrètes dans l'espace. Les  $N_b$  orbitales atomique sont notées  $|n, i\rangle$ , où  $-\frac{N}{2} < n \leq \frac{N}{2}$  et  $1 < i \leq N_b$ , et les états propres du Hamiltonien sont des états de Bloch notés  $|E^\alpha(k)\rangle$ , où  $1 < \alpha \leq N_b$  est l'indice de bande et  $k$  l'impulsion cristalline appartient à la première zone de Brillouin  $]-\pi, \pi]$ .

Comme nous souhaitons obtenir le spectre du système, il est nécessaire que le Hamiltonien en présence du champ électrique reste invariant par translation dans le temps : sans cette symétrie, l'énergie n'est plus une quantité conservée et nous ne pourrions plus réaliser l'approche thermodynamique du système. Ainsi nous introduisons le champ électrique dans la jauge de Coulomb, où ce dernier prend la forme d'un potentiel scalaire : cette jauge est la seule qui préserve l'invariance par translation dans le temps. Le Hamiltonien en présence du champ, qui correspond à l'opérateur énergie, est

$$\widehat{H}(\varepsilon) = \widehat{H}_0 - e\varepsilon\widehat{X} = \widehat{H}_0 - \varepsilon\widehat{X} \quad (1.21)$$

où  $\varepsilon$  est le champ électrique, tandis que  $\widehat{X}$  est l'opérateur position, qui peut se décomposer sous la forme

$$\langle m, i | \widehat{X} | n, j \rangle = (m + x_i) \delta_{m,n} \delta_{i,j} \quad (1.22)$$

où  $m$  est la position de la cellule unité dans laquelle se trouve l'orbitale  $|m, i\rangle$  et  $x_i$  la position de cette dernière à l'intérieur de la cellule unité, et nous supposons que les orbitales  $|m, i\rangle$  sont orthogonales entre elles :  $\langle m, i | n, j \rangle = \delta_{m,n} \delta_{i,j}$ .

En présence de champ électrique, l'invariance par translation dans l'espace du Hamiltonien est brisée, néanmoins il vérifie l'identité dite d'échelle  $\widehat{T}_a^{-n} \widehat{H}(\varepsilon) \widehat{T}_a^n = \widehat{H}(\varepsilon) + \varepsilon n \widehat{1}$ , où  $\widehat{T}_a$  est l'opérateur translation d'une cellule unité. En conséquence, si  $|\psi\rangle$  est un état propre du Hamiltonien  $H(\varepsilon)$  d'énergie  $E(\varepsilon)$ , alors l'identité d'échelle implique que tous les état  $\widehat{T}_a^n |\psi\rangle$  sont

---

3. Cette restriction n'est pas nécessaire, il suffit que les bandes occupées soit séparées des bandes libres par une bande interdite.

également des états propres dont l'énergie est  $E(\varepsilon) + n\varepsilon$ . Parmi ces états, un, que nous notons  $|E_0\rangle$ , d'énergie  $E(\varepsilon)$ , est situé à l'origine, c'est à dire qu'il vérifie

$$-\frac{1}{2} < X(E) = \langle E_0 | \widehat{X} | E_0 \rangle \leq \frac{1}{2} \quad (1.23)$$

Les états translatés, qui sont aussi états propres, vérifient donc

$$\begin{aligned} |E_n\rangle &= \widehat{T}_a^n |E_0\rangle \\ E_n &\equiv \langle E_n | \widehat{H} | E_n \rangle = E(\varepsilon) + n\varepsilon \\ X_n(\varepsilon) &\equiv \langle E_n | \widehat{X} | E_n \rangle = X(\varepsilon) + n \end{aligned} \quad (1.24)$$

Les propriétés ci-dessus que vérifie la famille d'états  $\{|E_n\rangle, n \in \mathbb{Z}\}$  sont les propriétés essentielles de l'échelle de Wannier-Stark [30], qui est le nom donné au spectre d'un cristal en présence d'un champ électrique. Il est représenté sur la figure 1.3. Les états  $|E_n\rangle$  sont appelés états de Wannier-Stark. Ces états ne doivent pas être confondus avec les états de Wannier du cristal en l'absence de champ électrique ; nous verrons par la suite le lien existant entre ces deux types d'états a priori distincts.

Il est simple de montrer que la totalité du spectre de  $\widehat{H}(\varepsilon)$  consiste en  $N_b$  échelles de Wannier-Stark, pour toutes les valeurs du champ  $\varepsilon \neq 0$ . Il y a autant de bandes à champ nul que d'échelles de Wannier-Stark à champ fini. Nous les indiquons donc via  $1 \leq \alpha \leq N_b$ . Schématiquement, le spectre de Wannier-Stark se résume à

$$|E_n^\alpha\rangle = \widehat{T}_a^n |E^\alpha\rangle \quad (1.25)$$

$$E_n^\alpha(\varepsilon) = E^\alpha(\varepsilon) + n\varepsilon \quad (1.26)$$

$$X_n^\alpha = X^\alpha(\varepsilon) + n \quad (1.27)$$

Les quantités  $|E^\alpha\rangle$ ,  $E^\alpha(E)$  et  $X^\alpha(\varepsilon)$  sont appelées état central, centre en énergie et position centrale de l'échelle  $\alpha$  et ces propriétés sont illustrés sur la figure 1.3. A ce point, il est important de noter que l'indice  $\alpha$  donné aux bandes du spectre d'énergie en l'absence de champ diffère de l'indice  $\alpha$  donné aux différentes échelles de Wannier-Stark en présence du champ. Nous verrons par la suite qu'il existe un lien entre ces indices.

Toutes les propriétés énoncés précédemment assument de manière implicite que les états de l'échelle de Wannier-Stark sont des états localisés, ce que nous justifierons par la suite. Ces états étant localisés, nous pouvons leur associer une longueur de localisation  $\xi^\alpha$ , qui est identique pour tous les états d'une même échelle. Une estimation de cette longueur de localisation est obtenue en calculant l'étalement moyen de l'état central

$$(\xi^\alpha)^2 = \left\langle E^\alpha \left| \left( \widehat{X} - X^\alpha(\varepsilon) \right)^2 \right| E^\alpha \right\rangle = \frac{1}{\varepsilon^2} \left\langle E^\alpha \left| \left( \widehat{H}(\varepsilon) - \langle E_n^\alpha | \widehat{H}_0 | E_n^\alpha \rangle \right)^2 \right| E^\alpha \right\rangle \quad (1.28)$$

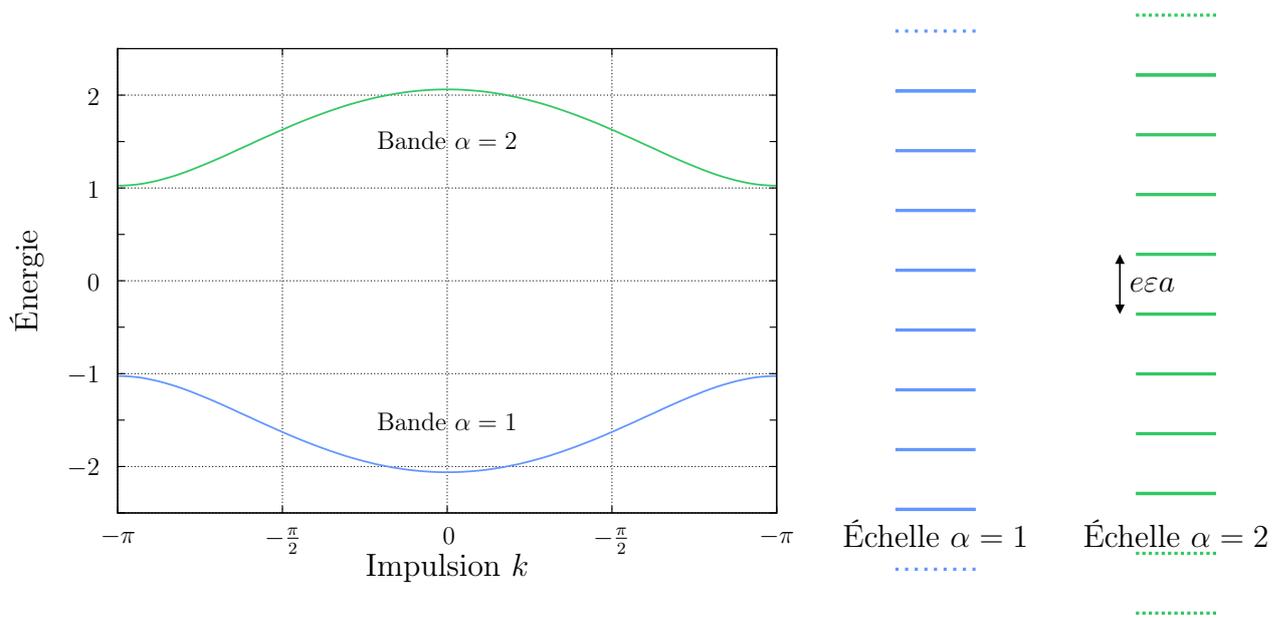


FIGURE 1.3 – À gauche, à champ nul, le spectre d'un modèle de liaison forte est un spectre de bandes qui portent ici les indices  $\alpha = 1$  et  $\alpha = 2$ . À droite, pour une valeur du champ fixé, le spectre est composé de deux échelles de Wannier-Stark émergeant des deux bandes du modèle. Les échelles portent également les indices  $\alpha = 1$  et  $\alpha = 2$  mais ces derniers diffèrent à priori des indices de bandes. La différence entre les niveaux d'énergie d'une même échelle est constante et vaut  $e\epsilon a$ , avec  $a = 1$  la taille de la cellule unité.

où  $\langle E_n^\alpha | \widehat{H}_0 | E_n^\alpha \rangle$  ne doit pas être confondu avec  $E_n^\alpha(\varepsilon)$ , le centre en énergie de l'échelle  $\alpha$  (nous verrons que ces deux quantités deviennent égales dans la limite  $\varepsilon \rightarrow 0$ ). Dans la limite des champs faibles, où nous pouvons supposer que les états d'une même échelle de Wannier-Stark sont des combinaisons linéaires des états de Bloch d'une même bande, nous pouvons estimer cette longueur de localisation à  $\xi^\alpha = \frac{W_\alpha}{\varepsilon}$ , où  $W_\alpha$  est la largeur de la bande d'indice  $\alpha$  (à champ nul) dont les états de Wannier-Stark de l'échelle  $\alpha$  sont majoritairement issus. Cette longueur de localisation est en accord avec l'expression semi-classique des oscillations de Bloch [7, 31].

### 3.2 Échelle de Wannier-Stark et diagonalisation par bloc

Nous avons montré que les états d'une même échelle de Wannier-Stark sont générés par l'opérateur translation, et chaque échelle correspond donc à la famille  $\{|E_n^\alpha(\varepsilon)\rangle, n \in \mathbb{Z}\}$ . Pour une valeur donnée du champ, l'espace de Hilbert total est donc décomposé en  $N_b$  sous-espaces orthogonaux, indicés par  $\alpha$ , dont ces familles sont des bases. À cause de l'identité d'échelle, qui relie  $|E_n^\alpha\rangle$  et  $|E_{n+1}^\alpha\rangle$  par  $|E_{n+1}^\alpha\rangle = \widehat{T}_a |E_n^\alpha\rangle$ , ces sous-espaces sont stables vis-à-vis de la translation  $\widehat{T}_a$ . De plus, le Hamiltonien  $\widehat{H}(\varepsilon)$  est bloc-diagonal : ses éléments de matrice entre deux états provenant de sous-espaces distincts sont nuls.

Supposons donc maintenant que nous avons décomposé l'espace en  $N_b$  sous-espaces orthogonaux vis-à-vis desquels le Hamiltonien est bloc-diagonal, et que ses sous-espaces sont stables sous l'action de l'opérateur translation  $\widehat{T}_a$ . Notons  $|\psi^\alpha\rangle$  un état d'un de ces sous-espaces ; la famille  $\{|\psi_n^\alpha\rangle = \widehat{T}_a^n |\psi^\alpha\rangle, n \in \mathbb{Z}\}$  est donc une base.

Nous supposons également qu'aucune échelle n'est dégénérée, c'est à dire que quels que soient l'entier  $n$  et les indices  $\alpha \neq \beta$ , l'énergie  $E_\alpha$  est différente de  $E_\beta + \varepsilon n$ .<sup>4</sup> Chacun des sous-espaces générés par les familles  $\{|\psi_n^\alpha\rangle = \widehat{T}_a^n |\psi^\alpha\rangle, n \in \mathbb{Z}\}$  correspond à une échelle de Wannier-Stark, ce que nous montrons maintenant. Prenons deux états propres  $|\phi_1\rangle$  et  $|\phi_2\rangle$  de  $H$ , d'énergies  $E_1$  et  $E_2$ . Si  $|\phi_1\rangle \neq |\phi_2\rangle$ , alors les énergies  $E_1$  et  $E_2$  sont distinctes, car nous supposons les échelles de Wannier-Stark non dégénérées. Nous souhaitons montrer que  $|\phi_1\rangle$  appartient à un des sous-espaces orthogonaux mentionnés ci-dessus.

Commençons par décomposer les états  $|\phi_1\rangle$  et  $|\phi_2\rangle$  selon les combinaisons linéaires suivantes

$$|\phi_1\rangle = \sum_{n,\alpha} a_{n,\alpha} |\psi_n^\alpha\rangle \quad (1.29)$$

$$|\phi_2\rangle = \sum_{n,\alpha} b_{n,\alpha} |\psi_n^\alpha\rangle \quad (1.30)$$

Quitte à redéfinir les états  $|\psi^\alpha\rangle$ , nous pouvons supposer que  $a_{n,\alpha} = 0$  pour tout  $n \neq 0$ . Ceci est toujours possible puisqu'il suffit de redéfinir  $|\psi^\alpha\rangle \leftarrow |\psi_0^\alpha\rangle = \sum_n a_{n,\alpha} |\psi_n^\alpha\rangle$ . Les équations aux

---

4. Pour un Hamiltonien donné, cette contrainte est violée en des points isolés de la droite  $\varepsilon \in \mathbb{R}$  (et n'est pas dense). Ce n'est pas un problème ici.

valeurs propres associées à  $|\phi_1\rangle$  et  $|\phi_2\rangle$  sont

$$H(\varepsilon) \sum_{\alpha} a_{\alpha} |\psi_0^{\alpha}\rangle = E_1 \sum_{\alpha} a_{\alpha} |\psi_0^{\alpha}\rangle \quad (1.31)$$

$$H(\varepsilon) \sum_{n,\alpha} b_{n,\alpha} |\psi_n^{\alpha}\rangle = E_2 \sum_{n,\alpha} b_{n,\alpha} |\psi_n^{\alpha}\rangle \quad (1.32)$$

et la propriété d'orthogonalité des sous-espaces, couplée à l'hypothèse que le Hamiltonien est bloc-diagonal impose que pour tout  $\alpha$  et pour tout  $m$

$$a_{\alpha}^* \langle \psi_0^{\alpha} | \widehat{H}(\varepsilon) | \psi_m^{\alpha} \rangle = a_{\alpha}^* E_1 \langle \psi_0^{\alpha} | \psi_m^{\alpha} \rangle \quad (1.33)$$

$$\sum_n b_{n,\alpha} \langle \psi_0^{\alpha} | \widehat{H}(\varepsilon) | \psi_n^{\alpha} \rangle = E_2 \sum_n b_{n,\alpha} \langle \psi_0^{\alpha} | \psi_n^{\alpha} \rangle \quad (1.34)$$

Nous en déduisons alors que si il existe un indice  $\alpha$  tel que  $a_{\alpha} \neq 0$  alors  $|\psi_0^{\alpha}\rangle$  est un état propre de  $H(\varepsilon)$  de valeur propre  $E_1$  et que la famille  $\{|\psi_n^{\alpha}\rangle, n \in \mathbb{Z}\}$  correspond à une échelle de Wannier-Stark

$$\langle \psi_0^{\alpha} | \widehat{H}(\varepsilon) | \psi_n^{\alpha} \rangle = E_1 \langle \psi_0^{\alpha} | \psi_n^{\alpha} \rangle \Rightarrow \widehat{H}(\varepsilon) | \psi_0^{\alpha} \rangle = E_1 | \psi_0^{\alpha} \rangle \quad (1.35)$$

Ceci signifie donc également que  $\langle \psi_n^{\alpha} | \psi_m^{\alpha} \rangle = 0$  pour  $m$  différent de  $n$  car les états propres du Hamiltonien sont orthogonaux entre eux. Pour cette valeur de  $\alpha$ , s'il existe d'autre part un entier  $n$  tel que  $b_{n,\alpha} \neq 0$ , nous pouvons transformer l'équation 1.34 pour obtenir

$$E_1 \sum_n b_{n,\alpha} \langle \psi_0^{\alpha} | \psi_n^{\alpha} \rangle = E_2 \sum_n b_{n,\alpha} \langle \psi_0^{\alpha} | \psi_n^{\alpha} \rangle \quad (1.36)$$

Ainsi,  $E_1 = E_2$  car  $\sum_n b_{n,\alpha} \langle \psi_0^{\alpha} | \psi_n^{\alpha} \rangle = b_0^{\alpha} \neq 0$  : il est toujours possible de choisir  $b_{0,\beta} \neq 0$  quitte à appliquer l'opérateur translation à  $|\phi_2\rangle$  répétitivement.

Nous avons donc montré que  $|\phi_1\rangle = |\psi_0^{\alpha}\rangle$  est un état propre de Wannier-Stark et que soit il existe un entier  $n$  tel que  $E_2 = E_1 + \varepsilon n$ , soit cet entier n'existe pas et  $|\phi_2\rangle$  n'a pas de composante dans l'échelle de Wannier-Stark  $\alpha$ .

En résumé, si

- l'espace est décomposé en  $N_b$  sous-espaces orthogonaux stables sous l'action de l'opérateur translation ( $N_b$  étant le nombre d'orbitales atomiques par cellules unité),
- le Hamiltonien est bloc-diagonal vis-à-vis de ces sous-espaces,
- aucune des échelles de Wannier-Stark n'est dégénérée,

alors chacun de ces sous-espaces correspond exactement à une échelle de Wannier-Stark. Il suffit alors de prendre la trace sur chacun de ces sous-espaces pour obtenir le centre en énergie de l'échelle de Wannier-Stark, et cette dernière est obtenue en prenant la limite

$$\lim_{m \rightarrow \infty} \sum_{n=-m}^m \langle \psi_n^{\alpha} | \widehat{T}_a^{-n} \widehat{H}(\varepsilon) \widehat{T}_a^n | \psi_n^{\alpha} \rangle \rightarrow E^{\alpha}(\varepsilon) \quad (1.37)$$

Dans la suite, nous nous attachons simultanément à décomposer l'espace en  $N_b$  sous-espaces orthogonaux stables sous l'action de l'opérateur translation et à rendre le Hamiltonien bloc-diagonal. Nous aurons alors accès au spectre de Wannier-Stark.

### 3.3 États de Wannier

Dans la section précédente, nous avons montré qu'il suffit de diagonaliser par bloc le Hamiltonien sous champ pour avoir accès aux énergies de l'échelle de Wannier-Stark. Dans cette section, nous nous intéressons aux états de Wannier, à ne pas confondre avec les états de Wannier-Stark : les états de Wannier sont les briques de bases avec lesquelles nous allons diagonaliser par bloc le Hamiltonien de manière perturbative. La figure 1.4 souligne la différence entre les états de Wannier et les états de Wannier-Stark.

Les états, ou fonctions, de Wannier sont des états construits à partir des états de Bloch  $|E^\alpha(k)\rangle$  du Hamiltonien sans champ  $\hat{H}_0$ . Ils sont définis par

$$|W_{n,\alpha}\rangle = \int_{BZ} \exp(-i\phi^\alpha(k) - ikn) |E^\alpha(k)\rangle \frac{dk}{2\pi} \quad (1.38)$$

L'intégrale porte sur l'intégralité de la zone de Brillouin et les fonctions  $\phi^\alpha(k)$  correspondent à un choix de jauge. Ce sont des phases arbitraires, que nous choisirons préférablement de sorte à ce que la combinaison  $e^{i\phi^\alpha(k)} |E^\alpha(k)\rangle$  soit infiniment dérivable. Les fonctions de Wannier sont donc des combinaisons des ondes de Bloch d'une bande unique, définies à une phase arbitraire près : elles ont la propriété de diagonaliser par bloc le Hamiltonien à champ nul. Ce ne sont cependant pas des états propres du Hamiltonien, mais le déterminant de Slater d'une bande remplie peut-être réécrit en utilisant les fonctions de Wannier. Les familles  $\{|W_{n,\alpha}\rangle, n \in \mathbb{Z}\}$  sont également invariantes par translation, en effet  $|W_{n+1,\alpha}\rangle = \hat{T}_a |W_{n,\alpha}\rangle$  : en écrivant les ondes de Bloch sous la forme

$$\langle m, i | E^\alpha(k) \rangle = \exp(ik(m + x_i)) u_i^\alpha(k) \quad (1.39)$$

il est facile de remarquer que

$$\begin{aligned} \hat{T}_a |W_{n,\alpha}\rangle &= \int_{BZ} \exp(-i\phi^\alpha(k) - ikn) \sum_m \exp(ik(m + x_i)) u_i^\alpha(k) |m + 1, i\rangle \frac{dk}{2\pi} \\ &= \int_{BZ} \exp(-i\phi^\alpha(k) - ik(n + 1)) |E^\alpha(k)\rangle \frac{dk}{2\pi} \\ &= |W_{n+1,\alpha}\rangle \end{aligned} \quad (1.40)$$

Finalement, la dernière propriété des fonctions de Wannier est d'être localisées, et lorsque les fonctions  $u_i^\alpha(k)$  et les phases  $\phi^\alpha(k)$  sont infiniment dérivables, alors la localisation est exponentielle. De manière générique, le caractère localisé des fonctions de Wannier est relié à la décroissance des coefficients de Fourier d'une fonction périodique, puisque ces dernières sont en

effet les coefficients de Fourier de la fonction périodique  $|E^\alpha(k)\rangle$ .  $\langle n, i | W_{n,\alpha} \rangle$  décroît au moins aussi vite que  $n^{-(p+1)}$  si  $|E^\alpha(k)\rangle$  est dérivable au moins  $p$  fois. Les propriétés de localisation des fonctions de Wannier ont été étudiées en détail dans [21, 32].

Nous avons donc montré que les fonctions de Wannier vérifient les propriétés demandées dans le paragraphe précédent pour les familles génératrices des échelles de Wannier-Stark : à savoir, bloc-diagonalisation du Hamiltonien et invariance par translation. Dans un certain sens, les fonctions de Wannier sont les échelles de Wannier-Stark à champ nul, c'est pourquoi nous allons les utiliser pour construire les états de Wannier-Stark de manière perturbative.

### 3.4 Opérateur position et connexion de Berry

Dans la base des fonctions de Wannier, l'opérateur position prend la forme

$$\begin{aligned} \langle W_{m,\alpha} | \widehat{X} | W_{n,\beta} \rangle &= \int_{BZ} \exp(-ik(m-n)) \exp(-i(\phi^\alpha(k) - \phi^\beta(k))) \mathcal{A}^{\alpha\beta}(k) \frac{dk}{2\pi} \\ &\quad + \frac{m+n}{2} \delta_{m,n} \delta_{\alpha,\beta} \end{aligned} \quad (1.41)$$

$\mathcal{A}^{\alpha\beta}(k)$  est la matrice des connexions de Berry et vaut

$$\mathcal{A}^{\alpha\beta}(k) = \frac{1}{2} \left( \left\langle u^\alpha(k) \left| \frac{\partial}{\partial k} u^\beta(k) \right\rangle - \left\langle \frac{\partial}{\partial k} u^\alpha(k) \left| u^\beta(k) \right\rangle \right) \quad (1.42)$$

où  $|u^\alpha(k)\rangle$  est le vecteur des  $u_i^\alpha(k)$  apparaissant dans la définition des états de Bloch. Les éléments diagonaux prennent la forme

$$\mathcal{A}^{\alpha\alpha}(k) = \text{Im} \left\langle u^\alpha(k) \left| \frac{\partial}{\partial k} u^\alpha(k) \right\rangle \quad (1.43)$$

$$(1.44)$$

qui est la forme généralement utilisée dans la définition de la connexion de Berry.

Dans cette base, les éléments de matrice de l'opérateur position sont les coefficients de Fourier de la fonction

$$\exp(-i(\phi^\alpha(k) - \phi^\beta(k))) \left( \mathcal{A}^{\alpha\beta}(k) + i \frac{i}{2} \left( \overleftarrow{\partial}_k - \overrightarrow{\partial}_k \right) \delta_{\alpha\beta} \right) \quad (1.45)$$

où  $\overleftarrow{\partial}_k$  et  $\overrightarrow{\partial}_k$  dénotent des opérateurs ayant l'action d'une dérivée pour les éléments se situant à leur gauche ou à leur droite.

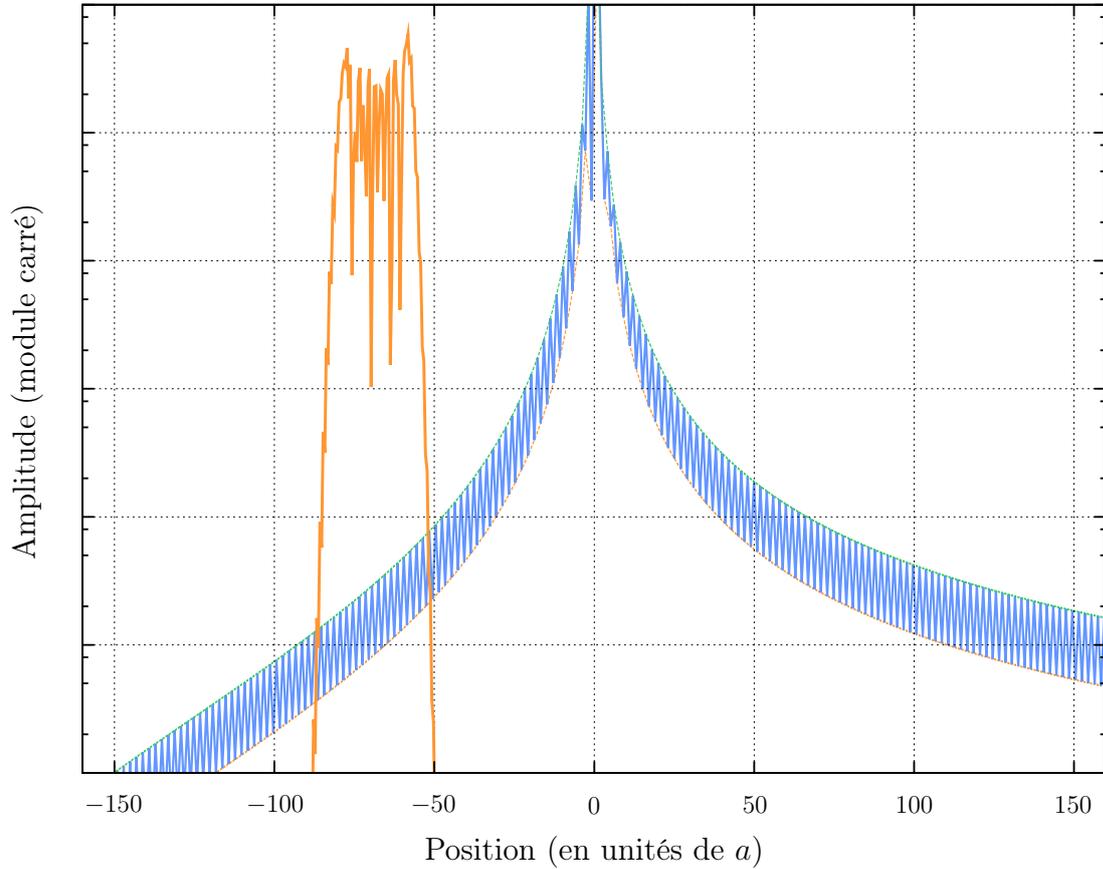


FIGURE 1.4 – Les états de Wannier et de Wannier-Stark sont deux états distincts. À gauche, en orange : un état de Wannier-Stark du modèle de Rice-Mele à champ fixe (voir la section 3.7) est comparé à un état de Wannier du même modèle, représenté à droite, en bleu. Tandis que les deux états sont localisés, l'état de Wannier-Stark est localisé sur une longueur dépendant du champ électrique, la longueur des oscillations de Bloch  $\frac{E_{gap}}{\varepsilon}$ , tandis que l'état de Wannier est exponentiellement localisé sur une longueur qui ne dépend que du choix de la phase des fonctions d'ondes du modèle de Rice-Mele à champ nul et du tenseur métrique [21]. Sur cette figure, le choix de la phase consiste à choisir l'amplitude  $\langle n, B | E^-(k) \rangle = e^{-ik(n+xb)} u_B(k)$ , avec  $u_B(k) \in \mathbb{R}$  (se reporter à la section 3.7 pour les notations). Les états sont choisis pour deux positions distinctes par souci de lisibilité. Nous aurions pu choisir l'état de Wannier-Stark centré sur la cellule unité  $n = 0$ . L'échelle verticale est logarithmique et les états sont normés.

### 3.5 Approche perturbative

Afin d'obtenir l'énergie des échelles de Wannier-Stark, nous cherchons à écrire les familles qui diagonalisent par bloc le Hamiltonien  $\widehat{H}(\varepsilon)$  sous la forme<sup>5</sup>

$$|n, \alpha, \varepsilon\rangle = |W_{n,\alpha}\rangle + \varepsilon M_{nm}^{\alpha\beta}(\varepsilon) |W_{m,\beta}\rangle \quad (1.46)$$

Une somme sur  $m$  et  $\beta$  est supposée implicitement. Cette forme vérifie en effet que le Hamiltonien est bloc diagonal à champ nul, et correspond donc à un point de départ pour un développement perturbatif des états de Wannier-Stark. Nous devons également imposer que les états se déduisent les uns des autres par l'opérateur translation  $\widehat{T}_a$ , ce qui impose que  $M_{nm}^{\alpha\beta}(\varepsilon) = M_{m-n}^{\alpha\beta}(\varepsilon)$ , et nous pouvons alors voir les coefficients  $M_d^{\alpha\beta}(\varepsilon)$  comme les coefficients de Fourier d'une fonction périodique  $M^{\alpha\beta}(k, \varepsilon)$ , où  $k$  appartient à la première zone de Brillouin.

Les états  $|n, \alpha, \varepsilon\rangle$  doivent être normalisés, et orthogonaux entre eux, ce qui se traduit par la condition

$$(\mathbb{1} + \varepsilon M(k, \varepsilon))^\dagger (\mathbb{1} + \varepsilon M(k, \varepsilon)) = \mathbb{1} \quad (1.47)$$

tandis que pour  $\alpha \neq \beta$ , ils doivent diagonaliser par bloc le Hamiltonien, ce que se traduit par

$$(\mathbb{1} + \varepsilon M(k, \varepsilon))^\dagger H(k) (\mathbb{1} + \varepsilon M(k, \varepsilon)) = 0 \quad (1.48)$$

où

$$H(k) = E(k) + \varepsilon \mathcal{A}(k) + \varepsilon \frac{i}{2} \left( \overleftarrow{\partial}_k - \overrightarrow{\partial}_k \right) \delta^{\alpha\beta} \quad (1.49)$$

$E(k) = E^{\alpha\beta}(k) = E^\alpha(k) \delta^{\alpha\beta}$  est la matrice des bandes d'énergies des fonctions de Bloch.

Grâce à ces deux égalités, nous pouvons déduire ordre par ordre en  $\varepsilon$  la valeur de  $M(k, \varepsilon)$ , et sa connaissance nous donne accès aux énergies des états de Wannier-Stark, comme décrit dans la section 3.2 :  $E_n^\alpha(\varepsilon) = E^\alpha(E) + \varepsilon n$ , avec

$$E^\alpha(\varepsilon) = \int_{BZ} E^\alpha(k) \frac{dk}{2\pi} + \varepsilon \int_{BZ} \mathcal{A}^{\alpha\alpha}(k) \frac{dk}{2\pi} - \varepsilon^2 \int_{BZ} \sum_{\beta \neq \alpha} \frac{\mathcal{A}^{\alpha\beta}(k) \mathcal{A}^{\beta\alpha}(k)}{E^\beta(k) - E^\alpha(k)} \frac{dk}{2\pi} + \mathcal{O}(\varepsilon^3) \quad (1.50)$$

A l'ordre zéro, nous pouvons reconnaître l'énergie moyenne d'une bande, résultat déjà présent dans [10], et qui justifie a posteriori notre estimation de la longueur de localisation des états de Wannier-Stark. Ce terme correspond aussi à l'énergie moyenne d'un état de Wannier :  $\langle W_{n,\alpha} | \widehat{H}_0 | W_{n,\alpha} \rangle$ .

---

5. Nous rappelons qu'il n'est pas nécessaire que les états  $|n, \alpha, \varepsilon\rangle$  soient les états propres du Hamiltonien à champ électrique non nul. La condition importante est que les sous-espaces  $\{|n, \alpha, \varepsilon\rangle, n \in \mathbb{Z}\}$  et  $\{|WS_{n,\alpha}(\varepsilon)\rangle, \varepsilon \in \mathbb{Z}\}$  soient identiques ( $|WS_{n,\alpha}(\varepsilon)\rangle$  étant les états de Wannier-Stark).

Le premier ordre en champ électrique correspond à la phase de Zak [8] de la bande, et apparaît dans [10]. Ce terme correspond à la position d'un état de Wannier, comme l'indique la forme de l'opérateur position selon l'équation 1.41. Ainsi, les deux premiers termes de l'énergie d'une échelle de Wannier-Stark correspondent simplement à l'énergie d'un état de Wannier :  $E^\alpha(\varepsilon) = \langle W_{n,\alpha} | \hat{H}_0 - \varepsilon \hat{X} | W_{n,\alpha} \rangle + \mathcal{O}(\varepsilon^2)$ . Ces deux premiers termes se retrouvent par une approche semi-classique via la quantification des oscillations de Bloch [7, 31, 33].

Bien que l'ordre un de ce développement coïncide avec une théorie de perturbation habituelle, l'ordre suivant ne correspond pas. En effet, selon la théorie de perturbation, l'ordre suivant devrait être

$$-\varepsilon^2 \sum_{\beta \neq \alpha} \frac{\left| \langle W_{n,\alpha} | \hat{X} | W_{n,\beta} \rangle \right|^2}{\int_{BZ} (\mathbb{E}^\beta(k) - \mathbb{E}^\alpha(k)) \frac{dk}{2\pi}} \quad (1.51)$$

mais le nombre et l'ordre des intégrales ne correspond pas à l'expression du deuxième ordre en champ des centres en énergie qui a pour expression

$$-\varepsilon^2 \int_{BZ} \sum_{\beta \neq \alpha} \frac{\mathcal{A}^{\alpha\beta}(k) \mathcal{A}^{\beta\alpha}(k) dk}{\mathbb{E}^\beta(k) - \mathbb{E}^\alpha(k) 2\pi} \quad (1.52)$$

Il est donc important de remarquer que, bien que le développement soit perturbatif, il ne l'est pas au sens habituel : le terme à l'ordre zéro, qui est la valeur moyenne de l'énergie d'une bande, n'est pas une valeur propre de l'énergie en l'absence de champ. De même, les états de Wannier  $|W_{n,\alpha}\rangle$  qui constituent le point de départ de la théorie de perturbation ne coïncident pas non-plus avec les états propres à champ nul. Le terme d'ordre deux, correspondant à la susceptibilité électrique est également présent dans des travaux tels que [34, 35] où les auteurs partent d'une approche à fréquence finie.

### Invariance de jauge

Dans la section 3.3, nous avons mentionné que les états de Wannier étaient définis à une phase arbitraire près  $\phi^\alpha(k)$  qui est un terme de jauge : en effet, puisque les états de Wannier sont définis par rapport aux états propres du Hamiltonien en l'absence de champ, qui sont eux même définis à une phase près, il est nécessaire d'inclure ce terme arbitraire dans la définition des fonctions de Wannier. Une fois que les états propres  $|\mathbb{E}^\alpha(k)\rangle$  du Hamiltonien sont fixés de sorte à être continus et dérivable, la seule contrainte que ce terme de jauge doit respecter est une contrainte de dérivabilité : la non-dérivabilité de  $\exp(-i\phi^\alpha(k))$  conduirait à la destruction de la localisation des états de Wannier, nécessaire pour la construction des échelles de Wannier-Stark.

Lors d'un changement de jauge tel que  $\phi^\alpha \rightarrow \phi^{\alpha'}$ , la partie diagonale de la connexion de Berry (le terme  $\mathcal{A}^{\alpha\alpha}(k)$ ) est modifiée d'une dérivée totale  $\partial_k(\phi^{\alpha'}(k) - \phi^\alpha(k))$  dont l'intégrale sur la zone de Brillouin est un entier car  $\exp(-i\phi^\alpha(k))$  doit rester périodique. Une conséquence de cette liberté de jauge est que le premier ordre en champ, qui est une phase de Zak, est

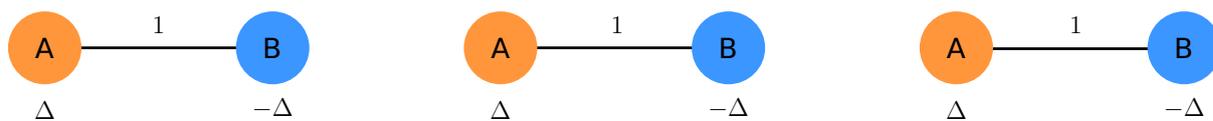


FIGURE 1.5 – Représentation de la chaîne de dimères. Chaque dimère est composé de deux atomes de type  $A$  et  $B$  différents. Les potentiels sur site prennent une valeur opposée pour chaque site. L’amplitude des termes de saut à l’intérieur d’un dimère est choisie égale à 1, et il n’y a pas de termes de saut d’un dimère à l’autre.

donc modifié d’un entier lors d’un changement de jauge [8] et l’énergie est modifiée de  $\varepsilon$ . Cette propriété est attendue car l’équation 1.38 définissant les fonctions de Wannier montre que si la phase  $\phi^\alpha(k)$  s’enroule d’un tour supplémentaire autour de l’origine, alors nous sommes simplement en train de traduire les fonctions de Wannier d’une cellule unité supplémentaire. Ceci revient donc à traduire tous les états de l’échelle de Wannier-Stark d’une cellule unité, et donc à changer leur énergie de  $\varepsilon$ . Ce changement nous montre que le nombre d’enroulement des phases  $\phi^\alpha(k)$  doit être modifié de manière identique pour chacun des indices de bande. L’apparition de cet entier correspond au fait que la polarisation est définie à un entier près, nommé quantum de polarisation.

Le terme hors diagonal de la connexion de Berry se transforme selon

$$\mathcal{A}^{\alpha\beta}(k) \rightarrow \exp\left(-i\left(\phi^{\beta'} - \phi^\beta\right) + i\left(\phi^{\alpha'} - \phi^\alpha\right)\right) \mathcal{A}^{\alpha\beta}(k) \quad (1.53)$$

Ainsi, le terme du second ordre du développement, proportionnel à  $\mathcal{A}^{\alpha\beta}(k)\mathcal{A}^{\beta\alpha}(k)$  est bien invariant sous ce changement de jauge.

De manière générale, tous les ordres<sup>6</sup> du développement perturbatif des centres en énergie des échelles de Wannier-Stark sont invariants sous les changements de jauge qui respectent la périodicité et la dérivabilité, en revanche si nous écrivons la matrice  $M$  apparaissant à l’équation 1.46, nous verrions que son expression n’est pas invariante de jauge. Cette matrice, en plus de contenir les informations relatives aux énergies contient aussi des informations sur le lien entre les états de Wannier et états de Wannier-Stark. Lors d’un tel changement de jauge, seuls les états de Wannier sont changés, ainsi, la matrice  $M$  qui encode le lien doit également changer.

### 3.6 Chaîne de dimères découplés : un modèle jouet analytique

Afin d’illustrer les résultats des sections précédentes, nous étudions ici des modèles jouets pour lesquels nous pouvons calculer exactement le spectre sous champ électrique pour illustrer le résultat donné par l’équation 1.50. La littérature scientifique possède de nombreux exemples

6. Sauf l’ordre un qui traduit le quantum de polarisation.

d'échelles de Wannier-Stark, dans des systèmes unidimensionnels [36, 37] comme dans les bidimensionnels [38, 39].

Le premier modèle que nous examinons est une chaîne de dimères (molécules) non-couplés entre eux : c'est un cristal de molécules trivial. Il est illustré par la figure 1.5. Chaque dimère est constitué de deux sites atomiques, nommés  $A$  et  $B$  contribuant chacun pour une unique orbitale atomique. Nous négligeons le spin, ainsi chaque site contribue pour une demie charge électronique, et la neutralité électronique et le demi-remplissage sont atteints lorsque nous plaçons un électron par dimère. Dans le  $n$ -ième dimère, les atomes sont situés aux positions  $x_A + n$  et  $x_B + n$  et nous avons choisi la taille des cellules unité  $a = 1$ . Nous choisissons également l'origine de sorte à ce que  $x_A + x_B = 0$  en accord avec les sections précédentes. Chaque dimère est caractérisé par un terme de saut  $t$  entre le site  $A$  et le site  $B$  d'amplitude que nous choisissons égale à 1, et par un terme de potentiel sur site  $\pm\Delta$  pour les deux sites du dimère. Chaque dimère de la chaîne est découplé des autres, ce qui simplifie grandement la résolution du modèle : le Hamiltonien du système est diagonal par bloc pour chaque dimère et le bloc décrivant le  $n$ -ième dimère prend la forme matricielle

$$H_n(\varepsilon) = \begin{pmatrix} \Delta + \varepsilon \frac{x_A - x_B}{2} & 1 \\ 1 & -\Delta - \varepsilon \frac{x_A - x_B}{2} \end{pmatrix} + \varepsilon n \quad (1.54)$$

La modèle est donc totalement décrit par les 3 paramètres  $\Delta$ ,  $x_A - x_B$  et  $\varepsilon$ , le champ électrique appliqué. Les énergies propres sont

$$E_n^\pm(\varepsilon) = E^\pm(\varepsilon) + \varepsilon n = \pm \sqrt{1 + \left( \Delta + \varepsilon \frac{x_A - x_B}{2} \right)^2} + \varepsilon n \quad (1.55)$$

et forment bien deux échelles de Wannier-Stark indicées par  $\alpha \in \{+, -\}$ . Au second ordre en champ électrique, nous trouvons

$$E^\alpha(\varepsilon) = \alpha \sqrt{1 + \Delta^2} + \alpha \varepsilon \frac{(x_A - x_B)\Delta}{2\sqrt{1 + \Delta^2}} + \alpha \varepsilon^2 \frac{(x_A - x_B)^2}{8(1 + \Delta^2)^{\frac{3}{2}}} + \mathcal{O}(\varepsilon^3) \quad (1.56)$$

Nous devons maintenant comparer ce développement avec celui donné par l'équation 1.50, faisant intervenir la relation de dispersion du système, et sa connexion de Berry. Pour ce faire, nous devons dans un premier temps obtenir les états de Bloch de la chaîne de dimères en l'absence de champ électrique

$$H_0(k) = e^{-ik\hat{X}} \hat{H} e^{ik\hat{X}} = \begin{pmatrix} \Delta & e^{-ik(x_A - x_B)} \\ e^{ik(x_A - x_B)} & -\Delta \end{pmatrix} \quad (1.57)$$

Le spectre de ce système est constitué de deux bandes plates  $E^\alpha(k) = \alpha \sqrt{1 + \Delta^2}$  (signature que

les états de Bloch peuvent être réécrits sous forme d'états localisés) et les états propres sont

$$\begin{aligned}
\langle n, A | E^+(k) \rangle &= \cos\left(\frac{\theta}{2}\right) e^{-i\frac{\phi(k)}{2} - ik(n+x_A)} \\
\langle n, A | E^-(k) \rangle &= \sin\left(\frac{\theta}{2}\right) e^{i\frac{\phi(k)}{2} - ik(n+x_B)} \\
\langle n, B | E^-(k) \rangle &= -\cos\left(\frac{\theta}{2}\right) e^{-i\frac{\phi(k)}{2} - ik(n+x_A)} \\
\langle n, B | E^+(k) \rangle &= \sin\left(\frac{\theta}{2}\right) e^{i\frac{\phi(k)}{2} - ik(n+x_B)}
\end{aligned} \tag{1.58}$$

où nous nous sommes placés dans une jauge périodique où  $|E^\alpha(k + 2\pi)\rangle = |E^\alpha(k)\rangle$ .  $|n, A\rangle$  est l'orbitale provenant du site  $A$  du  $n$ -ième dimère, et

$$\cos\theta = \frac{\Delta}{\sqrt{1 + \Delta^2}}, \quad \sin\theta = \frac{1}{\sqrt{1 + \Delta^2}}, \quad \phi(k) = k(x_B - x_A) \tag{1.59}$$

Les termes diagonaux de la connexion de Berry sont indépendants de  $k$

$$\mathcal{A}^{\alpha\alpha}(k) = \alpha \frac{1}{2} \left( \frac{\partial}{\partial k} \phi(k) \right) \cos\theta = \alpha \frac{x_A - x_B}{2} \frac{\Delta}{\sqrt{1 + \Delta^2}} \tag{1.60}$$

tandis que les termes hors diagonaux valent

$$\mathcal{A}^{+-}(k) = \mathcal{A}^{-+}(k) = -\frac{1}{2} \left( \frac{\partial}{\partial k} \phi(k) \right) \sin\theta = \frac{x_A - x_B}{2\sqrt{1 + \Delta^2}} \tag{1.61}$$

Nous reconnaissons très facilement dans le spectre de Wannier-Stark (équation 1.56) l'ordre zéro et l'ordre un en champ électrique de l'équation 1.50. Pour l'ordre deux, nous avons

$$\sum_{\beta \neq \alpha} \frac{\mathcal{A}^{\alpha\beta}(k) \mathcal{A}^{\beta\alpha}(k)}{E^\beta(k) - E^\alpha(k)} = \frac{1}{4} \left( \frac{x_A - x_B}{2\sqrt{1 + \Delta^2}} \right)^2 \frac{1}{2\sqrt{1 + \Delta^2}} = \frac{(x_A - x_B)^2}{8(1 + \Delta^2)^{\frac{3}{2}}} \tag{1.62}$$

Ces derniers se correspondent donc bien.

Le développement perturbatif du spectre à l'échelle de Wannier-Stark est donc valide pour le modèle de la chaîne de dimères. Nous pourrions donc l'utiliser plus tard lorsque nous étudierons les propriétés thermodynamiques de la chaîne de dimères.

### 3.7 Modèle de Rice-Mele

La chaîne de Rice-Mele ou chaîne SSH (Su-Schrieffer-Heeger) généralisée est un modèle originellement proposé par Rice et Mele pour étudier dans le cadre des liaisons fortes les solitons

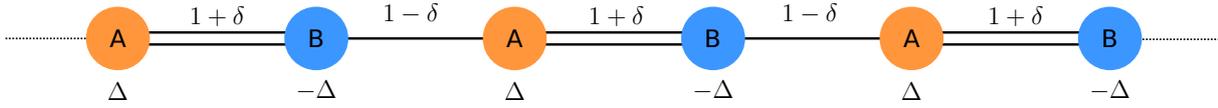


FIGURE 1.6 – Chaîne de Rice-Mele. Chaque cellule unité contient un site  $A$  et un site  $B$ . Les termes de saut alternent entre lien fort, d’amplitude  $1 + \delta$ , et lien faible, d’amplitude  $1 - \delta$ . Le potentiel sur site prend des valeurs  $\Delta, -\Delta$  opposées pour chaque site.  $\delta = 1$  correspond au modèle de dimère découplé présenté à la figure 1.5.

dans les chaînes de polymères [40, 41] et revu dans [20]. Nous nous servons de ce modèle ici pour mettre en avant le comportement des échelles de Wannier-Stark dans la limite des grand systèmes. La chaîne de Rice-Mele, décrite par la figure 1.6, est composée de cellules unités comprenant deux sites, nommés  $A$  et  $B$ , contribuant chacun pour un état électronique. Nous négligeons à nouveau le spin, ainsi chaque site contribue pour une demie charge électrique afin d’obtenir la neutralité électronique à demi remplissage. Les sites sont situés aux positions  $x_A$  et  $x_B$ , et nous avons, tout comme pour la chaîne de dimères, pris soin de choisir l’origine des positions comme le barycentre des sites  $A$  et  $B$  afin de ne pas avoir à considérer la contribution des ions à la polarisation. Nous simplifions également le problème en choisissant  $x_A - x_B = \frac{1}{2}$ .

Tout comme la chaîne de dimères, le modèle possède un potentiel sur site alternant,  $\pm\Delta$  ainsi que des termes de saut de type premier voisin, d’amplitudes alternant également entre  $t + \delta$  et  $t - \delta$ . Nous choisissons  $t = 1$  comme échelle d’énergie. En l’absence de champ électrique, le Hamiltonien de Bloch prend la forme

$$H(k) = \begin{pmatrix} \Delta & 2 \left( \cos \frac{k}{2} - i\delta \sin \frac{k}{2} \right) \\ 2 \left( \cos \frac{k}{2} + i\delta \sin \frac{k}{2} \right) & -\Delta \end{pmatrix} \quad (1.63)$$

La chaîne de dimères étudiée au paragraphe précédent correspond à la valeurs  $\delta = 1$  du modèle de Rice-Mele.

### Approche analytique

En l’absence de champ électrique, le modèle de Rice-Mele possède un spectre constitué de deux bandes, séparées par une bande interdite sauf dans le cas  $\delta = \Delta = 0$ . Le spectre est donné par la formule

$$E^\alpha(k) = \alpha \sqrt{\Delta^2 + 4 \cos^2 \frac{k}{2} + 4\delta^2 \sin^2 \frac{k}{2}} \quad (1.64)$$

où  $\alpha$ , l’indice de bande vaut  $\pm 1$ . Ce spectre est représenté figure 1.7 pour diverses valeurs de  $\Delta$  et  $\delta$ . En réutilisant les notations utilisées pour la chaîne de dimères, les état propres du système

sont

$$\begin{aligned}
\langle n, A | E^+(k) \rangle &= \cos\left(\frac{\theta(k)}{2}\right) e^{-i\frac{\phi(k)}{2} - ik(n+x_A)} \\
\langle n, B | E^+(k) \rangle &= \sin\left(\frac{\theta(k)}{2}\right) e^{i\frac{\phi(k)}{2} - ik(n+x_A)} \\
\langle n, A | E^-(k) \rangle &= -\sin\left(\frac{\theta(k)}{2}\right) e^{-i\frac{\phi(k)}{2} - ik(n+x_B)} \\
\langle n, B | E^-(k) \rangle &= \cos\left(\frac{\theta(k)}{2}\right) e^{i\frac{\phi(k)}{2} - ik(n+x_B)}
\end{aligned} \tag{1.65}$$

où

$$\cos\theta(k) = \frac{\Delta}{E^+(k)}, \quad \sin\theta e^{-i\phi(k)} = \frac{2\left(\cos\frac{k}{2} - i\delta\sin\frac{k}{2}\right)}{E^+(k)} \tag{1.66}$$

Nous pouvons également accéder à la connexion de Berry

$$\begin{aligned}
\mathcal{A}^{++}(k) &= -\mathcal{A}^{--}(k) = -\frac{1}{2} \left( \frac{\partial}{\partial k} \phi(k) \right) \cos\theta(k) \\
\mathcal{A}^{-+}(k) &= \overline{\mathcal{A}^{+-}(k)} = -\frac{1}{2} \left( \cos\theta(k) \frac{\partial}{\partial k} \theta(k) + i \sin\theta(k) \frac{\partial}{\partial k} \phi(k) \right)
\end{aligned} \tag{1.67}$$

Le terme  $\cos\theta(k) \frac{\partial}{\partial k} \theta(k)$  s'obtient en dérivant  $\sin\theta(k)$

$$\cos\theta(k) \frac{\partial}{\partial k} \theta(k) = \frac{\partial}{\partial k} \sin\theta(k) = \frac{1}{2} \frac{(1-\delta^2)\sin k}{\sqrt{\frac{1+\delta^2}{2} + \frac{1-\delta^2}{2}\cos k}} \left( 1 - \sqrt{\frac{\frac{1+\delta^2}{2} + \frac{1-\delta^2}{2}\cos k}{\Delta^2 + \frac{1+\delta^2}{2} + \frac{1-\delta^2}{2}\cos k}} \right) \tag{1.68}$$

Et nous pouvons obtenir la dérivée par rapport à  $k$  de  $\phi(k)$  via l'égalité

$$2i \frac{\partial}{\partial k} \phi(k) = \frac{\sin\theta e^{-i\phi(k)}}{\sin\theta e^{i\phi(k)}} \frac{\partial}{\partial k} \left( \frac{\sin\theta e^{i\phi(k)}}{\sin\theta e^{-i\phi(k)}} \right) \tag{1.69}$$

Ainsi

$$\begin{aligned}
\frac{\partial}{\partial k} \phi(k) &= -\frac{i \cos\frac{k}{2} - i\delta\sin\frac{k}{2}}{2 \cos\frac{k}{2} + i\delta\sin\frac{k}{2}} \frac{\partial}{\partial k} \left( \frac{\cos\frac{k}{2} + i\delta\sin\frac{k}{2}}{\cos\frac{k}{2} - i\delta\sin\frac{k}{2}} \right) \\
&= \frac{i}{4} \left( \frac{\sin\frac{k}{2} - i\delta\cos\frac{k}{2}}{\cos\frac{k}{2} + i\delta\sin\frac{k}{2}} - \frac{\sin\frac{k}{2} + i\delta\cos\frac{k}{2}}{\cos\frac{k}{2} - i\delta\sin\frac{k}{2}} \right) \\
&= \frac{1}{4} \frac{\delta}{1 + \delta^2 + (1 - \delta^2)\cos k}
\end{aligned} \tag{1.70}$$

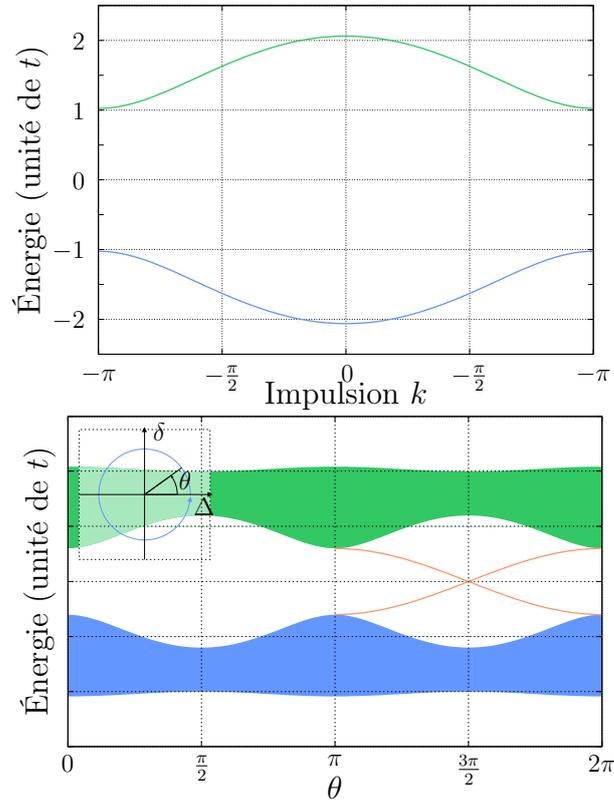


FIGURE 1.7 – À gauche : spectre de bande du modèle de Rice-Mele en l’absence de champ électrique, pour  $\Delta = 0.5$  et  $\delta = 0.2$ . À droite : bandes du modèle de Rice-Mele lorsque les paramètres  $\Delta = 0.6 \cos \theta$  et  $\delta = 0.6 \sin \theta$  décrivent le trajet dénoté dans l’insert. En bleu : bande de valence, en vert : bande de conduction, en orange : états présents uniquement dans le cas d’une chaîne de taille finie à bords ouverts. À l’exception du point  $\Delta = 0, \delta = 0$ , le modèle de Rice-Mele est un isolant de bande, possédant deux bandes séparées par une bande interdite. Pour toute valeur de  $\theta_0$ , les spectres sont identiques pour les points  $\theta \in \{\theta_0, \pi - \theta_0, \pi + \theta_0, 2\pi - \theta_0\}$ .

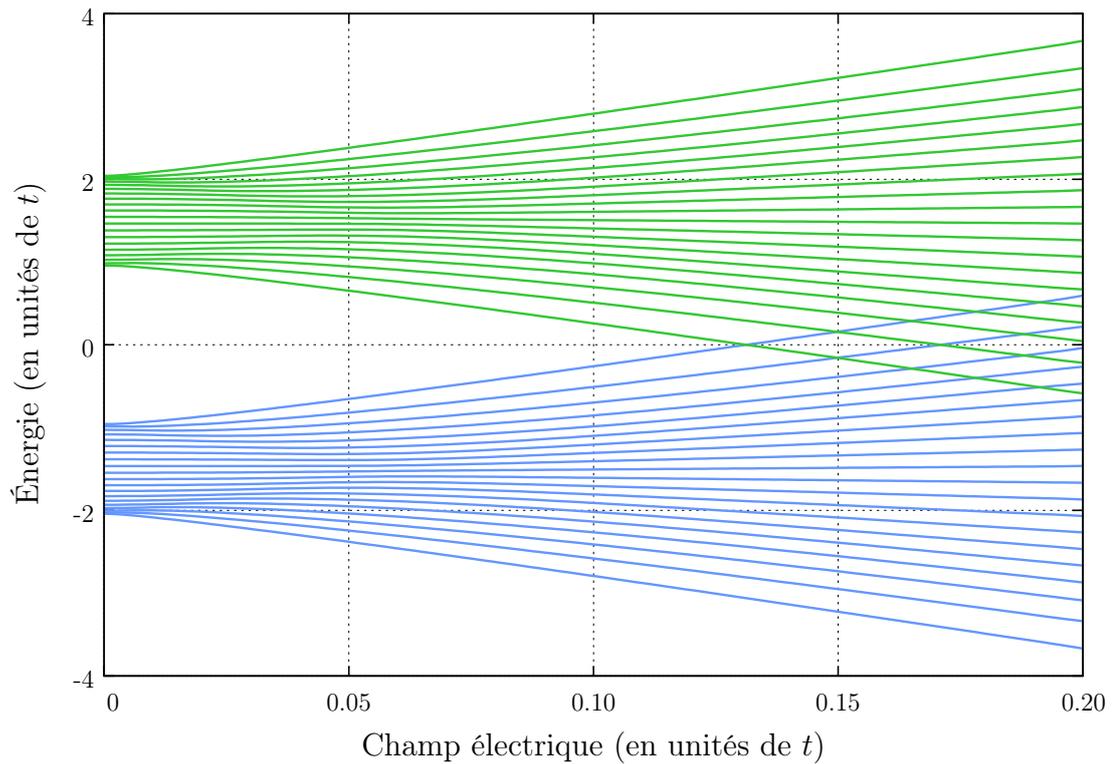


FIGURE 1.8 – Échelle de Wannier-Stark du modèle de Rice-Mele, obtenu par diagonalisation exacte sur une chaîne contenant 160 cellules unités. Pour plus de lisibilité, une partie des niveaux d'énergie n'est pas affichée.

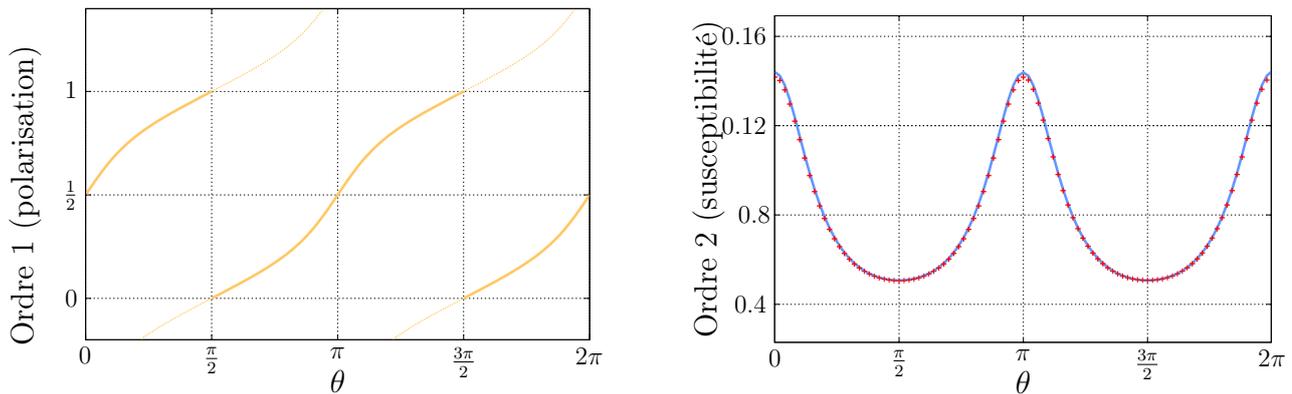


FIGURE 1.9 – À gauche : premier ordre du développement perturbatif 1.50 de l'énergie des échelles de Wannier-Stark du modèle de Rice-Mele (correspondant à la polarisation) de la bande de valence. Cette dernière n'est définie que modulo le quantum de polarisation, qui vaut ici 1 : la polarisation est une fonction multivaluée, la courbe solide est un choix arbitraire pour sa valeur ; les prolongations en pointillé représentent les autres choix possibles. Tous les choix sont identiques modulo le quantum de polarisation. Dans le cas de la polarisation, les courbes numériques et analytiques ne sont pas distinguables. À droite : second ordre du développement (correspondant à la susceptibilité) de la bande de valence. Le calcul est analytique (trait plein) et numérique de taille finie (croix).  $\Delta = 0.6 \cos \theta$  et  $\delta = 0.6 \sin \theta$  décrivent le parcours de l'insert de la figure 1.7. Les effets de taille finie ne sont visibles qu'aux environs des points  $\theta = 0, \pi, 2\pi$  soit  $\delta = 0$ .

Ce qui nous permet d'obtenir l'expression analytique de la connexion de Berry en injectant ces résultats dans l'expression de la connexion de Berry 1.67.

Lorsque la chaîne de Rice-Mele est soumise à un champ électrique, son spectre prend la forme attendue, un spectre de Wannier-Stark. Ce dernier est représenté sur la figure 1.8 pour une chaîne de taille finie.

Finalement, la figure 1.9 détaille les courbes du premier ordre du développement de l'échelle de Wannier-Stark (la polarisation) et du deuxième ordre (la susceptibilité) de la bande de valence. Les courbes sont obtenues numériquement via le spectre de Wannier-Stark d'une chaîne de taille finie, et sont comparées à la courbe analytique attendue pour un système infini.

Il convient de noter que même si le spectre du modèle de Rice-Mele à champ nul est identique pour les paires de paramètres  $(\Delta, \delta) = (a \cos \theta, b \sin \theta)$ ,  $(-a \cos \theta, b \sin \theta)$ ,  $(a \cos \theta, -b \sin \theta)$ ,  $(-a \cos \theta, -b \sin \theta)$  où  $a, b$  et  $\theta$  sont des valeurs arbitraires, la polarisation est différente pour certaines de ces valeurs : la polarisation ne fait pas seulement appel au spectre à champ nul, elle fait également appel à la connexion de Berry, qui peut différer pour des modèles ayant un spectre identique. Nous pouvons faire un parallèle avec la théorie moderne de la polarisation en prenant  $\theta$  comme paramètre de contrôle adiabatique. Comme le montre la figure 1.9, lorsque le paramètre de contrôle  $\theta$  passe de 0 à  $2\pi$ , la polarisation de l'état final  $\theta = 2\pi$  diffère de la polarisation pour  $\theta = 0$ , mettant en évidence le quantum de polarisation. Ce phénomène est étroitement reliée au pompage adiabatique [42, 43] dont une revue est faite dans [20] et aux isolants topologiques en dimension deux tel que le modèle de Haldane [28].

### Résolution numérique et effets de taille finie

Avec le modèle de dimère, nous avons pu comparer les résultats analytiques dérivés dans la section 3.5 à ceux, également analytiques, donnés par un modèle simple. Le modèle de Rice-Mele quant à lui, ne peut pas être résolu de manière analytique en présence de champ, nous avons donc recours dans cette partie à une résolution numérique du problème en présence d'un champ électrique.

L'approche numérique que nous utilisons est une diagonalisation exacte : pour un système de taille finie, le Hamiltonien est une matrice, ses valeurs propres nous donnent accès au spectre. Nous présentons une comparaison entre les spectres obtenus numériquement et analytiquement sur la figure 1.10. La figure 1.11 représente quant à elle l'écart quadratique moyen entre les spectres obtenus de manière analytique et numérique pour diverses tailles de système. Nous voyons que l'écart se réduit lorsque la taille du système augmente : en effet, en présence d'un champ électrique, le Hamiltonien doit être écrit dans la jauge où le champ est un potentiel scalaire, et le système ne peut alors plus être choisi avec des conditions au bord périodiques : les bords de la chaîne sont ouverts. Or pour dériver les résultats analytiques, nous avons supposé un système infini et périodique, donc invariant par translation. La présence de bords brise cette hypothèse, et nous observons une différence entre résultats numériques et résultats analytiques.

Le calcul numérique nous permet d'accéder très facilement aux états propres de la chaîne de Rice-Mele, qui sont des états de Wannier-Stark. Deux de ces derniers sont représentés sur la

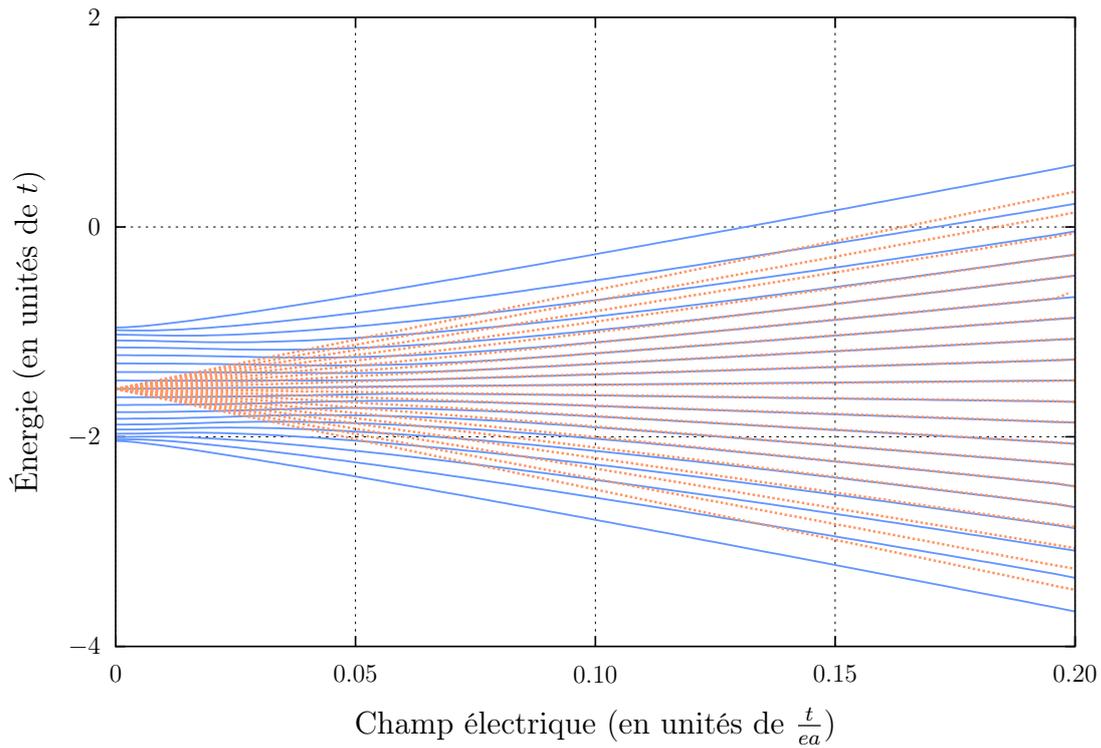


FIGURE 1.10 – Comparaison des échelles de Wannier-Stark de la bande de valence du modèle de Rice-Mele, calculée numériquement sur un système de taille finie (bleu, traits plein, voir figure 1.8) et analytiquement (orange, traits pointillés). Nous pouvons observer que l'accord est d'autant meilleur que le champ électrique a une valeur élevée : les effets de bords sont moins importants pour des champs forts que pour des champs faibles.

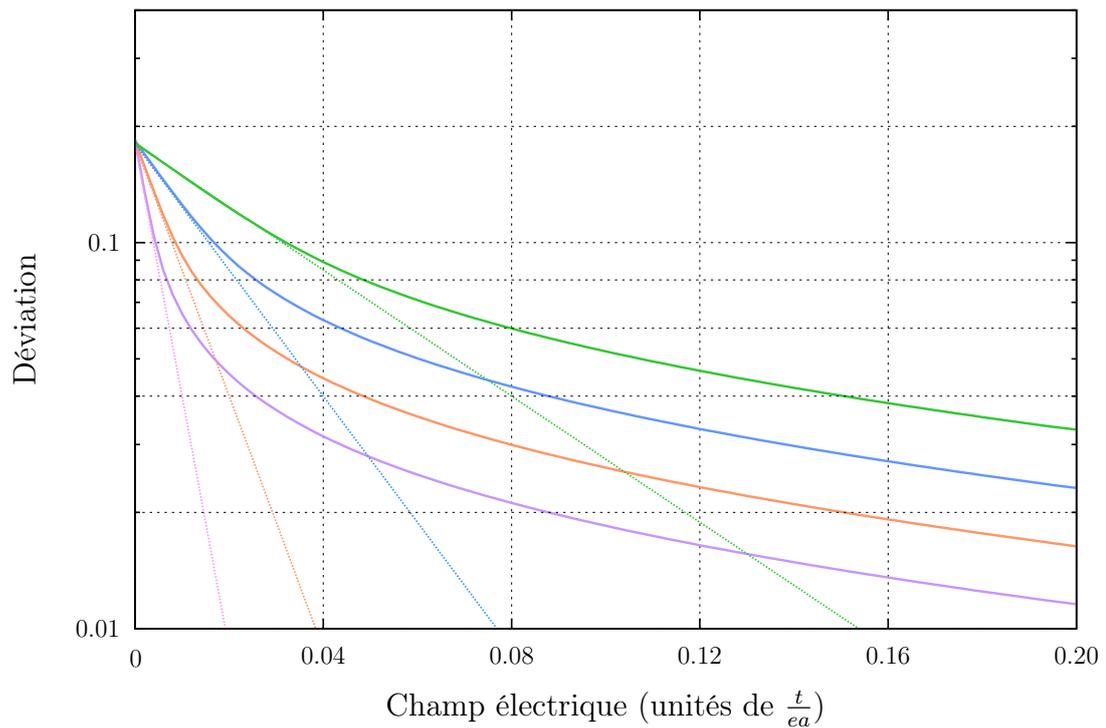


FIGURE 1.11 – Écart entre la prédiction théorique des niveaux d'énergie et le calcul numérique (voir corps du texte), en fonction du champ électrique. La taille du système est de haut en bas : 20 (vert), 40, 80 et 160 (mauve) cellules unités. Les traits pointillés dénotent la décroissance exponentielle de la déviation à bas champ.

figure 1.12 : un des états est choisi de sorte à ce que sa position moyenne soit située au bord, l'autre est choisi avec une position moyenne au milieu de la chaîne. Comme annoncé dans la section 3.1, les états de Wannier-Stark sont des états localisés.

De par leur caractère localisé, les états de volume (*bulk states*) ne peuvent pas être sensibles aux conditions de bord, en particulier, ils ne peuvent pas être sensibles à la taille finie, ou infinie du système. La figure 1.13 met en avant le fait que, pour tous les états de volume du système, la position moyenne est identique à l'intérieur de chaque cellule unité. Nous voyons donc que la différence observée entre les spectres numériques et analytiques (figure 1.10) est donc purement un effet de bord. La description du spectre donnée à la section 3.5 est donc correcte pour le modèle de Rice-Mele. Nous observons néanmoins que le développement perturbatif ne peut pas correctement capturer la limite de champ nul, et de par son caractère perturbatif, nous nous attendons également à ce qu'il existe des valeurs du champ électrique au-delà duquel le développement n'est plus valable, ou du moins nécessite l'inclusion des termes d'ordre 3 et supérieur pour conserver sa validité.

En ce qui concerne la limite inférieure pour la validité du modèle, nous pouvons nous attendre à une validité du développement perturbatif du spectre de Wannier-Stark lorsque la largeur de l'échelle est du même ordre que la largeur de bande, c'est à dire pour un champ  $\varepsilon > \frac{W_{band}}{eL}$  (où  $W_{band}$  est la largeur de bande et  $L \propto N$  est la taille du système). En deçà de cette valeur du champ, il est clair que la description analytique dévie fortement de la vraie échelle de Wannier-Stark. Dans la limite des grands systèmes, la description perturbative devient valide même pour de très faibles valeurs du champ électrique.

La limite supérieure de la validité du développement perturbatif est moins évidente à déterminer. Une valeur exacte impliquerait la dérivation systématique de tous les ordres du développement perturbatif et un calcul du rayon de convergence de la série. Sans cette information nous pouvons seulement estimer que le développement est au moins valide tant que le champ électrique est faible devant la largeur de la bande interdite :  $\varepsilon < W_{gap}$  (où  $W_{gap}$  est la largeur de la bande interdite). Finalement, le développement est valide pour, à minima  $\frac{W_{band}}{eL} < \varepsilon < W_{gap}$ .

### Conditions aux bords périodiques et opérateur position

Une technique générique pour compenser une partie des effets de bords dans les simulations numériques de systèmes de taille finie consiste à utiliser des conditions aux limites périodiques : l'échantillon est replié sur lui-même de sorte à ce que les bords droits et gauches soient identifiés. Cette méthode présente l'avantage de supprimer les effets liés à la présence des bords dans la simulation numérique ; le seul effet de taille finie restant est alors le caractère discret de la zone de Brillouin.

Dans le cadre de la polarisation électrique, les conditions aux bords périodiques ont un défaut important : il n'est pas possible d'introduire l'effet du champ électrique sous sa forme potentiel électrostatique dans le Hamiltonien car sa forme habituelle est  $\varepsilon \hat{X}$ , et l'opérateur position  $\hat{X}$  ne respecte pas les conditions aux limites périodiques. Il est néanmoins possible de calculer la polarisation, soit en calculant puis en intégrant la connexion de Berry sur la zone de

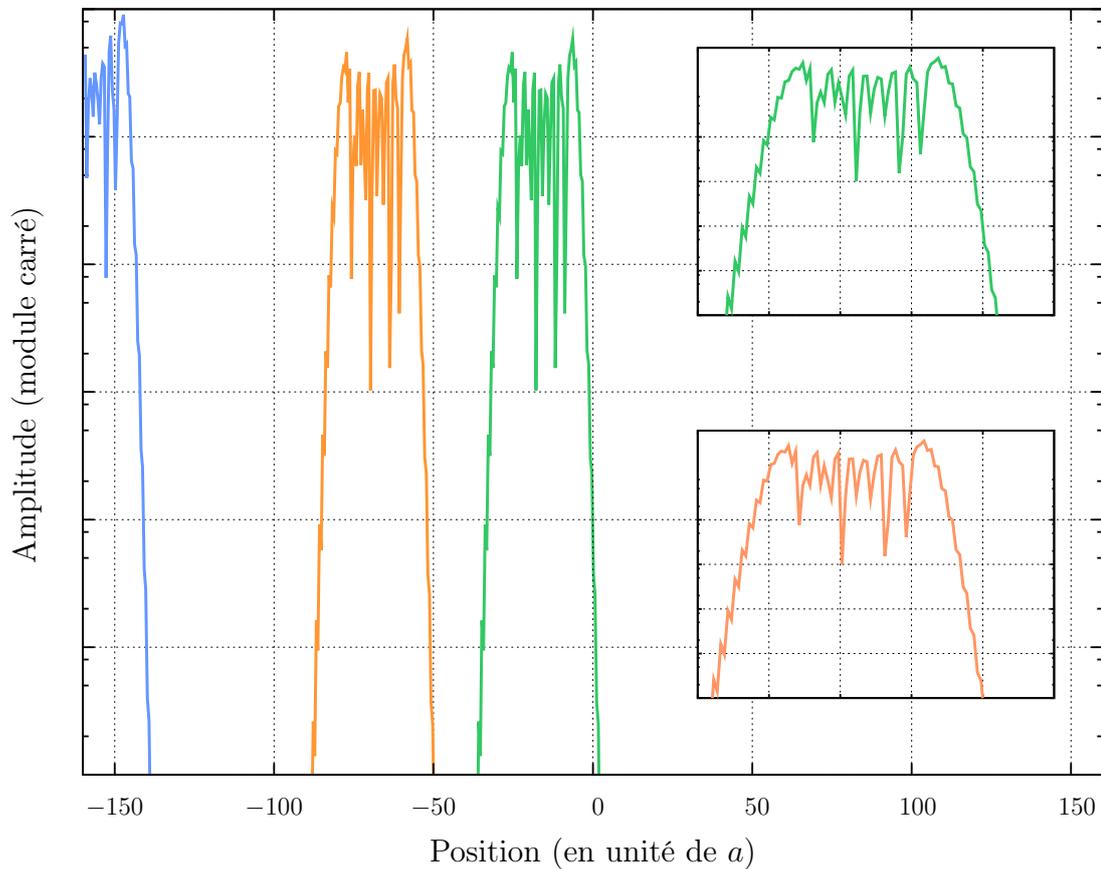


FIGURE 1.12 – A gauche : densité de probabilité  $|\psi(x)|^2$  pour 3 états de Wannier-Stark de la chaîne de Rice-Mele. Le champ électrique est de  $\varepsilon = 0.0375$  et la chaîne contient 320 cellules unités. Le premier état, en bleu est choisi au bord de la chaîne, tandis que les deux autres états sont choisis au centre de la chaîne : tandis que le premier état est affecté par la présence du bord, les deux autres états se déduisent l'un de l'autre par translation, en accord avec les propriétés de l'échelle de Wannier-Stark. Les inserts sont des agrandissements des états représentés. L'échelle verticale est logarithmique.

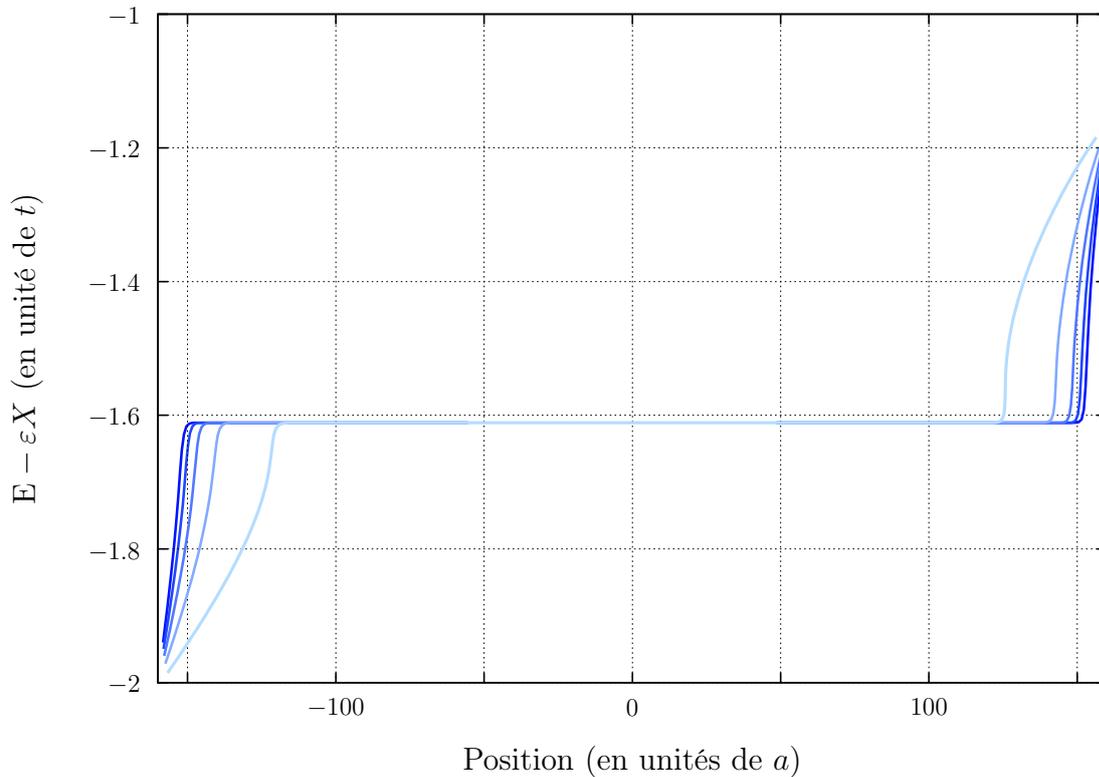


FIGURE 1.13 – Énergie des états de Wannier-Stark de la bande de valence du modèle de Rice-Mele en fonction de leur position, pour différentes valeurs du champ électrique (bleu clair : champ faible, bleu foncé : champ fort). La chaîne étudiée a une taille de 320 cellules unités. Par convenance, la quantité tracée n'est pas  $E$  mais  $E - \varepsilon X$  : pour un système de taille infinie cette quantité est identique pour chaque état de Wannier-Stark d'une même échelle, et est proportionnelle à la polarisation. Les états situés au centre ne sont pas affectés par la présence des bords : la quantité  $E - \varepsilon X$  est indépendante de leur position. Les états près des bords sont d'autant moins affectés que le champ électrique est fort.

Brillouin, soit en utilisant la propriété des fonctions de Wannier d'être localisées.

A nouveau, calculer la position des fonctions de Wannier dans un système dont les conditions aux bords sont périodiques présente une difficulté qui est levée via l'introduction de l'opérateur position périodique introduit par Resta [44]. La valeur moyenne de ce nouvel opérateur position  $\widehat{X}_{Resta}$  est définie par

$$\langle \widehat{X}_{Resta} \rangle_{\psi} \equiv \frac{L}{2\pi} \text{Im} \log \left\langle \psi \left| \exp \left( i \frac{2\pi}{L} \widehat{X} \right) \right| \psi \right\rangle \quad (1.71)$$

qui, à proprement parler, n'est plus un opérateur, mais qui peut être néanmoins utilisé pour obtenir directement la contribution électronique à la polarisation via

$$\mathcal{P} \equiv \lim_{L \rightarrow \infty} \frac{e}{2\pi} \text{Im} \log \left\langle \psi \left| \exp \left( i \frac{2\pi}{L} \widehat{X} \right) \right| \psi \right\rangle = \frac{e}{L} \langle \widehat{X}_{Resta} \rangle_{\psi} \quad (1.72)$$

où la limite  $L \rightarrow \infty$  est prise afin de supprimer les effets de taille finie ; les effets de bords ne sont déjà plus présents. De manière pratique, lorsque la taille du système est grande devant la longueur de localisation des fonctions de Wannier<sup>7</sup>, alors la limite  $L \rightarrow \infty$  peut être considérée comme atteinte.

## 4 Réponse thermodynamique d'un gaz d'électrons à un champ électrique statique

La polarisation électrique  $\mathcal{P}$  et la susceptibilité électrique  $\chi$  (ou polarisabilité) sont des quantités thermodynamiques définies pour des systèmes neutres électriquement, ce qui impose que le nombre de charges dans le système est fixé : l'ensemble thermodynamique à considérer est donc l'ensemble canonique pour lequel nous sommes intéressés par l'énergie libre.  $\mathcal{P}$  et  $\chi$  sont définies respectivement comme les dérivées premières et secondes de l'énergie libre  $F$  par rapport au champ électrique, le tout pris à champ nul

$$\mathcal{P}_{\mu} = -\frac{1}{V} \left. \frac{\partial}{\partial \varepsilon_{\mu}} F \right|_{\varepsilon=0} \quad (1.73)$$

et

$$\chi_{\mu\nu} = -\frac{1}{V} \left. \frac{\partial^2}{\partial \varepsilon_{\mu} \partial \varepsilon_{\nu}} F \right|_{\varepsilon=0} \quad (1.74)$$

où  $V$  correspond à la longueur, l'aire ou le volume du cristal, selon la dimension de ce dernier et les indices  $\mu$  et  $\nu$  correspondent à des directions spatiales.

---

7. Il existe une infinité de choix de fonctions de Wannier, il suffit que la taille du système soit grande devant un choix particulier de fonctions de Wannier. Un choix spécifique peut être réalisé : celui des fonctions de Wannier maximales localisées [21, 45]

L'énergie libre peut-être séparée en deux contributions : celle provenant des ions, chargés positivement, formant le réseau cristallin, et celles des électrons, de charge négative dont nous avons exploré le spectre dans la section précédente. L'effet du champ électrique sur la structure cristalline n'étant pas l'intérêt de ce travail, nous considérons les ions de manière minimale : ce sont des charges statiques soumises à un champ électrique pour lesquels l'énergie correspond à l'énergie libre qui vaut (en dimension une)

$$F_{ions}(\varepsilon, N, T) = \sum_{i,n} -q_i \varepsilon (na + x_i) = -\varepsilon a \sum_n qn \quad (1.75)$$

La somme sur  $i$  court de 1 à  $N_b$  (le nombre de sites dans la cellule unité, mais également le nombre de bandes à champ nul),  $q_i = e$  la charge respective de chacun des sites et  $q = \sum_i q_i$  est la charge totale par cellule unité. La somme sur  $n$  est une somme sur les cellules unités, de taille  $a$  (choisie égale à 1). Afin d'arriver au membre de droite de cette équation, nous faisons aussi le choix de l'origine : cette dernière est prise comme le barycentre des sites (pondérés par leur charge) de la cellule unité  $n = 0$  :

$$\frac{1}{q} \sum_i q_i x_i = 0 \quad (1.76)$$

De manière générale, il est plus aisé de travailler dans l'ensemble grand-canonique, où la quantité thermodynamique d'intérêt est le grand-potentiel  $\Omega$ . Grand-potentiel et énergie libre sont reliés via une transformée de Legendre

$$\Omega(\varepsilon, \mu, T) = \mu N - F(\varepsilon, N, T) \quad (1.77)$$

où le potentiel chimique  $\mu$  est choisi de sorte à ce que le nombre total d'électrons dans le système soit égal à  $N$ , permettant ainsi au système d'être électriquement neutre. Comme les électrons sont des fermions, obéissant au critère d'anti-symétrie de la fonction d'onde sous l'échange, l'expression du grand-potentiel prend la forme

$$\Omega(\varepsilon, \mu, T) = -\frac{1}{k_B T} \sum_{\gamma} \ln \left( 1 + \exp \left( -\frac{E_{\gamma} - \mu}{k_B T} \right) \right) \quad (1.78)$$

et dans la suite nous utiliserons  $\beta = (k_B T)^{-1}$ , l'inverse de la température. La somme de l'équation 1.78 court sur les niveaux d'énergie électroniques du système, que nous avons dérivés dans la section précédente. Le nombre d'électrons dans le système est

$$N = -\frac{\partial}{\partial \mu} \Omega(\varepsilon, \mu, T) = \sum_{\gamma} n_F(E_{\gamma} - \mu) \quad (1.79)$$

où  $n_F$  est la fonction de Fermi

$$n_F(E) = \frac{1}{\exp(\beta E) + 1} \quad (1.80)$$

La neutralité électronique du système impose le nombre de charges  $N$  dans le système, et permet, en inversant l'équation 1.79 d'obtenir le potentiel chimique  $\mu$  comme un fonction du champ électrique  $\varepsilon$ , du nombre de charges  $N$  et de la température  $T$ , que nous pourrions insérer dans l'équation 1.77 reliant énergie libre et grand-potentiel.

#### 4.1 Thermodynamique et spectre non-borné

Nous avons vu dans la section 3 que le spectre électronique d'un cristal en présence d'un champ électrique statique prenait la forme d'un ensemble d'échelles de Wannier-Stark, dont la forme spécifique,  $E_n^\alpha = E^\alpha + \varepsilon n$  n'est pas bornée. L'absence de borne inférieure dans un spectre conduit génériquement à un état fondamental (*ground state*) instable, qui dans notre cas particulier consiste à placer tous les électrons d'un seul coté du système, là où l'énergie potentielle des électrons est minimale, brisant simultanément la symétrie de translation et la neutralité locale du cristal. Bien évidemment, un tel état diffère drastiquement de l'état fondamental à champ nul, où le système est à la fois invariant par translation et neutre à l'échelle de chaque cellule unité.

Lorsque le champ électrique est porté à valeur finie, nous avons vu qu'à l'ordre zéro, l'état fondamental à champ électrique nul reste un état propre du système : le déterminant de Slater des ondes de Bloch d'une bande remplie se réécrit comme le déterminant de Slater des fonctions de Wannier de cette bande. Or les fonctions de Wannier correspondent à l'état propre dans la limite du champ nul. Mais cet état devient un état métastable du système : l'effet tunnel de Zener [31] est le mécanisme responsable de cette métastabilité ; c'est ce processus qui donne un temps de vie finie à l'état fondamental à champ nul. Ce temps de vie reste néanmoins grand [46, 47], car la probabilité d'effet tunnel de Zener est supprimée exponentiellement lorsque le champ électrique s'approche de zéro

$$P_{Zener} \propto \exp\left(-\alpha \frac{G^2}{\varepsilon}\right) \quad (1.81)$$

avec  $G$  la largeur de la bande interdite (*gap*) et  $\alpha$  une constante numérique. Ainsi, du point de vue de la physique statistique, le temps nécessaire au système pour atteindre son véritable état fondamental est très largement supérieur aux temps de mesure typiques. Le véritable état fondamental n'est jamais atteint, en revanche, les états proches de l'état fondamental à champ nul sont, eux, explorés [48]. Le système reste donc proche de la neutralité à l'échelle de la cellule unité.

#### 4.2 Potentiel chimique local

Ainsi, nous souhaitons que le grand-potentiel prenne en compte cette condition de neutralité locale. Le spectre, donné par l'équation 1.50, est un ensemble d'échelles, dont chaque état  $|\varepsilon, n, \alpha\rangle$  se déduit d'un autre état  $|\varepsilon, m, \alpha\rangle$  via l'application de l'opérateur translation. Imposer

la neutralité locale devient alors simple : les populations de chaque état d'une même échelle  $\alpha$  doivent être identique. Bien que cette contrainte soit simple à exprimer, elle est plus difficile à implémenter dans le calcul de l'énergie libre. En suivant l'idée qu'imposer la neutralité localement revient à imposer le nombre de charge par cellule unité, et l'idée que le potentiel chimique électronique  $\mu$  est un multiplicateur de Lagrange qui sert à imposer le nombre total d'électrons, nous introduisons un ensemble de potentiels chimiques locaux<sup>8</sup>,  $\mu_n(\mathbf{E})$  comme multiplicateurs de Lagrange dont l'effet est de rendre le système neutre localement, c'est à dire que les  $\mu_n(\varepsilon)$  imposent que chaque état d'une même échelle soit peuplé avec la même probabilité. Le potentiel grand-canonique prend alors la forme

$$\Omega(\varepsilon, \{\mu_n\}, \beta) = -\frac{1}{\beta} \sum \ln(1 + \exp(-\beta(E_n^\alpha(\varepsilon) - \mu_n(\varepsilon)))) \quad (1.82)$$

et la neutralité locale s'obtient en imposant

$$\mu_n(\varepsilon) = \varepsilon n + \tilde{\mu}(\varepsilon) = \mu^{(0)} + \varepsilon n + \varepsilon \mu^{(1)} + \mathcal{O}(\varepsilon) \quad (1.83)$$

$\mu^{(0)}$  est la valeur du potentiel chimique réalisant la neutralité globale à champ nul, et nous pouvons le choisir égal à zéro en changeant l'origine des énergies. Le terme  $\varepsilon n$  est la contribution locale au potentiel chimique, imposant la neutralité locale et  $\mu^{(1)}$  et les termes d'ordre supérieur sont les corrections liées au champ électrique. En prenant en compte le fait que le nombre d'électrons dans le système ne doit pas dépendre du champ électrique, nous pouvons écrire  $\partial_{\varepsilon^i} \partial_{\tilde{\mu}} \Omega(\varepsilon, \{\mu_n\}, \beta) = 0$  pour tous les ordres  $i$ , ce qui permet d'obtenir le développement de  $\tilde{\mu}(\varepsilon)$  à tous les ordres en champ [19]. Par la suite, le calcul de la polarisation et de la susceptibilité fait uniquement appel à  $\mu^{(1)}$

$$\mu^{(1)} = \frac{\sum_{\alpha} \left( \frac{\partial}{\partial \varepsilon} E^{\alpha}(\varepsilon) \right) n_F(\bar{E}^{\alpha})}{\sum_{\alpha} n'_F(\bar{E}^{\alpha})} \quad (1.84)$$

où  $n'_F$  est la dérivée de la fonction de Fermi. Nous rappelons que  $\bar{E}^{\alpha} = \int_{BZ} E^{\alpha}(k) \frac{dk}{2\pi}$  est l'énergie moyenne de la bande  $\alpha$  en l'absence de champ électrique.

### 4.3 Expression de la polarisation et de la susceptibilité électrique

En utilisant la forme du grand-potentiel donnée par l'équation 1.82, le lien entre le grand potentiel et l'énergie libre donnés par l'équation 1.77 nous obtenons alors

$$F(\varepsilon, N, \beta) = \sum_n N_b \tilde{\mu}(\varepsilon) - \frac{1}{\beta} \sum_n \sum_{\alpha} \ln(1 + \exp(-\beta(E^{\alpha}(\varepsilon) - \tilde{\mu}(\varepsilon)))) - \sum_n N_b \varepsilon n \quad (1.85)$$

8. Les auteurs de [49] utilisent également un potentiel chimique local en tant que multiplicateur de Lagrange afin d'étudier les propriétés thermodynamiques d'un système spécifique

où la dernière somme est la contribution des ions, que nous avons précédemment choisis sans dynamique. Leur contribution télescope partiellement la contribution des électrons, simplifiant ainsi l'énergie libre en

$$F(\varepsilon, N, \beta) = \sum_n \varepsilon N_b \tilde{\mu}^{(1)} - \frac{1}{\beta} \sum_n \sum_\alpha \ln(1 + \exp(-\beta(E^\alpha(\mathbf{E}) - \tilde{\mu}(\varepsilon)))) \quad (1.86)$$

Nous pouvons alors en déduire, via leur définitions équation 1.73 et 1.74 les expressions de la polarisation

$$\mathcal{P} = - \sum_\alpha n_F(\bar{E}^\alpha) \partial_\varepsilon E^\alpha(\varepsilon) \quad (1.87)$$

Soit, en insérant le développement obtenu à l'équation 1.50

$$\mathcal{P} = - \sum_\alpha n_F \left( \int_{BZ} E^\alpha(k) \frac{dk}{2\pi} \right) \int_{BZ} \mathcal{A}^{\alpha\alpha}(k) \frac{dk}{2\pi} \quad (1.88)$$

et de la susceptibilité

$$\chi = - \sum_\alpha (n_F(\bar{E}^\alpha) \partial_{\varepsilon^2}^2 E^\alpha + n'_F(\bar{E}^\alpha) (\partial_\varepsilon E^\alpha(\varepsilon))^2) + \frac{(\sum_\alpha n'_F(\bar{E}^\alpha) \partial_\varepsilon E^\alpha(\varepsilon))^2}{\sum_\alpha n'_F(\bar{E}^\alpha)} \quad (1.89)$$

où  $n'_F$  est la dérivée de la fonction de Fermi. En insérant dans cette équation le développement des échelles de Wannier-Stark (l'équation 1.50), nous obtenons

$$\chi = \sum_\alpha n_F(\bar{E}^\alpha) \sum_{\beta \neq \alpha} \int_{BZ} \frac{\mathcal{A}^{\alpha\beta}(k) \mathcal{A}^{\beta\alpha}(k) dk}{\bar{E}^\beta - \bar{E}^\alpha} \frac{dk}{2\pi} - \sum_\alpha n'_F(\bar{E}^\alpha) \left( \int_{BZ} \mathcal{A}^{\alpha\alpha}(k) \frac{dk}{2\pi} \right)^2 + \frac{(\sum_\alpha n'_F(\bar{E}^\alpha) \int_{BZ} \mathcal{A}^{\alpha\alpha}(k) \frac{dk}{2\pi})^2}{\sum_\alpha n'_F(\bar{E}^\alpha)} \quad (1.90)$$

Il est important de noter qu'il suffit uniquement de connaître le spectre sous champ afin de pouvoir calculer la polarisation et la susceptibilité ; il n'est pas nécessaire de connaître les états propres en présence d'un champ électrique. Cependant, il est nécessaire de connaître les états propres du système en l'absence du champ électrique, puisqu'ils interviennent dans le spectre sous champ via le terme de connexion de Berry présent dans l'équation 1.50. Plus précisément, nous avons soit besoin du spectre à champ non-nul, soit besoin du spectre et des fonctions d'ondes à champ nul.

Nous pouvons également noter que dans le cadre d'un système contenant deux bandes, pour l'équation 1.90, le premier terme est positif car  $n_F(\mathbf{E}) > 0$ ,  $\mathcal{A}^{\alpha\beta}(k) \mathcal{A}^{\beta\alpha}(k) = |\mathcal{A}^{\alpha\beta}(k)|^2$  et  $n_F(\bar{E}^\alpha) > n_F(\bar{E}^\beta)$  implique que  $\bar{E}^\beta > \bar{E}^\alpha$  : la bande du bas (de plus faible énergie) est plus

remplie que la bande du haut. Le deuxième terme est positif car  $n'_F(E) < 0$ , et le troisième terme est négatif, car le numérateur est un carré et le dénominateur négatif. À température nulle,  $n'_F(\bar{E}^\alpha) = 0$  car le système est isolant, donc il présente une bande interdite et le potentiel chimique se situe dans cette bande interdite. La susceptibilité électrique est donc une grandeur positive à température nulle, en accord avec [6]. Cette grandeur reste positive pour toutes les températures et pour tous les types de systèmes isolants (quelque soit le nombre de bandes), mais ce résultat ne peut pas être trouvé en utilisant cette formule.

#### 4.4 Interactions et neutralité à l'échelle locale

Pour parvenir aux résultats de la section précédente, nous avons supposé que le cristal restait neutre à l'échelle d'une cellule unité dans la limite des champs électriques faibles, en se basant sur la suppression exponentielle de l'effet Zener à faible champ. Ceci nous a permis, via une modification du grand potentiel, d'obtenir les valeurs de la polarisation et de la susceptibilité électrique. Dans cette section, nous explorons au travers d'un modèle jouet simple le rôle que peuvent jouer les interactions dans le but de maintenir une neutralité électrique locale.

Le véritable état fondamental du système est une configuration où tous les électrons sont situés à une extrémité du cristal : c'est donc une configuration où les inhomogénéités dans la répartition des charges sont très importantes et ont certainement un coût énergétique important. Quel serait l'influence sur les propriétés thermodynamiques d'un tel coût ? Le modèle jouet que nous considérons ici est le suivant : les électrons sans spins sont répartis en deux bandes d'énergies, qui évoluent en les échelles de Wannier-Stark  $E_n^+(\varepsilon) = En + E(\varepsilon)$  et  $E_n^-(\varepsilon) = \varepsilon n - E(\varepsilon)$  (nous faisons ici l'hypothèse non-restrictive d'une symétrie particule-trou). Comme les états de Wannier-Stark correspondants à ces niveaux d'énergie  $E_n^+$  et  $E_n^-$ , nous les associons à une cellule unité. Chacune des cellules unités peut alors, du point de vue de la thermodynamique, être dans un des quatre états possibles : vide, occupée par un électron de l'échelle  $E^-$ , occupée par un électron de l'échelle  $E^+$  ou être doublement occupée, et nous associons le coût électrostatique supplémentaire  $2U$  à une cellule unité doublement occupée, et ce coût ne dépend pas du champ électrique. A ce coût électronique, nous ajoutons  $-\varepsilon n$ , provenant de la présence d'un ion dans chaque cellule unité. Les quatre énergies possibles pour la cellule unité  $n$  sont donc

$$-\varepsilon n, -E(\varepsilon), +E(\varepsilon), \varepsilon n + 2U \quad (1.91)$$

Le potentiel grand-canonique a la forme

$$\Xi = \prod_n (e^{\beta \varepsilon n} + e^{\beta(E(\varepsilon) - \mu)} + e^{-\beta(E(\varepsilon) + \mu)} + e^{-\beta(\varepsilon n + 2U + 2\mu)}) \quad (1.92)$$

et les cellules unité sont indicées par  $n$  allant de  $-\frac{N-1}{2}$  à  $\frac{N-1}{2}$  ( $N$  est choisi impair). Le système contient  $N = \beta^{-1} \frac{\partial}{\partial \mu} \log \Xi$  électrons, ce qui implique que  $\mu = U$  quelque soit le champ électrique

ou la température. Il est alors facile d'obtenir l'énergie libre  $F = \beta^{-1} \ln \Xi + \mu N$

$$F = -\frac{N \ln 2}{\beta} - \frac{1}{\beta} \sum_n \ln (e^{-\beta U} \cosh(\varepsilon n) + \cosh(\beta E(\varepsilon))) \quad (1.93)$$

Après simplifications, nous pouvons alors en déduire la polarisation

$$\mathcal{P} = \frac{\sinh(\beta E(\varepsilon))}{e^{\beta U} + \cosh(\beta E(\varepsilon))} \frac{\partial}{\partial \varepsilon} E(\varepsilon) \quad (1.94)$$

qui redonne bien, dans la limite où les interactions sont faibles devant la température, la formule obtenue à l'équation 1.87

$$\mathcal{P} = - \sum_{\alpha=+,-} n_F(\bar{E}^\alpha) \frac{\partial}{\partial \varepsilon} E^\alpha(\varepsilon) \quad (1.95)$$

En revanche, dans la limite des fortes interactions, où  $U \gg k_B T$ , nous obtenons

$$\mathcal{P} = - \sum_{\alpha=+,-} \tanh(\bar{E}^\alpha) \frac{\partial}{\partial \varepsilon} E^\alpha(\varepsilon) \quad (1.96)$$

qui est un résultat déroutant au premier abord. Nous pouvons mettre en avant deux raisons qui expliquent ce résultat. D'une part, la présence d'un potentiel chimique local ne joue en réalité aucun rôle lors du calcul de la polarisation, sa présence n'impacte que la susceptibilité. C'est pourquoi la polarisation à  $U = 0$  est la même lorsque nous utilisons un potentiel chimique local ou un potentiel chimique global. D'autre part, lorsque les interactions sont très fortes, ce modèle gèle les fluctuations de charge, de telle sorte que le modèle est équivalent à ce que nous trouverions en utilisant un ensemble canonique local, où le nombre d'électrons est fixé à un par cellule unité : nous ne sommes plus dans l'ensemble grand-canonique, ni même canonique, pour des valeurs de l'interaction  $U$  trop élevées. En effet, il est facile de montrer que pour une unique cellule unité, dans l'ensemble canonique, la fonction de partition est

$$Z = \exp(\beta E(\varepsilon)) + \exp(-\beta E(\varepsilon)) = 2 \cosh(\beta E(\varepsilon)) \quad (1.97)$$

donnant lieu à une polarisation

$$\mathcal{P} = \beta^{-1} \frac{\partial}{\partial \varepsilon} \ln Z = \tanh(\beta E(\varepsilon)) \frac{\partial}{\partial \varepsilon} E(\varepsilon) \quad (1.98)$$

Bien que nous soyons intéressés par l'ensemble grand canonique pour le calcul de la polarisation et de la susceptibilité, nous continuons dans la suite de cette section à explorer ce modèle jouet, qui dans la limite des fortes interactions est dans l'ensemble canonique local, dans le but de comprendre quel rôle peuvent jouer les interactions vis-à-vis du remplissage électronique.

La susceptibilité s'obtient en prenant la dérivée seconde de l'énergie libre, et nous obtenons

$$\chi = \frac{\sinh(\beta E(\varepsilon))}{e^{-\beta U} + \cosh(\beta E(\varepsilon))} \frac{\partial^2}{\partial \varepsilon^2} E(\varepsilon) - \frac{1 + e^{-\beta U} \cosh(\beta E(\varepsilon))}{(e^{-\beta U} + \cosh(\beta E(\varepsilon)))^2} \left( \frac{\partial}{\partial \varepsilon} E(\varepsilon) \right)^2 \quad (1.99)$$

$$- \beta \frac{e^{-\beta U}}{e^{-\beta U} + \cosh(\beta E(\varepsilon))} \frac{N^2}{12} \quad (1.100)$$

où nous avons approximé  $\frac{1}{N} \sum_n n^2 \approx \frac{N^2}{12}$  lorsque  $N \gg 1$ . Dans la limite des faibles interactions, nous obtenons

$$\chi = - \sum_{\alpha} \left( n_F(\bar{E}^{\alpha}) \frac{\partial^2}{\partial \varepsilon^2} E^{\alpha}(\varepsilon) + n'_F(\bar{E}^{\alpha}) \left( \frac{\partial}{\partial \varepsilon} E^{\alpha}(\varepsilon) \right)^2 + \frac{N^2}{12} n'_F(\bar{E}^{\alpha}) \right) \quad (1.101)$$

Les deux premiers termes sont les termes attendus en comparant avec l'équation 1.89 lorsque  $\mu^{(1)} = 0$ , ce qui est le cas ici, car  $\tilde{\mu}(\varepsilon) = U = \mu^{(0)} + \varepsilon \mu^{(1)} + \dots$  ne dépend pas du champ pour ce modèle simple. Le troisième terme, en revanche, n'est pas présent dans l'équation 1.89. Ce terme dépend de la taille du système et diverge dans la limite des grands systèmes. Il reflète le fait que, lorsque nous n'imposons pas de potentiel chimique local ni d'interactions, ni aucun autre mécanisme pour assurer un remplissage électronique uniforme, alors en présence d'un champ électrique, le système ne reste pas strictement un isolant de bandes à température finie. Les électrons se déplacent alors dans le système, et les bandes électroniques deviennent alors partiellement remplies. Le système est alors métallique, et il faudrait utiliser un champ électrique oscillant à fréquence finie pour capturer sa réponse au deuxième ordre et à fréquence finie de manière similaire à [34, 35], car la susceptibilité d'un système métallique est infinie lorsque le champ est statique (à fréquence nulle).

Dans l'autre limite, celle des interactions fortes, nous avons

$$\chi = - \tanh(\beta E(\varepsilon)) \frac{\partial^2}{\partial \varepsilon^2} E(\varepsilon) - \operatorname{sech}(\beta E(\varepsilon)) \left( \frac{\partial}{\partial \varepsilon} E(\varepsilon) \right)^2 - e^{-\beta U} \frac{N^2}{12} \beta \operatorname{sech}(\beta E(\varepsilon)) \quad (1.102)$$

Nous voyons alors que le terme proportionnel à la taille du système est  $e^{-\beta U} N^2$ , et qu'il est relié aux configurations présentant une inhomogénéité de charge. Ce terme peut être évalué de manière plus précise : lorsque la température est plus faible que  $\frac{U}{k_B \ln N}$  alors ce terme devient négligeable. La force typique des interactions électron-électron peut être évaluée par  $U \approx \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \approx 10eV$ , soit l'équivalent d'une température de  $10^5 K$ . Pour un système de taille macroscopique,  $N \approx N_A \approx 10^{23}$ , ainsi lorsque la température est inférieure à  $10^3 K$  alors la susceptibilité électrique est une quantité intensive ne dépendant plus de la taille du système, et sa valeur correspond à celle que nous aurions obtenu dans l'ensemble canonique local en l'absence d'interactions, où le nombre d'électrons est fixé à un par cellule unité.

Ce modèle jouet nous permet donc de faire les constatations suivantes : il est possible de considérer un système d'électrons sans interactions tant que la neutralité de la charge est

imposée à une échelle locale, plutôt qu'à une échelle globale. Cependant nous notons qu'il existe une différence notable entre l'ensemble canonique local, où le nombre d'électrons est fixé de sorte à ce que chaque cellule unité soit neutre, et l'ensemble grand-canonique avec un potentiel chimique local où le remplissage électronique est choisi de sorte à ce que chaque cellule unité soit neutre en moyenne. La différence entre ces deux ensembles thermodynamique est d'autant plus grande en dimension un que le nombre d'électrons est faible.

## 5 Extension aux matériaux bidimensionnels

Dans cette section, nous étendons le calcul que nous avons effectué dans la section 3 au cas de la dimension deux. Les mêmes hypothèses sont faites, c'est à dire que le cristal bidimensionnel est rigide et est un isolant de bandes à champ nul, et nous nous restreignons ici au cas d'une cellule unité rectangulaire<sup>9</sup> : les directions de périodicité du cristal sont les deux directions orthogonales  $\vec{x}$  et  $\vec{y}$ . Le réseau cristallin contient  $N_x$  cellules unités dans la direction  $\vec{x}$  et  $N_y$  cellules unités dans la direction  $\vec{y}$ . Chacune des mailles élémentaires contribue pour  $N_b$  orbitales atomiques, et le spin n'est pas pris en compte. Nous prenons également le soin d'adimensionner les longueurs : nous choisissons les tailles des cellules unité égales à 1 :  $a_x = a_y = 1$ .

### 5.1 Champ électrique parallèle

Nous imposons au cristal un champ électrique parallèle à une des directions où ce dernier est périodique :  $\vec{\varepsilon} = \varepsilon_x \vec{x}$ . Nous avons pris soin de choisir la direction  $\vec{x}$  de telle sorte que le cristal soit invariant sous les translations discrètes dans la direction  $\vec{x}$ . Nous allons d'abord obtenir le spectre et les états propres en fonction du champ  $\varepsilon_x$ , puis en fixant  $\varepsilon_x$  et en notant que chaque barreau de l'échelle de Wannier-Stark obtenue correspond à un système unidimensionnel dans la direction  $\vec{y}$ , nous déterminons l'action du champ électrique dans cette direction.

La deuxième direction du réseau cristallin reste, quant à elle, périodique. Sous les translations discrètes, le Hamiltonien électronique du cristal vérifie donc deux identités : une identité d'échelle dans la direction  $\vec{x}$

$$\widehat{T}_{a_x \vec{x}}^{-n} \widehat{H}(\vec{\varepsilon}) \widehat{T}_{a_x \vec{x}}^n = \widehat{H}(\vec{\varepsilon}) + \vec{\varepsilon} n \mathbb{1} \quad (1.103)$$

et une invariance par translation discrète dans la direction  $\vec{y}$

$$\widehat{T}_{a_y \vec{y}}^{-n} \widehat{H}(\vec{\varepsilon}) \widehat{T}_{a_y \vec{y}}^n = \widehat{H}(\vec{\varepsilon}) \quad (1.104)$$

L'invariance par translations discrètes permet d'appliquer les théorème de Bloch et de diagonaliser par blocs le Hamiltonien, en indiquant les blocs par l'impulsion cristalline  $k_y$

$$H(\varepsilon) \equiv \{H(\varepsilon_x, k_y), k_y \in [0; 2\pi[ \} \quad (1.105)$$

---

9. Cette restriction n'est absolument pas nécessaire ; elle est seulement utilisée ici afin de rendre les formules et leur dérivation plus claires. Cette restriction n'est d'ailleurs pas respectée par un des systèmes que nous étudierons en exemple, le modèle de Haldane.

Le Hamiltonien  $H(\varepsilon_x, k_y)$  est le Hamiltonien d'un système unidimensionnel, et tant que aucune des bandes du système n'est dégénérée, il est immédiat d'appliquer les résultats de la section 3 afin d'obtenir le spectre du système

$$\begin{aligned} E^\alpha(\varepsilon_x, k_y) &= \int_0^{2\pi} E^\alpha(k_x, k_y) \frac{dk_x}{2\pi} + \varepsilon_x \int_0^{2\pi} \mathcal{A}_x^{\alpha\alpha}(k_x, k_y) \frac{dk_x}{2\pi} \\ &\quad - \varepsilon_x^2 \int_0^{2\pi} \sum_{\beta \neq \alpha} \frac{\mathcal{A}_x^{\alpha\beta}(k_x, k_y) \mathcal{A}_x^{\beta\alpha}(k_x, k_y)}{\int_0^{2\pi} E^\beta(k_x, k_y) - E^\alpha(k_x, k_y) \frac{dk_x}{2\pi}} \frac{dk_x}{2\pi} + \mathcal{O}(\varepsilon_x^3) \end{aligned} \quad (1.106)$$

$\alpha$  indice les différentes échelles de Wannier-Stark du système et coïncide à champ nul avec les indices de bande. La connexion de Berry  $\mathcal{A}$  est maintenant définie par

$$\mathcal{A}_x^{\alpha\beta}(k_x, k_y) = \text{Im} \left\langle u^\alpha(k_x, k_y) \left| \frac{\partial}{\partial k_x} u^\beta(k_x, k_y) \right. \right\rangle \quad (1.107)$$

où, comme précédemment,  $|u^\alpha(k_x, k_y)\rangle$  est le vecteur des  $u_i^\alpha(k_x, k_y)$  apparaissant dans la définition des états de Bloch du système en l'absence de champ.

Une fois que le champ  $\varepsilon_x$  est fixé, nous pouvons à nouveau diagonaliser par bloc le Hamiltonien, cependant cette fois-ci nous utilisons les états de Wannier-Stark d'une même cellule unité comme base

$$H(\varepsilon_x) \equiv \{H(\varepsilon_x, n_x), n_x \in \mathbb{Z}\} \quad (1.108)$$

Le Hamiltonien est une famille de Hamiltoniens invariants dans la deuxième direction de l'espace, la direction  $\vec{y}$ . Chacun des barreaux des échelles de Wannier-Stark étant distinct car séparés par  $\varepsilon_x a_x$ , nous pouvons appliquer les résultats de la section 3 pour obtenir la variation d'énergie en fonction du champ électrique dans la direction  $\vec{y}$ ; il faut cependant prendre soin de prendre les bons états de Wannier comme point de départ : ce sont les états

$$\left| \tilde{W}_{n_x, n_y, \alpha, \varepsilon_x} \right\rangle = \left| W_{n_x, n_y, \alpha} \right\rangle + \varepsilon_x M_{n_x m_x}^{\alpha\beta}(\varepsilon_x) \left| W_{m_x, n_y, \beta} \right\rangle \quad (1.109)$$

Pour l'état  $\left| \tilde{W}_{n_x, n_y, \alpha, \varepsilon_x} \right\rangle$ , les indices  $n_x$  et  $n_y$  n'ont pas exactement la même signification : nous avons fixé le champ dans la direction  $\vec{x}$  à la valeur  $\varepsilon_x$  et  $n_x$  indice les barreaux des échelles de Wannier-Stark associée à cette composante fixée du champ. Cependant, nous sommes en train de faire le même travail qu'effectué dans la section 3 pour la direction  $\vec{y}$  : nous faisons un développement perturbatif des échelles de Wannier-Stark en fonction du champ  $\varepsilon_y$ .  $n_y$  indice donc la cellule unité dans laquelle est localisé l'état de Wannier  $\left| \tilde{W}_{n_x, n_y, \alpha, \varepsilon_x} \right\rangle$ , appartenant au barreau  $n_x$  de l'échelle de Wannier-Stark causée par le champ  $\varepsilon_x$  dans la direction  $\vec{x}$ .

L'opérateur position  $\widehat{Y}$  a pour éléments de matrice

$$\begin{aligned} \left\langle \widetilde{W}_{m_x, m_y, \alpha, \varepsilon_x} \left| \widehat{Y} \right| \widetilde{W}_{n_x, n_y, \beta, \varepsilon_x} \right\rangle &= \int_{BZ} e^{i\chi(m_y, n_y) + i\phi^{\alpha\beta}(k_x, k_y)} \mathcal{A}_y^{\alpha\beta}(k) \frac{dk_x}{2\pi} \frac{dk_y}{2\pi} \\ &+ \varepsilon_x \int_{BZ} e^{i\chi(m_y, n_y) + i\phi^{\alpha\beta\gamma}(k_x, k_y)} \left( \mathcal{A}_x^{\alpha\gamma} \mathcal{A}_y^{\gamma\beta}(k) + \mathcal{A}_y^{\alpha\gamma} \mathcal{A}_x^{\gamma\beta}(k) \right) \frac{dk_x}{2\pi} \frac{dk_y}{2\pi} + \frac{m_y + n_y}{2} \delta_{m_x, m_y} \delta_{n_x, n_y} \delta^{\alpha\beta} \end{aligned} \quad (1.110)$$

où  $\chi(m_y, n_y) = k_y(m_y - n_y)$  et  $\phi^{\alpha\beta}(k_x, k_y)$  et  $\phi^{\alpha\beta\gamma}(k_x, k_y)$  sont des combinaisons des phases arbitraires apparaissant dans le choix des fonctions de Wannier. Les résultats de la section 3 nous donnent alors accès au spectre à  $\varepsilon_x$  fixé

$$\begin{aligned} E^\alpha(\varepsilon_x, \varepsilon_y) &= \int_{BZ} E^\alpha(k_x, k_y) \frac{dk_x}{2\pi} \frac{dk_y}{2\pi} + \int_{BZ} \left( \varepsilon_x \mathcal{A}_x^{\alpha\alpha}(k_x, k_y) + \varepsilon_y \mathcal{A}_y^{\alpha\alpha}(k_x, k_y) \right) \frac{dk_x}{2\pi} \frac{dk_y}{2\pi} \\ &+ \varepsilon_x \varepsilon_y \int_{BZ} \sum_{\beta} \left( \mathcal{A}_x^{\alpha\beta} \mathcal{A}_y^{\beta\alpha}(k) + \mathcal{A}_y^{\alpha\beta} \mathcal{A}_x^{\beta\alpha}(k) \right) \frac{dk_x}{2\pi} \frac{dk_y}{2\pi} \\ &- \varepsilon_x^2 \int_{BZ} \sum_{\beta \neq \alpha} \frac{\mathcal{A}_x^{\alpha\beta}(k_x, k_y) \mathcal{A}_x^{\beta\alpha}(k_x, k_y)}{\int_0^{2\pi} E^\beta(k_x, k_y) - E^\alpha(k_x, k_y) \frac{dk_x}{2\pi}} \frac{dk_x}{2\pi} \frac{dk_y}{2\pi} \\ &- \varepsilon_y^2 \int_{BZ} \sum_{\beta \neq \alpha} \frac{\mathcal{A}_y^{\alpha\beta}(k_x, k_y) \mathcal{A}_y^{\beta\alpha}(k_x, k_y)}{\int_0^{2\pi} E^\beta(k_x, k_y) - E^\alpha(k_x, k_y) \frac{dk_y}{2\pi}} \frac{dk_x}{2\pi} \frac{dk_y}{2\pi} + \mathcal{O}(\varepsilon^3) \end{aligned} \quad (1.111)$$

où  $\mathcal{O}(\varepsilon^3)$  signifie toutes les combinaisons faisant apparaître  $\varepsilon_x$  et  $\varepsilon_y$  plus de deux fois.

### Isolants de Chern

Nous venons de dériver le spectre d'un cristal en présence d'un champ électrique en ayant fait l'hypothèse que ce dernier est un isolant de bande à champ nul. Ceci signifie qu'il existe une bande interdite entre deux bandes  $\alpha$  et  $\beta$  d'indices distincts. Ceci se traduit par la condition

$$\exists G > 0 : \forall k_x, k_y, k'_x, k'_y, |E^\alpha(k_x, k_y) - E^\beta(k'_x, k'_y)| > G \quad (1.112)$$

qui se lit : la différence entre les énergies des bandes  $\alpha$  et  $\beta$  est toujours supérieure à  $G$ .  $G$  correspond à la largeur de la bande interdite (*direct gap*).

En présence d'un champ électrique, et donc d'un spectre de Wannier-Stark, le caractère isolant requiert que le cristal soit un isolant de bande à champ nul, mais il requiert également que les barreaux d'une même échelle soient distincts. Considérons le barreau d'indice  $n$  de l'échelle d'indice  $\alpha$ . C'est une bande unidimensionnelle dans la direction  $\vec{y}$ . Son énergie est

$$E_n^\alpha(\varepsilon_x, k_y) = \int_0^{2\pi} E^\alpha(k_x, k_y) \frac{dk_x}{2\pi} + \varepsilon_x \int_0^{2\pi} \mathcal{A}_x^{\alpha\alpha}(k_x, k_y) \frac{dk_x}{2\pi} + \varepsilon_x n + \mathcal{O}(\varepsilon_x^2) \quad (1.113)$$

Si nous suivons ce niveau lorsque nous faisons varier  $k_y$  de 0 à  $2\pi$ , nous trouvons que sa variation d'énergie est

$$\Delta E = E_n^\alpha(\varepsilon_x, 2\pi) - E_n^\alpha(\varepsilon_x, 0) = \int_0^{2\pi} \frac{\partial}{\partial k_y} E_n^\alpha(\varepsilon_x, k_y) dk_y \quad (1.114)$$

Ainsi

$$\begin{aligned} \Delta E &= \int_0^{2\pi} \int_0^{2\pi} \frac{\partial}{\partial k_y} E^\alpha(k_x, k_y) \frac{dk_x}{2\pi} dk_y + 2\pi\varepsilon_x \int_0^{2\pi} \int_0^{2\pi} \frac{\partial}{\partial k_y} \mathcal{A}_x^{\alpha\alpha}(k_x, k_y) \frac{dk_x}{2\pi} \frac{dk_y}{2\pi} + \mathcal{O}(\varepsilon_x^2) \\ &= 0 + \varepsilon_x \text{Chern}^\alpha + \mathcal{O}(\varepsilon_x^2) \end{aligned} \quad (1.115)$$

où  $\text{Chern}^\alpha$  est le nombre de Chern de la bande  $\alpha$  [28, 50].

Nous voyons donc, que lorsque le nombre de Chern d'une bande est non nul, alors

$$E_n^\alpha(\varepsilon_x, 2\pi) = E_{n+\text{Chern}^\alpha}^\alpha(\varepsilon_x, 0) \quad (1.116)$$

et nous ne pouvons pas distinguer les barreaux d'une même échelle les uns des autres : ces derniers sont reliés entre eux car  $n \leftrightarrow n + \text{Chern}^\alpha$ . Nous ne pourrions pas imposer de potentiel chimique local propre à chaque barreau car ces derniers sont indistinguables les uns des autres. Cette particularité est une des manifestations de la correspondance bord-volume des isolants de Chern [26, 51] : il est impossible de définir, où de mesurer une polarisation pour ce type de matériaux, puisque bien que isolants de volume, en présence d'un champ électrique, les bords conduisent du courant.

La méthode développée dans ce manuscrit ne traite pas les isolants de Chern, mais un traitement spécifique de la polarisation dans les isolants de Chern est réalisé dans [52]. L'élément clé de ce traitement consiste à identifier les bornes de l'intégrale apparaissant dans le calcul de la polarisation, et ceci est réalisé via les états de bords. Dans un isolant de Chern de taille finie, l'énergie des états de bord traverse nécessairement la bande interdite, et donc le potentiel chimique. L'intersection entre l'énergie des états de bord et le potentiel chimique définit alors une valeur spécifique de l'impulsion qui est ensuite utilisée comme borne dans l'intégrale définissant la polarisation, levant l'ambiguïté existante. Le cas des isolants topologique de type  $\mathbb{Z}_2$  est mentionné dans [53].

### Absence de fonctions de Wannier localisées simultanément dans les deux directions de l'espace

La théorie moderne de la polarisation, introduite par D. Vanderbilt et R. Resta, fait le parallèle entre position des fonctions de Wannier d'une bande et polarisation électrique : quelque soit la combinaison linéaire faite avec les fonctions d'ondes d'une même bande, si cette combinaison linéaire est une fonction d'onde localisée, alors la position de cette fonction d'onde (au

sens de la valeur moyenne de l'opérateur position) ne dépend pas de la combinaison linéaire choisie ; ceci étant vrai à un multiple entier de la taille de la cellule unité près.

En langage mathématique, ceci s'écrit : pour toute fonction  $f(k) : [0; 2\pi[ \rightarrow \mathbb{C}$  telle que la fonction d'onde

$$|\phi^\alpha(f)\rangle = \int_0^{2\pi} f(k) |\psi^\alpha(k)\rangle dk \quad (1.117)$$

est de norme 1, si la somme

$$X^\alpha(f) = \sum_{n,i} x_{n,i} |\langle n, i | \phi^\alpha(f) \rangle|^2 \quad (1.118)$$

converge, alors la valeur de cette somme, à un multiple entier de la taille de la cellule unité près, ne dépend pas du choix de la fonction  $f$ .  $|n, i\rangle$  est le  $i$ -ème site de la cellule unité  $n$  et  $x_{n,i} = n + x_i$  sa position.

Les fonctions de Wannier correspondent au choix de  $f_n(k) = \frac{1}{2\pi} e^{ikn}$ , la quantité  $\langle n, i | \phi^\alpha(f_n) \rangle$  est le coefficient de Fourier de la fonction périodique  $\langle n, i | \psi^\alpha(k) \rangle$ , hors la convergence de la somme  $\sum_n n^{p+1} c_n$  où  $c_n$  est la série de Fourier d'une fonction  $g$  est relié au caractère de  $p$ -dérivabilité de la fonction  $g$  (pour que la somme converge, il est nécessaire que la fonction  $g$  soit dérivable  $p$  fois). En d'autres termes, si  $|\psi^\alpha(k)\rangle$  est continue aux bords de la zone de Brillouin (à une phase près), donc s'il existe  $\chi$  un nombre réel tel que  $|\psi^\alpha(2\pi)\rangle = e^{i\chi} |\psi^\alpha(0)\rangle$ , alors les fonctions de Wannier sont automatiquement localisées et il est possible de définir de manière non-ambiguë une position pour chaque bande. L'existence d'un degré de liberté dans la phase est tout simplement relié à la liberté dans le choix de la phase pour les fonctions d'ondes en mécanique quantique.

Cette approche reste vraie en dimension deux, mais la combinaison linéaire doit être localisée simultanément dans les deux directions de l'espace ; si elle ne l'est pas, il n'est pas possible de lui attribuer une position. En termes mathématiques, quelque soit la fonction  $f : [0; 2\pi[ \times [0; 2\pi[ \rightarrow \mathbb{C}$  telle que les fonctions d'ondes

$$|\phi_x^\alpha(f, k_y)\rangle = \int_0^{2\pi} f(k_x, k_y) |\psi^\alpha(k_x, k_y)\rangle dk_x, \quad |\phi_y^\alpha(f, k_x)\rangle = \int_0^{2\pi} f(k_x, k_y) |\psi^\alpha(k_x, k_y)\rangle dk_y \quad (1.119)$$

soient de norme 1, si les sommes

$$X^\alpha(f, k_y) = \sum_{n,i} x_{n,i} |\langle n, i | \phi_x^\alpha(f, k_y) \rangle|^2, \quad Y^\alpha(f, k_x) = \sum_{n,i} y_{n,i} |\langle n, i | \phi_y^\alpha(f, k_x) \rangle|^2 \quad (1.120)$$

convergent, alors les intégrales

$$X^\alpha(f) = \int X^\alpha(f, k_y) dk_y, \quad Y^\alpha(f) = \int Y^\alpha(f, k_x) dk_x \quad (1.121)$$

ne dépendent pas de  $f$ , à un multiple entier de la taille de la cellule unité près, et nous pouvons à nouveau, de manière non-ambiguë, définir une position pour chaque bande. En utilisant les fonctions de Wannier et les propriétés des séries de Fourier, nous pouvons montrer que c'est le cas si il est possible de faire un changement de phase  $|\psi^\alpha(x_x, k_y)\rangle \rightarrow |\psi'^\alpha(k_x, k_y)\rangle = e^{-i\chi(k_x, k_y)} |\psi^\alpha(k_x, k_y)\rangle$  tel que  $|\psi'^\alpha(2\pi, k_y)\rangle = |\psi'^\alpha(0, k_y)\rangle$  et  $|\psi'^\alpha(k_x, 2\pi)\rangle = |\psi'^\alpha(k_x, 0)\rangle$  (car les fonctions  $k_x \mapsto |\psi'^\alpha(k_x, k_y)\rangle$  et  $k_y \mapsto |\psi'^\alpha(k_x, k_y)\rangle$  sont alors périodiques et leur série de Fourier décroît suffisamment vite).

Si nous effectuons un tel changement de phase, alors il est nécessaire d'avoir l'identité

$$0 = \oint \left( \left\langle \psi'^\alpha(k_x, k_y) \left| \vec{\nabla} \psi'^\alpha(k_x, k_y) \right. \right\rangle - \left\langle \vec{\nabla} \psi'^\alpha(k_x, k_y) \left| \psi'^\alpha(k_x, k_y) \right. \right\rangle \right) \cdot d\vec{k} \quad (1.122)$$

où l'intégrale est prise sur le contour fermé  $(k_x, k_y)$  suivant  $(0, 0) \rightarrow (2\pi, 0) \rightarrow (2\pi, 2\pi) \rightarrow (0, 2\pi) \rightarrow (0, 0)$ . Grâce au théorème de Stokes, nous en déduisons que

$$\begin{aligned} 0 &= \int_0^{2\pi} \int_0^{2\pi} \left( \left\langle \frac{\partial}{\partial k_x} \psi'^\alpha(k_x, k_y) \left| \frac{\partial}{\partial k_y} \psi'^\alpha(k_x, k_y) \right. \right\rangle - \left\langle \frac{\partial}{\partial k_y} \psi'^\alpha(k_x, k_y) \left| \frac{\partial}{\partial k_x} \psi'^\alpha(k_x, k_y) \right. \right\rangle \right) dk_x dk_y \\ &= 2\pi \text{Chern}^\alpha \end{aligned} \quad (1.123)$$

Ainsi, si les fonctions de Wannier sont localisées simultanément dans les deux directions de l'espace, alors le nombre de Chern de la bande est nul.

### Exemple : le modèle de Haldane

Le modèle de Haldane est le premier modèle de liaisons fortes décrivant un isolant de Chern, nous l'utilisons donc pour illustrer les idées du paragraphe précédent. Le modèle original, [28], est défini sur un réseau triangulaire, résultant en un arrangement des sites atomiques en nid d'abeille. La figure 1.14 schématise le réseau ainsi que les termes de saut et de potentiel sur site du modèle de Haldane utilisé.

Ce modèle de liaisons fortes entre dans le régime d'isolant topologique lorsque  $\left| \frac{M}{t_2} \right| < 3\sqrt{3} \sin \phi$  [28, 54] : un échantillon de taille finie comprend alors des états de bords métalliques. La figure 1.15 présente le spectre de Wannier-Stark  $E(\varepsilon_y, k_\perp = k_x)$  de ce modèle dans la phase triviale, lorsque le champ est choisi dans la direction  $\vec{y}$ . La figure 1.16 est une coupe de 1.15 à champ fixé, et les figures 1.17 et 1.18 présentent le cas où le modèle de Haldane est dans sa phase topologique, pour des nombres de Chern valant respectivement 1 et  $-1$ . Dans la phase topologique (figures 1.17 et 1.18), nous remarquons que lorsque nous faisons varier l'impulsion dans la direction transverse au champ,  $k_\perp = k_x$  de 0 à  $2\pi$ , la majorité des niveaux est décalée en accord avec

$$E_n^\alpha(\varepsilon, 2\pi) = E_{n+\text{Chern}^\alpha}^\alpha(\varepsilon, 0) \quad (1.124)$$

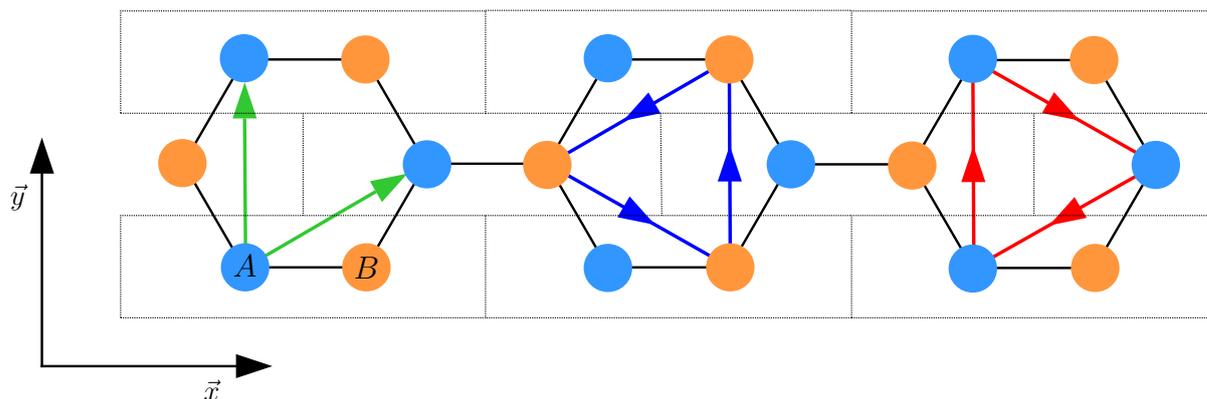


FIGURE 1.14 – Modèle de Haldane sur réseau triangulaire. Les cellules unités, dépeintes par les rectangles en pointillés contiennent un site bleu (site  $A$ ) de potentiel sur site  $+M$  et un site orange (site  $B$ ) de potentiel sur site  $-M$ , et sont répétées, selon les directions  $\vec{a}_1$  et  $\vec{a}_2 = \vec{y}$  notées par les flèches vertes sur la figure de gauche. Les termes de saut de type premier voisin, d'amplitude  $t_1$  sont dépeints en traits plein en noir, les termes de saut de type second voisin entre sites  $A$  sont dépeints en rouge sur la figure de droite, et les termes de saut entre sites  $B$  sont représentés en bleu sur la figure de milieu. Les flèches représentent le sens dans lequel la phase des termes de saut second voisin est orientée, leur amplitude étant  $t_2 e^{i\frac{\phi}{3}}$ .

Les niveaux les plus bas en énergie, qui correspondent à des états localisés aux bords de l'échantillon sont sujets à des effets de taille finie et ne sont pas décalés lorsque  $k_\perp$  est varié de 0 à  $2\pi$ . Néanmoins, lorsque  $k_\perp$  est varié de 0 à  $2\pi$ , une charge est transférée d'un bord à l'autre, conduisant à une quantification exacte (exactement une charge est transférée) pour de très grands systèmes et approximative pour les petits systèmes tel que celui simulé (une charge est transférée d'un état situé proche d'un bord vers un état situé proche de l'autre bord).

## 5.2 Champ électrique quelconque

Dans la section précédente, nous avons étudié le cas où le champ électrique est tel que le cristal garde une invariance par translation dans la direction orthogonale au champ.

Dans cette section, nous étudions le cas où le champ électrique n'est pas aligné avec les directions du réseau cristallin ; et deux cas de figure sont possibles : le cristal garde une invariance par translation dans la direction orthogonale au champ, comme cela serait le cas pour un réseau carré où le champ est dans la direction  $\vec{x} + \vec{y}$ , ou bien le champ est tel que le cristal ne possède plus aucune invariance par translation, comme cela serait le cas pour un réseau carré où le champ électrique serait dans une direction irrationnelle, c'est à dire dans la direction  $p\vec{x} + q\vec{y}$ , avec  $\frac{p}{q} \notin \mathbb{Q}$ .

Tandis que le deuxième cas est très complexe et peut être vu comme un problème entrant

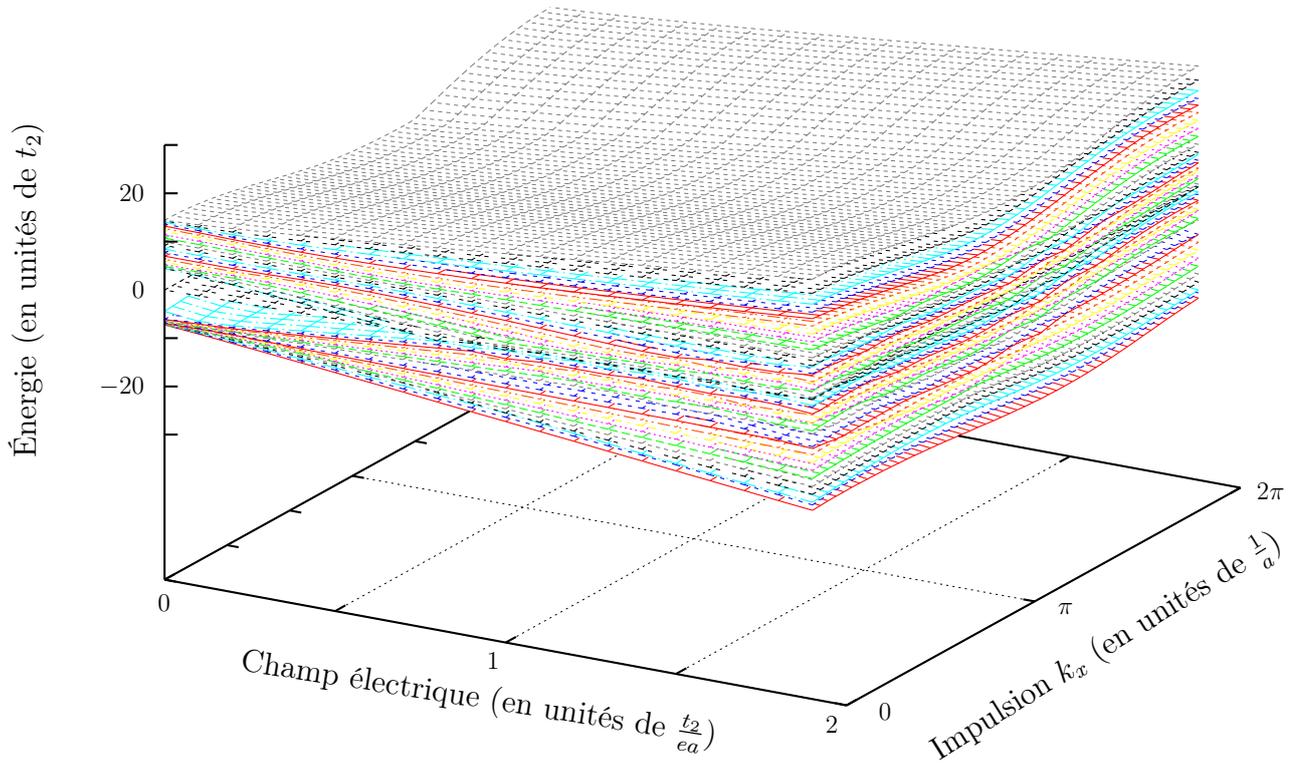


FIGURE 1.15 – Spectre de Wannier-Stark du modèle de Haldane. Le champ est appliqué dans la direction  $\vec{y}$ , permettant de conserver l’invariance par translation dans la direction  $\vec{x}$ , le spectre présenté correspond donc aux bandes  $E(\varepsilon_y, k_x)$ ; les bandes de valence et de conduction présentes en  $\varepsilon_y = 0$  évoluent en deux échelles de Wannier-Stark qui finissent par se croiser aux environs de  $\varepsilon = 1$  (en unités de  $t_2$ ). Pour des raisons de clarté, la simulation est effectuée sur un très petit système de 40 cellules unité dans la direction  $\vec{y}$  dans le régime dit trivial ( $M = 5, t_1 = 3, t_2 = 1, \phi = 0.8$ ).

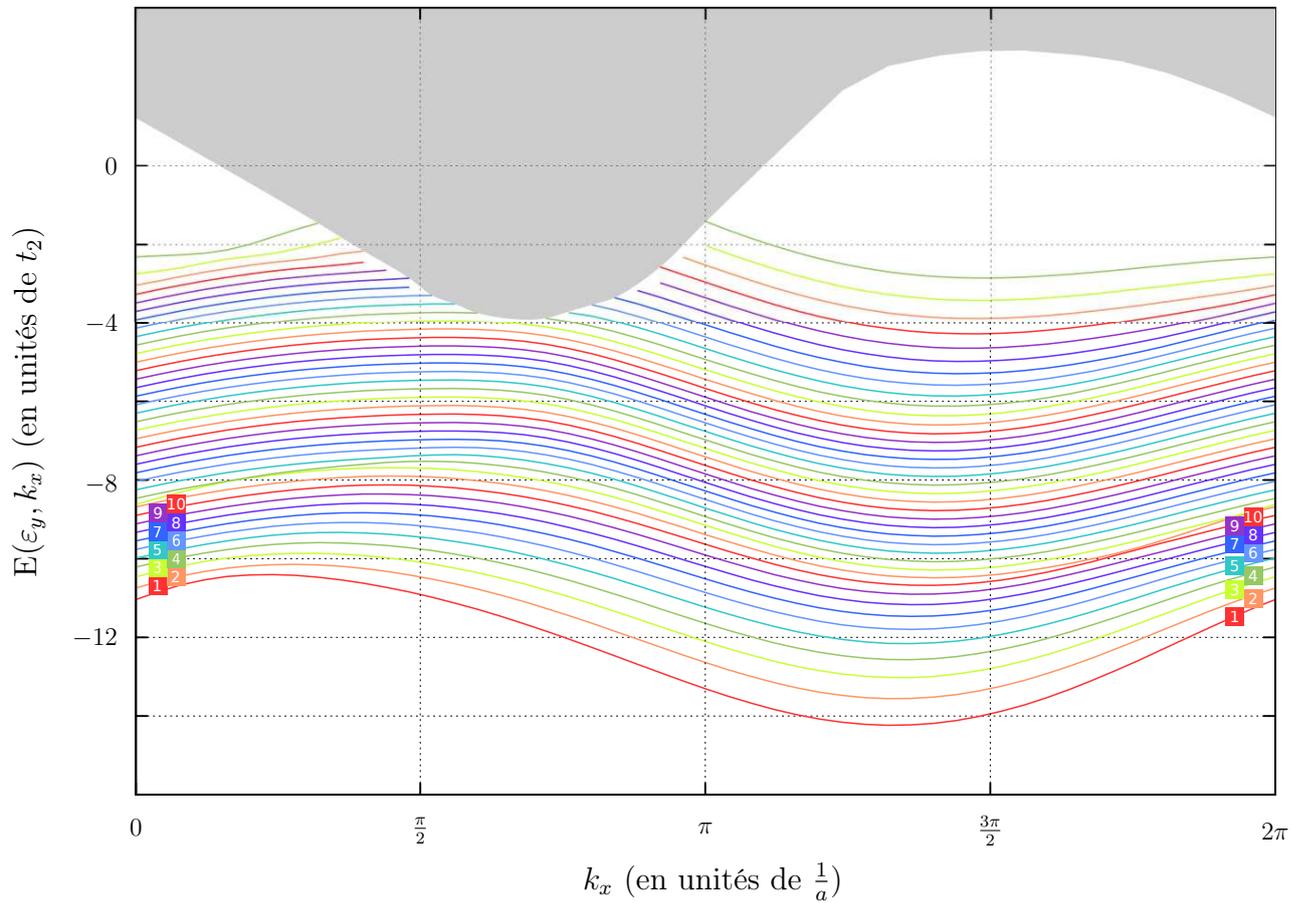


FIGURE 1.16 – Coupe à champ fixe de la figure 1.15. Seuls les niveaux de l'échelle de Wannier-Stark de la bande de valence du modèle de Haldane sont représentés. Chacun des niveaux de l'échelle de Wannier-Stark peut-être indicé de manière non-ambiguë, comme indiqué par les numéros présents sur la figure. La partie grisée du spectre comprend des niveaux de l'échelle de Wannier-Stark de la bande de conduction et est illisible du fait de multiples croisements de niveaux.

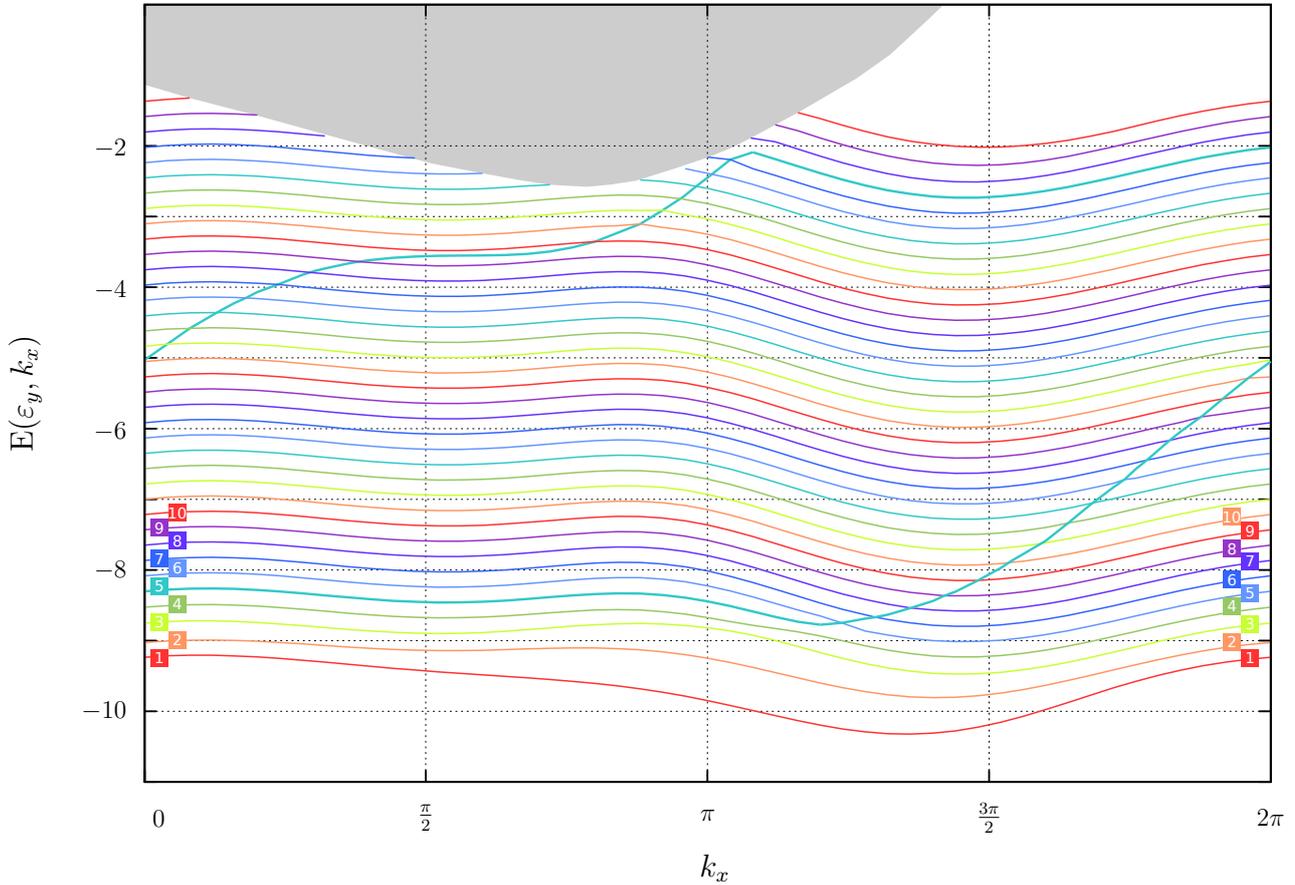


FIGURE 1.17 – Coupe à champ fixe du spectre de Wannier-Stark du modèle de Haldane dans le régime topologique. Seule l'échelle de la bande de valence est représentée. Contrairement à la figure 1.16, les niveaux de l'échelle de Wannier-Stark ne peuvent pas être numérotés de manière non-ambiguë : les numéros assignés en  $k_x = 0$  diffèrent des numéros en  $k_x = 2\pi$ . Par exemple, le niveau numéro 9 à gauche (en violet) est numéroté 8 à droite. Leur différence est directement reliée à la valeur du nombre de Chern, qui vaut 1 ( $M = 1, t_1 = 3, t_2 = 1, \phi = 0.8$ ). Les niveaux d'énergie les plus bas sont affectés par les effets de bord et peuvent être discernés sans ambiguïté ; la partie grisée du spectre comprend des niveaux de l'échelle de Wannier-Stark de la bande de conduction et est illisible du fait des croisements de niveaux.

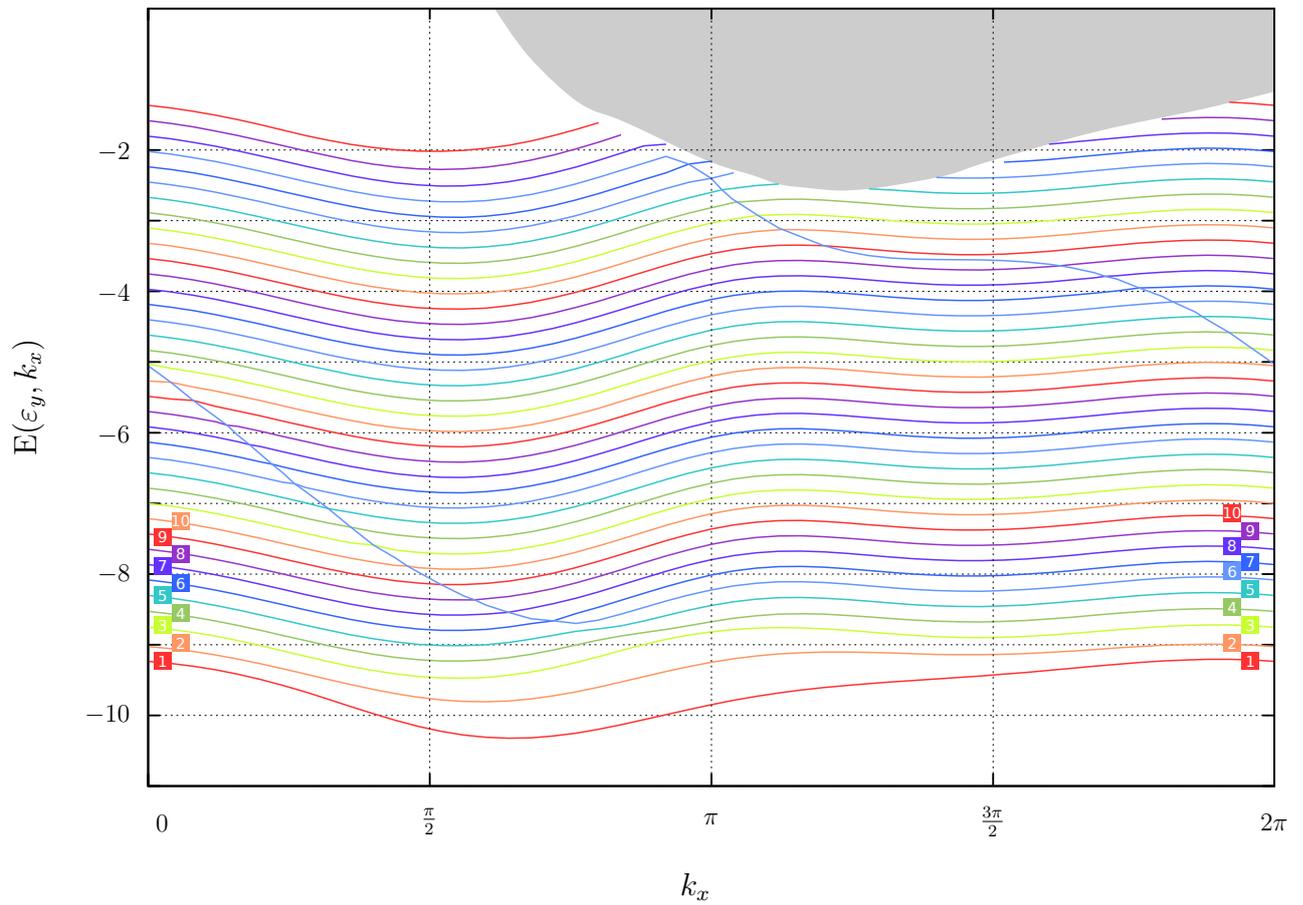


FIGURE 1.18 – Pour les paramètres  $M = 1, t_1 = 3, t_2 = 1, \phi = -0.8$ , le nombre de Chern du modèle de Haldane est  $-1$ , et les numéros assignés diffèrent en  $k_x = 0$  et en  $k_x = 2\pi$ ; et leur différence est opposée au cas où le nombre de Chern vaut 1, présenté par la figure 1.17.

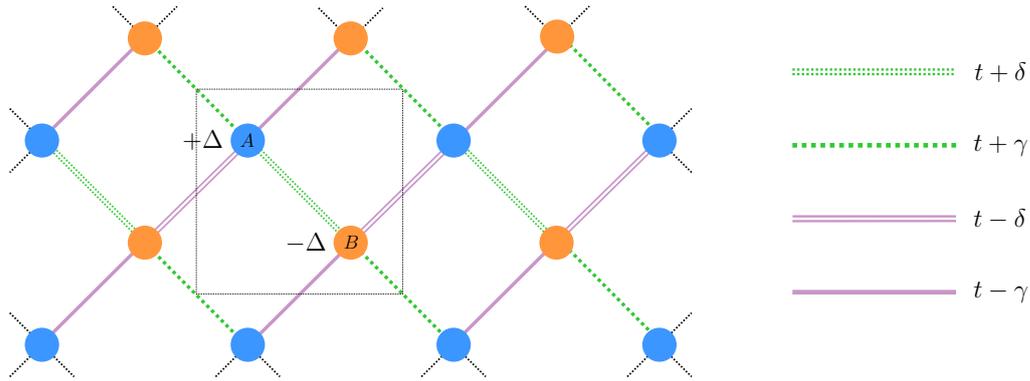


FIGURE 1.19 – Modèle sur réseau carré, comportant deux sites par cellule unité. Les termes de saut sont uniquement de type premier voisin, et leur amplitude prend des valeurs distincte  $t + \delta$ ,  $t - \delta$ ,  $t + \gamma$ ,  $t - \gamma$ , tandis que le potentiel sur site alterne entre  $+\Delta$  et  $-\Delta$ .

dans la catégorie des systèmes quasi-périodiques [55, 56], le premier cas est plus simple et nous choisissons ici de l'illustrer via un modèle simple.

Nous considérons donc le réseau carré présenté à la figure 1.19, contenant deux sites,  $A$  et  $B$ , par cellule unité. Les termes de saut de type premier voisin ont tous une amplitude différente :  $t + \delta$ ,  $t - \delta$ ,  $t + \gamma$ ,  $t - \gamma$ , tandis que le potentiel sur site alterne entre  $+\Delta$  et  $-\Delta$  pour chacun des sites de la cellule unité. Les deux directions du réseau sont  $\vec{x}$  et  $\vec{y}$ . En l'absence de champ, le Hamiltonien du système est donc

$$H = \begin{pmatrix} \Delta & f(k) \\ f^*(k) & -\Delta \end{pmatrix} \quad (1.125)$$

où  $f(k) = e^{-i\vec{k}\cdot\vec{R}_{AB}} (t(1 + e^{-ik_x})(1 + e^{-iky}) + \delta(1 - e^{-ik_x}e^{-iky}) + \gamma(e^{-ik_x} - e^{-iky}))$  et  $\vec{R}_{AB}$  est le vecteur qui relie le site  $A$  au site  $B$  d'une même cellule unité.

Lorsque  $\Delta \neq 0$ , le modèle est un isolant de bande, avec une bande interdite de largeur supérieure à  $2\Delta$ , et lorsque  $\delta \neq 0$  et  $\gamma \neq 0$ , toutes les symétries de type miroir ou inversion du réseau sont brisées, permettant à la polarisation de prendre une valeur non nulle. En accord avec les résultats de la section 3, lorsque le champ est placé dans la direction  $\vec{x}$ , alors la polarisation selon la direction  $\vec{x}$  peut être évaluée et vaut

$$\mathcal{P}_x = -i \int \int_{BZ} \left\langle u^\alpha(k) \left| \frac{\partial}{\partial k_x} u^\alpha(k) \right. \right\rangle \frac{dk_x}{2\pi} \frac{dk_y}{2\pi} \quad (1.126)$$

et pour la direction  $\vec{y}$  cette dernière vaut

$$\mathcal{P}_y^\alpha = -i \int \int_{BZ} \left\langle u^\alpha(k) \left| \frac{\partial}{\partial k_y} u^\alpha(k) \right. \right\rangle \frac{dk_y}{2\pi} \frac{dk_x}{2\pi} \quad (1.127)$$

où  $\alpha = \pm$  est l'indice de bande et  $u^\alpha(k)$  est défini de la même manière que pour les sections précédentes : c'est la partie périodique à l'échelle de la cellule unité de la fonction d'onde.

En accord avec les propriétés physiques de la polarisation nous nous attendons à avoir  $\mathcal{P}_{x+y}^\alpha = (\mathcal{P}_x^\alpha \vec{x} + \mathcal{P}_y^\alpha \vec{y}) \cdot \frac{1}{\sqrt{2}} (\vec{x} + \vec{y})$ . Pour le vérifier, nous appliquons un champ électrique dans la direction  $\vec{x} + \vec{y}$ ; le cristal perd alors son invariance par translation dans les directions  $\vec{x}$  et  $\vec{y}$ , en revanche une nouvelle invariance par translation apparaît dans la direction orthogonale au champ électrique, et la nouvelle cellule unité contient alors quatre sites par cellule unité. Le cristal obtenu est représenté par la figure 1.20. Il contient 4 sites par cellule unité,  $A$ ,  $A'$ ,  $B$  et  $B'$ . Son Hamiltonien dans l'espace réel est

$$\begin{aligned} H = \sum_{m,n} \Delta & (a_{mn}^\dagger a_{mn} + a_{mn}'^\dagger a_{mn}' - b_{mn}^\dagger b_{mn} - b_{mn}'^\dagger b_{mn}') \\ & + (t + \delta) (a_{mn}^\dagger b_{mn} + a_{mn}'^\dagger b_{m+1,n}' + cc.) + (t + \gamma) (a_{mn}^\dagger b_{mn}' + a_{mn}'^\dagger b_{m,n+1} + cc.) \\ & + (t - \delta) (a_{mn}'^\dagger b_{mn}' + b_{mn}^\dagger a_{m+1,n} + cc.) + (t - \gamma) (a_{mn}'^\dagger b_{mn}' + a_{mn}'^\dagger b_{m,n+1}' + cc.) \end{aligned} \quad (1.128)$$

Lorsque le champ électrique est dans la direction  $\vec{x} + \vec{y}$  (la direction des indices  $m$ ), le modèle contient une invariance par translation dans la direction  $\vec{x} - \vec{y}$  (la direction des indices  $n$ ). Nous pouvons donc diagonaliser par bloc le Hamiltonien précédent

$$\begin{aligned} H(k_\perp) = \sum_m \Delta & \left( \alpha_{m,k_\perp}^\dagger \alpha_{m,k_\perp} + \alpha_{m,k_\perp}'^\dagger \alpha_{m,k_\perp}' - \beta_{m,k_\perp}^\dagger \beta_{m,k_\perp} - \beta_{m,k_\perp}'^\dagger \beta_{m,k_\perp}' \right) \\ & + \left( (2t \cos(k_\perp d_{AB}) + 2i\delta \sin(k_\perp d_{AB})) \alpha_{m,k_\perp}^\dagger \beta_{m,k_\perp} + cc. \right. \\ & + (2t \cos(k_\perp d_{AB}) - 2i\delta \sin(k_\perp d_{AB})) \alpha_{m,k_\perp}'^\dagger \beta_{m,k_\perp}' + cc. \left. \right) \\ & + (t + \gamma) \left( \alpha_{m,k_\perp}^\dagger \beta_{m,k_\perp}' + \alpha_{m+1,k_\perp}'^\dagger \beta_{m,k_\perp} \right) + (t - \gamma) \left( \alpha_{m,k_\perp}'^\dagger \beta_{m,k_\perp} + \alpha_{m,k_\perp}^\dagger \beta_{m+1,k_\perp}' \right) \end{aligned} \quad (1.129)$$

où  $d_{AB}$  est la distance entre les sites  $A$  et  $B$ . Le modèle bidimensionnel devient alors équivalent à une famille de modèles unidimensionnels paramétrés par  $k_\perp$ , le nombre quantique (quasi-impulsion) dans la direction perpendiculaire au champ électrique.

Cette famille de Hamiltoniens comporte quatre bandes, séparées en deux groupes de deux bandes d'énergie par une bande interdite de largeur supérieure à  $2\Delta$ . Les deux bandes de chaque groupe sont dégénérées en certains points de la zone de Brillouin et ne remplissent donc pas les critères de la section 3. Afin d'accéder à la polarisation, nous nous contentons ici d'une résolution numérique. La figure 1.21 compare les valeurs de la polarisation dans la direction  $\vec{x} + \vec{y}$  obtenue en utilisant  $\mathcal{P}_{x+y}^\alpha = (\mathcal{P}_x^\alpha \vec{x} + \mathcal{P}_y^\alpha \vec{y}) \cdot \frac{1}{\sqrt{2}} (\vec{x} + \vec{y})$  avec celle obtenue en diagonalisant numériquement ce modèle en présence d'un champ électrique.

Nous notons ici un accord parfait entre les deux méthodes de calcul de la polarisation : de manière générale, pour tous les isolants où il existe des fonctions de Wannier localisées simultanément dans les deux directions de l'espace, il n'y a jamais d'ambiguïté à décrire la polarisation à partir de n'importe quel choix de cellule unité, et pour n'importe quelle direction

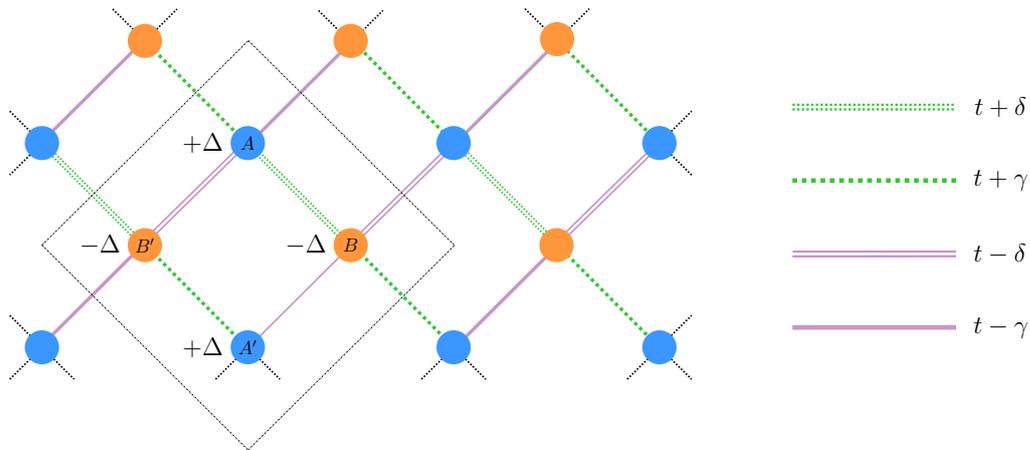


FIGURE 1.20 – Pour le même modèle que présenté à la figure 1.19, nous pouvons choisir une cellule unité (en pointillé) qui préserve l'invariance par translation dans la direction orthogonale au champ électrique, appliqué dans la direction  $\vec{x} + \vec{y}$ .

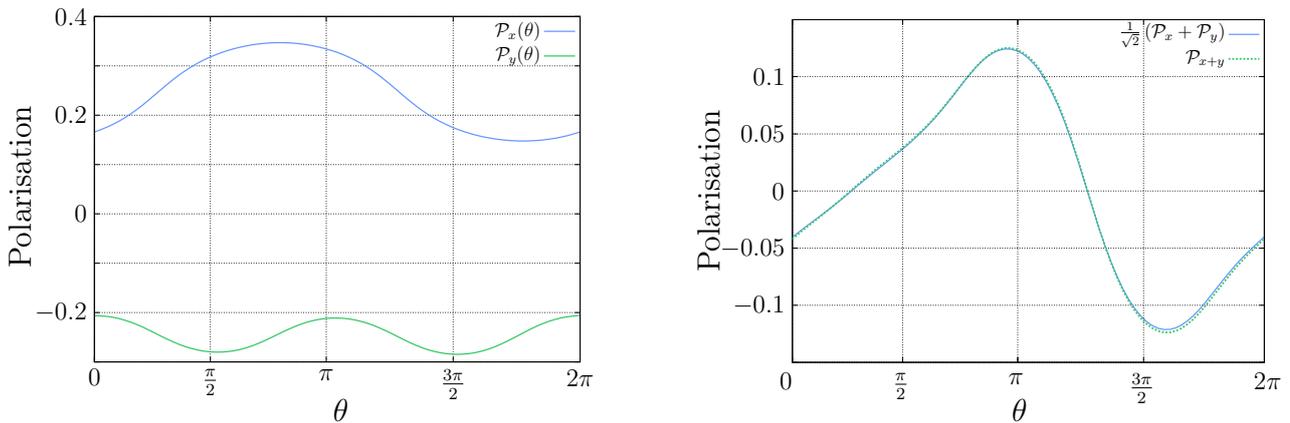


FIGURE 1.21 – À gauche : polarisation de la bande de valence du réseau carré présenté par la figure 1.19 dans les directions  $\vec{x}$  et  $\vec{y}$ . À droite : polarisation obtenue dans la direction  $\vec{x} + \vec{y}$ , calculée en changeant la cellule unité (voir figure 1.20) et comparée à la polarisation attendue  $\mathcal{P}_{x+y}^- = (\mathcal{P}_x^- \vec{x} + \mathcal{P}_y^- \vec{y}) \cdot \frac{1}{\sqrt{2}} (\vec{x} + \vec{y})$  où la polarisation dans les direction  $\vec{x}$  et  $\vec{y}$  est obtenue via la résultats de la section 3. La différence entre les deux courbes s'explique par la petite taille de l'échantillon simulé, donc des effets de taille finie ont un impact important sur la valeur de la polarisation. Les termes de saut et de potentiel sur site sont  $V = 1, t = 1, \delta = 0.6 \cos \theta, \gamma = 0.6 \sin \theta$ .

du champ électrique appliqué. Cette constatation rejoint les idées présentées dans [16] où les isolants sont décrits comme les matériaux où l'état fondamental (le déterminant de Slater des états à un électron) peut être réécrit comme un déterminant de Slater de fonctions d'ondes localisées, même si ces dernières ne sont pas des états propres du problème à une électron.

## 6 Conclusion

Après avoir développé une approche perturbative pour obtenir le spectre d'un cristal unidimensionnel soumis à un champ électrique, appelé spectre de Wannier-Stark, nous avons utilisé la définition thermodynamique de la polarisation et de la susceptibilité électrique afin de dériver des expressions analytiques pour ces deux quantités en dimension une. Nous avons ensuite étendu le résultat à la dimension deux.

Les particularités majeures rencontrées aux cours de l'approche suivie dans ce manuscrit sont les suivantes : en l'absence de champ électrique, le cristal est invariant par translation discrète, et l'utilisation du théorème de Bloch permet d'accéder aux états propres électroniques, qui sont des états délocalisés. Lorsque le champ électrique est appliqué, l'invariance par translation est brisée au niveau du Hamiltonien et le théorème de Bloch n'est pas applicable. Cette difficulté est surmontée en utilisant une théorie de perturbation inhabituelle : bien que faisant appel aux états propres et aux énergies propres en l'absence de champ pour exprimer perturbativement les états propres et énergies propres en présence d'un champ, le point de départ n'est pas un état propre à champ nul, et la limite champ nul de l'énergie propre n'est pas non plus une énergie propre du système en l'absence de champ. La deuxième difficulté intervenant dans l'approche thermodynamique de la polarisation et de la susceptibilité est reliée au caractère non-borné du spectre en présence du champ électrique : quelque soit la valeur du champ, le spectre de Wannier-Stark n'a ni borne inférieure, ni borne supérieure, résultant en la nécessité d'utiliser une prescription de remplissage des états électroniques. Les niveaux d'énergie sont remplis de sorte à ce que le remplissage lorsque le champ électrique tend vers zéro soit identique au remplissage électronique en l'absence de champ. Ce remplissage équivaut à demander que la distribution de charge dans le cristal conserve la neutralité électrique à l'échelle locale, ce qui est conforté de manière qualitative par la présence d'interactions.

Dans le cas de la polarisation, l'image essentielle à retenir est identique à celle donnée par la *théorie moderne de la polarisation* : pour un modèle simple, à deux bandes, et à température nulle, les électrons du cristal isolant peuvent être réécrits sous forme d'états localisés. Bien qu'il existe une infinité de réécritures sous forme d'états localisés, nommés états de Wannier, tous ces états ont la propriété d'être localisés à la même position (modulo les vecteurs de Bravais du cristal). Il est donc parfaitement possible de définir la polarisation via la position des états de Wannier, et cette définition n'est pas ambiguë. De plus, cette définition fait intervenir de manière naturelle le quantum de polarisation résultant de la propriété d'invariance par translation du cristal.

La susceptibilité est une quantité plus difficile à interpréter : dans le cadre d'un cristal

à deux bandes et à température nulle, cette dernière est qualitativement reliée à la longueur de localisation des fonctions de Wannier maximales localisées [21, 32, 45], divisé par une énergie qui n'est pas exactement la largeur de la bande interdite, mais plutôt la différence entre les énergies moyenne des deux bandes.

Essentiellement, notre approche de la théorie de la polarisation est de montrer qu'il est possible de faire de la mécanique statistique à l'équilibre pour décrire un état métastable de longue durée de vie. Cet apport à l'avantage de mettre en avant les effets de la température.

# Chapitre 2

## Synchronisation et écho de spin dans une horloge atomique

### 1 Introduction

Apparue à la fin du siècle dernier, la manipulation des systèmes quantiques est maintenant essentielle à de nombreux domaines de la physique : calcul quantique, simulation quantique, spectroscopie haute précision, interférométrie atomique, ... En particulier, ces domaines requièrent de manipuler des systèmes quantiques cohérents et non des mélanges statistiques, et de conserver la cohérence de ces ensembles sur des durées toujours plus longues.

Les horloges atomiques, utilisant des atomes piégés et refroidis rentrent dans cette catégorie d'applications nécessitant des temps de cohérence longs. Ces dernières sont en général basées sur le principe d'interférométrie de Ramsey [12], elle même basée sur la méthode de Rabi. Afin de mesurer la différence d'énergie  $\hbar\omega_0$  entre le niveau fondamental (noté  $|\downarrow\rangle$ ) et un niveau excité d'un atome (noté  $|\uparrow\rangle$ ), un ensemble d'atomes est plongé dans un champ électromagnétique dont la fréquence  $\omega$  est proche de la fréquence propre de la transition atomique  $\omega_0$ . Les atomes subissent alors des oscillations de Rabi [57], et leur état interne alterne périodiquement entre les états fondamental et excité  $|\downarrow\rangle$  et  $|\uparrow\rangle$ . Il suffit alors de mesurer les populations dans les états fondamental et excité en fonction du temps pour visualiser les oscillations de Rabi dont la fréquence dépend non seulement du désaccord  $\omega - \omega_0$ , mais également du couplage atome-champ et de l'intensité du champ électromagnétique. Dans le cadre des horloges atomiques au Césium, ceci permet de réaliser une mesure précise du temps :  $\omega_0$  est relié à la définition de la seconde ; en permettant de mesurer le désaccord, les oscillations de Rabi fournissent une mesure du temps.

La méthode de Rabi est soumise à différents phénomènes qui limitent sa précision. Une méthode qui permet d'augmenter la précision de la mesure du temps est la méthode de Ramsey. Grâce à une impulsion  $\frac{\pi}{2}$ , qui consiste à utiliser les oscillations de Rabi contrôlées, les atomes sont placés dans la superposition  $|\downarrow\rangle + |\uparrow\rangle$ . Ils évoluent ensuite librement pour la durée de

l'interféromètre, avant une deuxième impulsion  $\frac{\pi}{2}$ . Aux oscillations de Rabi se superposent alors les franges de Ramsey et cette méthode permet d'augmenter significativement la précision de la mesure comparé à de simples oscillations de Rabi. Néanmoins, l'inhomogénéité des champs appliqués et l'inhomogénéité entre les vitesses des différents atomes viennent réduire la précision de l'interférométrie de Ramsey.

Afin d'augmenter encore la précision des mesures, il est possible de piéger les atomes afin de les refroidir davantage, conduisant à plusieurs régimes expérimentaux distincts : le régime froid, ultra-froid mais non-dégénéré et le régime dégénéré, où, avec des atomes bosoniques un condensat de Bose-Einstein est formé [58-60] tandis qu'avec des atomes fermioniques ces derniers entrent dans le régime de mer de Fermi. Dans ce manuscrit, où les atomes sont fortement refroidis, mais pas suffisamment pour entrer dans le régime dégénéré. Les atomes peuvent généralement être vus comme des particules classiques possédant plusieurs niveaux internes quantiques, décrits comme un pseudo-spin. Dans le cas de l'interférométrie de Ramsey où seulement deux niveaux internes sont utilisés, ceux-ci sont équivalents à un pseudo-spin  $\frac{1}{2}$ . Les potentiels de piégeage varient spatialement et dépendent généralement de l'état interne des atomes et sont responsables d'une évolution inhomogène de l'état interne, que l'on peut décrire comme une précession de leur pseudo-spin. Les potentiels de piégeage sont une des multiples sources de décohérence pour les ensembles atomiques piégés. Plusieurs techniques ont été développées pour accroître le temps de cohérence de l'ensemble : l'utilisation d'une longueur d'onde magique pour le piégeage optique [61, 62], l'ajout d'un champ de compensation [63, 64]. Ces techniques réduisent la vitesse de déphasage du terme de cohérence mais ne le compensent pas totalement. Ainsi, la technique de l'écho de spin, réalisée originellement en résonance magnétique nucléaire [13] via l'utilisation d'une impulsion  $\pi$  a été adaptée pour le cas des atomes froids [65]. L'écho de spin renverse totalement l'effet d'une partie des sources de décohérence, conduisant ainsi à des temps de cohérence nettement plus longs [66, 67]. La réduction des sources de décohérence restantes passe alors par un refroidissement supplémentaire du gaz d'atomes [68]. Comme l'obtention d'une bonne sensibilité au cours des expériences requiert d'utiliser un grand nombre d'atomes, à ces températures, l'ensemble atomique entre dans le régime des gaz atomiques ultra-froids et denses, dans lequel les collisions entre atomes conduisent à une source de désynchronisation supplémentaire. Il est néanmoins attendu que la technique de l'écho de spin vienne compenser une partie de cette nouvelle source de déphasage.

La motivation du travail présenté dans ce chapitre vient de l'expérience effectuée au SYRTE à l'Observatoire de Paris avec un gaz d'atomes de Rubidium 87 ultra-froids dans le régime dense. La figure 2.1 présente un comportement inattendu : avec l'augmentation de la densité atomique, le temps de cohérence augmente au point de surpasser les temps de cohérence observés avec la technique d'écho de spin. Cet effet d'augmentation du temps de cohérence est associé au mécanisme d'effet de rotation des spins identiques (*ISRE*, *identical spin rotation effect*, *ERSI* en français) [14].

Dans ce chapitre nous étudions l'effet cumulé de la technique d'écho de spin et son interaction avec l'effet de rotation des spins identiques, en lien avec le groupe expérimental *ForCa-G* du

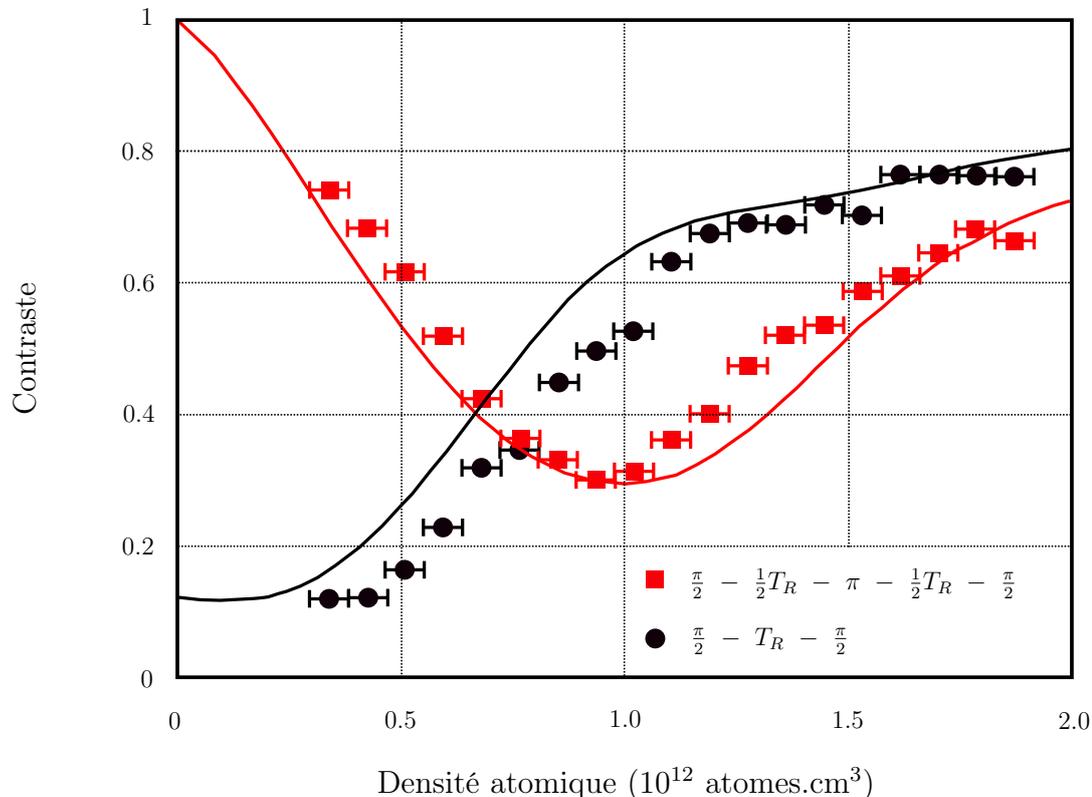


FIGURE 2.1 – Expérience réalisée au *SYRTE* (Observatoire de Paris) [69]. Deux types de séquences interférométriques de Ramsey sont présentées. En rouge : la séquence contient une impulsion  $\pi$ , utilisée pour la réalisation d’un écho de spin, supposé rallonger le temps de cohérence de l’ensemble atomique. En noir, la séquence interférométrique ne contient pas d’impulsion  $\pi$ . Les courbes représentent le contraste à la fin de la séquence (après une durée notée  $T_R$ , temps Ramsey). Une valeur élevée du contraste est symbole d’un temps de cohérence élevé. À grande densité atomique, la courbe rouge, correspondant à une séquence avec un écho de spin conduit à un contraste mesuré (et donc à un temps de cohérence) inférieur à celui de la courbe noire, réalisée sans utiliser la technique d’écho de spin : ce résultat est inattendu. La technique de l’écho de spin ayant été créée spécifiquement pour augmenter le temps de cohérence. Les courbes en trait pleins représentent le résultat des simulations numériques réalisées durant ma thèse. Les barres d’erreur verticales sont comprises à l’intérieur des symboles.

*SYRTE* à l'Observatoire de Paris.

- Dans la section 2, nous décrivons la dynamique d'atomes piégés dans le régime sans collision en utilisant la représentation action-angle développée par [70],
- Dans la section 3, nous donnons les détails de l'expérience nécessaires pour la simulation numérique de l'interaction entre l'*ISRE* et l'écho de spin, ainsi que pour la comparaison expérience-simulation,
- Dans la section 4, nous décrivons le mécanisme de compétition entre l'écho de spin et l'*ISRE* au travers de simulations numériques et de mesures expérimentales.

L'appendice B contient une copie de la publication [69] liée à ce projet.

## 2 Dynamique d'atomes piégés

Dans cette section, nous détaillons le Hamiltonien d'un gaz d'atomes ultra-froid piégés. Nous nous intéressons plus précisément à des atomes de Rubidium ( $^{87}\text{Rb}$ ) qui sont de type bosonique, piégés dans un piège dipolaire. Nous décrivons dans un premier temps l'interaction atome-laser afin d'obtenir des équations décrivant la dynamique d'atomes piégés dans l'espace des phases position-impulsion  $(r, p)$ . Nous détaillerons ensuite l'interaction atome-atome, dans un premier temps sans prendre en compte leurs états internes, qui seront finalement pris en compte notamment au travers de l'effet de rotation des pseudo-spins identiques. Nous détaillerons ensuite d'autres mécanismes de perte de cohérence (pertes d'atomes, émission spontanée, interaction à trois corps) et nous quantifierons leur importance. Nous aurons à ce moment là accès aux équations qui décrivent la dynamique d'un gaz d'atomes ultra-froid dans un piège dipolaire. Finalement, l'analyse des échelles de temps présentes nous conduit à passer d'une dynamique dans l'espace des phases  $(r, p)$  où les variables position et impulsion sont fortement couplées vers une dynamique dans l'espace action-angle  $(J, \alpha)$ , où la variable action dépend lentement du temps, tandis que la variable angle en dépend rapidement.

### 2.1 Atomes dans un piège dipolaire

Lorsque des atomes sont plongés dans un champ électromagnétique monochromatique et stationnaire, et que la longueur d'onde du champ est très grande devant la taille typique des atomes, alors ce dernier induit un moment dipolaire dans les atomes [71]. Ce moment dipolaire oscille à la même fréquence que la lumière

$$\vec{E}(r, t) = \vec{E}(r) \exp(i\omega t) + c.c \text{ et } \vec{p}(r, t) = \alpha(\omega) \vec{E}(r) \exp(i\omega t) + c.c \quad (2.1)$$

$E$  est la composante champ électrique de l'onde stationnaire,  $\vec{p}$  est le moment dipolaire induit,  $\alpha(\omega)$  est la polarisabilité atomique et dépend de la pulsation du champ électromagnétique. L'énergie d'interaction entre un dipôle induit et un champ électrique est  $-\frac{1}{2} \vec{E} \cdot \vec{p}$ . Ainsi, sur des durées longues devant la période d'oscillation du champ, l'interaction moment dipolaire -

champ électrique est décrite par le potentiel effectif

$$U(r) = -\frac{1}{2} \left\langle \vec{p}(r) \cdot \vec{E}(r) \right\rangle = -\frac{Re(\alpha)}{2\epsilon_0 c} I(r) \quad (2.2)$$

ou  $I$  est l'intensité lumineuse et  $\langle \dots \rangle$  désigne une moyenne prise sur une durée longue devant la période des oscillations du champ électromagnétique. Le facteur  $\frac{1}{2}$  provient du caractère induit du dipôle atomique ; si nous avons plongé un dipôle permanent dans un champ électrique, ce pré-facteur serait absent [72]. Dans le cas où la partie réelle de la polarisabilité est positive, ce potentiel est un potentiel de piégeage si l'intensité lumineuse possède un maximum local, et les atomes sont piégés dans les zones de fort champ, par exemple au centre d'un faisceau laser Gaussien. Lorsque la partie réelle de la polarisabilité est négative, alors les atomes sont piégés dans les zones de faible champ qui peuvent être obtenues, par exemple, en utilisant des modes de Laguerre-Gauss d'un faisceau laser.

La partie imaginaire de la polarisabilité atomique entre quant à elle en jeu dans la puissance absorbée puis réémise par l'atome

$$P(r) = \left\langle \dot{\vec{p}} \cdot \vec{E} \right\rangle = \frac{Im(\alpha)}{\hbar\epsilon_0 c} I(r) \quad (2.3)$$

### Polarisabilité atomique

L'expression de la polarisabilité  $\alpha(\omega)$  peut être obtenue via une approche semi-classique [71]. Nous considérons que l'électron est élastiquement lié à l'atome, et que ses oscillations propres ont lieu à la fréquence de la transition optique  $\omega_0$ . L'électron est également soumis à une force dissipative, donnée par la formule de Larmor (équation 2.6). Cette force dissipative exprime la puissance dissipée par une particule chargée accélérée. L'équation du mouvement pour un électron soumis à un champ oscillant est donc

$$m\ddot{x} + m\Gamma_\omega \dot{x} + m\omega_0^2 x = -eE(t) \quad (2.4)$$

La polarisation induite, proportionnelle au champ et à la polarisabilité, n'est rien d'autre que le déplacement de l'électron :  $p(t) = x(t) = \alpha(\omega)E(t)$ . Nous trouvons donc

$$\alpha(\omega) = \frac{e^2}{m} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma_\omega} \quad (2.5)$$

La force dissipative est donnée par la formule de Larmor

$$\Gamma_\omega = \frac{e^2\omega^2}{6\pi\epsilon_0 mc^3} \quad (2.6)$$

D'un point de vue quantique, pour un atome à deux niveaux, la formule de Larmor n'est plus valable. Tant que les effets de saturation restent faibles, il est possible de remplacer  $\Gamma_\omega$  par l'élément de matrice du moment dipolaire entre l'état de base et l'état excité [72]

$$\Gamma_\omega = \frac{\omega^2 \omega_0}{3\pi \epsilon_0 \hbar c^2} |\langle e | \mu | g \rangle|^2 \quad (2.7)$$

Ces approches classiques et semi-classiques restent largement valables tant que les effets de saturation restent faibles : si la puissance du laser de piégeage reste faible, elles fournissent de très bons résultats pour les atomes de type alcalin, dont le Rubidium fait partie. Le résultat est en accord avec les mesures à quelques pourcents près.

### Approximation séculaire

Dans les expériences typiques, le laser de piégeage est très quasi-accordé vis à vis de la transition atomique :  $\omega_0 - \omega \ll \omega, \omega_0$  et la saturation est très faible (la puissance du laser est suffisamment faible pour que la population de l'état excité reste minimale). Nous pouvons alors simplifier l'expression du potentiel d'interaction en se plaçant dans ces conditions

$$U(\vec{r}) \approx -\frac{3\pi c^2}{2\omega_0} \left( \frac{\Gamma_{\omega_0}}{\omega_0 - \omega} + \frac{\Gamma_{\omega_0}}{\omega_0 + \omega} \right) I(\vec{r}) \approx -\frac{3\pi c^2}{2\omega_0} \frac{\Gamma_{\omega_0}}{\omega_0 - \omega} I(\vec{r}) \quad (2.8)$$

Le potentiel de piégeage est alors proportionnel à l'intensité du laser. Ceci signifie que lorsque les lasers sont dans leur mode Gaussien, le potentiel de piégeage est un potentiel Gaussien qu'il est facile d'approximer par un potentiel harmonique, pourvu que les atomes soient suffisamment froids pour qu'ils n'explorent que le fond de ce potentiel.

### Description Hamiltonienne

Finalement, l'interaction lumière-atome est décrite par un potentiel d'interaction effectif. La dynamique d'un atome dans un champ laser stationnaire peut donc être décrite par le Hamiltonien

$$\hat{H} = \frac{\hat{P}^2}{2m} + U(\hat{r}) \quad (2.9)$$

Nous nous intéressons plus précisément à des atomes de Rubidium 87, qui possèdent une structure interne. Dans son état fondamental, le niveau  $5^2S_{1/2}$  est rempli par un électron. Le niveau  $5^2S_{1/2}$  possède une structure hyperfine, et est séparé en deux sous-niveaux, nommés  $|F = 1\rangle$  et  $|F = 2\rangle$ .

Les niveaux  $|F = 1\rangle$  et  $|F = 2\rangle$  sont séparés par  $6.83GHz$  ( $6.83468261090429(9)GHz$ ) : l'énergie  $|F = 1\rangle$  est abaissée de  $\delta_1 = 4.27GHz$  par rapport au niveau  $5^2S_{1/2}$  tandis que celle de

$|F = 2\rangle$  est augmentée de  $\delta_2 = 2.56GHz$  [73]. Le potentiel de piégeage dépend alors de l'état interne de l'atome et les potentiels respectifs sont

$$U_1(\vec{r}) = -\frac{3\pi c^2}{2\omega_0} \frac{\Gamma_{\omega_0}}{\omega_0 - \omega - \delta_1} I(\vec{r}) \approx U(\vec{r}) - \frac{3\pi c^2}{2\omega_0} \frac{\Gamma_{\omega_0}}{(\omega_0 - \omega)^2} \delta_1 I(\vec{r}) \quad (2.10)$$

$$U_2(\vec{r}) \approx U(\vec{r}) + \frac{3\pi c^2}{2\omega_0} \frac{\Gamma_{\omega_0}}{(\omega_0 - \omega)^2} \delta_2 I(\vec{r}) \quad (2.11)$$

Ainsi, le Hamiltonien décrivant l'interaction atome-lumière acquiert une structure matricielle, qui dans la base  $|F = 1\rangle, |F = 2\rangle$  à la forme

$$\hat{H} = \frac{\hat{P}^2}{2m} \mathbb{1} + V(\hat{r}) = \frac{\hat{P}^2}{2m} \mathbb{1} - \frac{3\pi c^2}{2\omega_0} \frac{\Gamma_{\omega_0}}{\omega_0 - \omega} \begin{pmatrix} 1 + \frac{\delta_1}{\omega_0 - \omega} & 0 \\ 0 & 1 - \frac{\delta_2}{\omega_0 - \omega} \end{pmatrix} I(\hat{r}) \quad (2.12)$$

Nous reconnaissons ici le Hamiltonien d'un pseudo-spin plongé dans un potentiel inhomogène  $U(\vec{r})$  et soumis à un pseudo-champ Zeeman  $\vec{W}(\vec{r}) = \Delta U(\vec{r}) \vec{z} = (U_2(\vec{r}) - U_1(\vec{r})) \vec{z}$  inhomogène en amplitude. L'inhomogénéité du champ Zeeman conduit à une précession de Larmor inhomogène des pseudo-spins atomiques autour de l'axe  $\vec{z}$ .

### Description dans l'espace des phases

Tandis que d'un point de vue purement technique, les équations de Hamilton permettent de prédire la dynamique d'un ensemble d'atomes piégés, la comparaison avec les expériences requiert de connaître l'évolution d'une distribution initiale d'atomes. Nous devons donc déterminer les équations de la dynamique d'un gaz d'atomes de  $^{87}Rb$  sans interaction dans un piège dipolaire dans l'espace des phases  $(\vec{r}, \vec{p})$ . L'objet d'intérêt est alors la matrice densité, et plus précisément la transformée de Wigner [74, 75]  $\rho(\vec{r}, \vec{p}, t)$  de la matrice densité  $\hat{\rho}(t)$  [76]. Comme le Hamiltonien, la matrice densité est une matrice  $2 \times 2$  que nous pouvons décomposer en

$$\rho(\vec{r}, \vec{p}, t) = \begin{pmatrix} \rho_{\uparrow\uparrow} & \rho_{\uparrow\downarrow} \\ \rho_{\downarrow\uparrow} & \rho_{\downarrow\downarrow} \end{pmatrix} = f(\vec{r}, \vec{p}, t) \mathbb{1} + \vec{M}(\vec{r}, \vec{p}, t) \cdot \vec{\sigma} \quad (2.13)$$

$f(\vec{r}, \vec{p}, t)$  représente la densité de particules en un point donné de l'espace des phases, tandis que  $\vec{M}(\vec{r}, \vec{p}, t)$  représente la densité de spin au point  $(\vec{r}, \vec{p})$  à l'instant  $t$ . Expérimentalement, nous ne pouvons pas accéder directement ni à  $f(\vec{r}, \vec{p}, t)$ , ni à  $\vec{M}(\vec{r}, \vec{p}, t)$ , mais seulement à ces quantités intégrées sur l'impulsion :

$$n(\vec{r}, t) = \int_p f(\vec{r}, \vec{p}, t) d^3\vec{p} \quad (2.14)$$

$$\vec{m}(\vec{r}, t) = \int_p \vec{M}(\vec{r}, \vec{p}, t) d^3\vec{p} \quad (2.15)$$

qui correspondent aux la densités locales de particules et de spin.

Le nombre total d'atomes dans le piège et le spin total sont aussi accessibles expérimentalement et valent respectivement

$$N_{at}(t) = \int_r n(\vec{r}, t) d^3\vec{r} \quad (2.16)$$

$$\vec{s}(t) = \int_r \vec{m}(\vec{r}, t) d^3\vec{r} \quad (2.17)$$

À ce stade, le nombre total d'atomes piégés ne dépend pas du temps ; en l'absence d'interactions, les atomes piégés initialement restent piégés tout au long de leur dynamique.

Les équations de la dynamique dans l'espace des phases sont obtenues en prenant la transformée de Wigner de l'équation d'Heisenberg pour  $\hat{\rho}$ . L'approximation habituelle consiste à traiter le mouvement orbital de manière semi-classique<sup>1</sup> et à réaliser une expansion en gradients [76]. Au premier ordre de cette expansion nous obtenons

$$\frac{d}{dt}\rho + \frac{\vec{p}}{m} \cdot \vec{\nabla}_{\vec{r}}\rho - \frac{1}{2} \left\{ \vec{\nabla}_{\vec{p}}\rho, \vec{\nabla}_{\vec{r}}V(\vec{r}) \right\} - \frac{1}{i\hbar} [\rho, V(\vec{r})] = 0 \quad (2.18)$$

avec  $V(\vec{r}) = U(\vec{r})\mathbb{1} + \frac{1}{2}\vec{W}(\vec{r}) \cdot \vec{\sigma}$ . En utilisant  $f$  et  $\vec{M}$ , introduits précédemment, l'équation décrivant la dynamique dans l'espace des phases a donc la forme

$$\partial_t f + \frac{\vec{p}}{m} \cdot \vec{\nabla}_{\vec{r}}f - \vec{\nabla}_{\vec{r}}U(\vec{r}) \cdot \vec{\nabla}_{\vec{p}}f + \vec{\nabla}_{\vec{r}}\vec{W}(\vec{r}) \cdot \vec{\nabla}_{\vec{p}}\vec{M} = 0 \quad (2.19)$$

$$\partial_t \vec{M} + \frac{\vec{p}}{m} \cdot \vec{\nabla}_{\vec{r}}\vec{M} - \vec{\nabla}_{\vec{r}}U(\vec{r}) \cdot \vec{\nabla}_{\vec{p}}\vec{M} - \left( \vec{W}(\vec{r}) + \vec{\nabla}_{\vec{r}}\vec{W}(\vec{r}) \cdot \vec{\nabla}_{\vec{p}}f \right) \times \vec{M} = 0 \quad (2.20)$$

Nous supposons plus tard que la densité atomique  $f(\vec{r}, \vec{p}, t)$  est égale à la densité atomique à l'équilibre, et que par conséquent, la dynamique est décrite entièrement par l'équation sur  $\vec{M}(\vec{r}, \vec{p}, t)$  et nous supposons que le gradient de  $\vec{W}$  est petit devant le gradient de  $U$ , ce qui permet de le négliger. L'inhomogénéité de  $\vec{W}$  intervient néanmoins dans le terme de précession  $\vec{W}(\vec{r}) \times \vec{M}$ . La dynamique des atomes piégés se résume à

$$\partial_t \vec{M} + \frac{\vec{p}}{m} \cdot \vec{\nabla}_{\vec{r}}\vec{M} - \vec{\nabla}_{\vec{r}}U(\vec{r}) \cdot \vec{\nabla}_{\vec{p}}\vec{M} - \vec{W}(\vec{r}) \times \vec{M} = 0 \quad (2.21)$$

## 2.2 Généralités sur l'interaction atome-atome

Afin de compléter la description de la dynamique d'atomes piégés, nous devons maintenant prendre en compte les interactions entre atomes. Nous supposons ici que, d'une part, il n'y pas d'interaction à longue portée entre eux - ces derniers sont électriquement neutres. D'autre part, les collisions entre atomes sont élastiques et la température est suffisamment basse pour que

1. Tout en continuant de traiter les degrés de liberté interne de manière quantique.

toutes les collisions aient lieu en onde  $s$  (collisions isotropes) : en l'absence d'état interne, les collisions sont caractérisées par une unique longueur nommée la longueur de collision et notée  $a$ . Cette longueur peut être de signe positif ou négatif. Pour deux atomes d'impulsions respectives  $\vec{p}_1$  et  $\vec{p}_2$  entrant en collision, la définition habituelle de la matrice de diffusion est [77]

$$T(\vec{p}_1, \vec{p}_2) = \frac{\hbar^2}{2\pi^2 m} (a - i |\vec{p}_1 - \vec{p}_2| a^2 + \dots) \quad (2.22)$$

Lorsque nous prenons en compte l'état interne des atomes (leur pseudo-spin pour les atomes à deux niveaux), alors la longueur de diffusion dépend du pseudo-spin des particules en jeu. En conséquence, il apparaît quatre longueurs de diffusions,  $a_{\uparrow\uparrow}, a_{\uparrow\downarrow}, a_t, a_d$ . La matrice de diffusion acquiert alors une forme matricielle. Dans la base  $|1 : \uparrow, 2 : \uparrow\rangle, |1 : \downarrow, 2 : \downarrow\rangle, |1 : \downarrow, 2 : \uparrow\rangle, |1 : \uparrow, 2 : \downarrow\rangle$  elle a la forme

$$T(\vec{p}_1, \vec{p}_2) = \frac{\hbar}{2\pi^2 m} \begin{pmatrix} \tilde{a}_{\uparrow\uparrow}(\vec{p}) & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \tilde{a}_{\downarrow\downarrow}(\vec{p}) & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \tilde{a}_d(\vec{p}) & \tilde{a}_t(\vec{p}) \\ 0 & 0 & \tilde{a}_t(\vec{p}) & \tilde{a}_d(\vec{p}) \end{pmatrix} \quad (2.23)$$

ou  $|1 : \alpha, 2 : \beta\rangle$  représente l'état dans lequel le premier atome est dans l'état de pseudo-spin  $\alpha$  tandis que le deuxième est dans l'état de pseudo-spin  $\beta$ ,  $\vec{p} = \vec{p}_1 - \vec{p}_2$  est l'impulsion relative des atomes entrant en collision, et  $\tilde{a}(\vec{p}) = a(\vec{p}) - i |\vec{p}| a^2(\vec{p}) + \dots$ . La longueur  $a_d$  décrit un processus de collision direct : si nous avons numéroté les atomes, ces derniers n'auraient pas changé d'état interne lors de la collision. Lors d'une collision de type transfert, décrite par  $a_t$ , les mêmes atomes numérotés auraient échangés leurs états internes. Ces processus sont décrits dans [77].

### Interactions en l'absence d'état interne

Lorsque nous négligeons la structure interne des atomes, nous avons la matrice de diffusion suivante

$$T(\vec{p}_1, \vec{p}_2) = \frac{\hbar^2}{2\pi^2 m} (a - i |\vec{p}_1 - \vec{p}_2| a^2 + \dots) \quad (2.24)$$

Lorsque les interactions sont prises en compte dans la dynamique, alors les équations décrivant la dynamique forment une hiérarchie infinie d'équations couplées dont la forme typique est

$$i\hbar \frac{d}{dt} \rho_1 + [\rho_1, H_1] = \text{tr}_2 [V_{1,2}, \rho_2] \quad (2.25)$$

$$i\hbar \frac{d}{dt} \rho_2 + [\rho_2, H_2] = \text{tr}_3 [V_{1,3} + V_{2,3}, \rho_3] \quad (2.26)$$

$$\dots \quad (2.27)$$

ou  $\rho_n$  est la matrice densité à  $n$  corps,  $H_1$  le Hamiltonien d'un atome unique piégé 2.9,  $H_2 = H_1 \otimes \mathbb{1} + \mathbb{1} \otimes H_1$  est le Hamiltonien pour deux atomes piégés sans interactions et  $V_{ij}$  est le potentiel d'interaction entre deux atomes, construit à partir des éléments de matrice de  $T$  :  $V_{ab} = \text{tr}_2$  et  $\text{tr}_3$  dénotent des traces partielles sur les atomes 2 et 3, respectivement. Il est possible de travailler de manière numérique à partir de ces équations [78].

Il est nécessaire de tronquer cette hiérarchie d'équations afin de pouvoir l'intégrer dans l'équation de la dynamique sans interactions 2.21. Les méthodes les plus connues sont l'ansatz d'Yvon-Snyder [79, 80] et l'ansatz de la matrice  $S$ , mais d'autres méthodes, basées sur l'équation de Bloch optique existent et permettent également de prendre en compte les collisions [81].

Nous utilisons ici les travaux de Lhuillier et Laloë [14], basés sur l'ansatz de la matrice  $S$ . Ils nous fournissent l'effet des interactions en l'absence d'états internes. Les approximations demandées par cette méthode sont

- l'absence de corrélations entre les atomes entrant en collisions : entre deux collisions successives d'une même paire d'atomes, ces derniers sont soumis individuellement à suffisamment d'autres collisions,
- les collisions sont suffisamment espacées dans le temps pour que les atomes entrant en collision puissent être considérés comme étant dans les états de diffusions entrant (avant la collision) et sortant (après la collision), les collisions entre trois atomes ou plus sont donc rares,
- une approximation de temps de relaxation pour simplifier les termes faisant intervenir le carré de la longueur de diffusion. Ces termes apparaissent sous la forme d'une intégrale de collision qui se simplifie en utilisant le temps de relaxation :  $\tau = \frac{3\sqrt{\pi}}{8} \frac{1}{4\pi a^2 n v_T}$  ( $a$  est la section efficace<sup>2</sup>,  $n$  est la densité du gaz et  $v_T$  la vitesse thermique des atomes) [82]

### 2.3 Interactions atome-atome pour des atomes à deux niveaux

Lorsque deux atomes sont indiscernables, donc de pseudo-spin identiques, les états initiaux et finaux doivent obéir aux règles de l'indiscernabilité quantique régissant les bosons ou les fermions. La symétrie ou l'antisymétrie requise lors de l'échange des particules conduit à une amélioration ou à une suppression des canaux de collision  $\uparrow\uparrow$  et  $\downarrow\downarrow$ , soumis aux règles d'indiscernabilité, par rapport aux canaux  $\uparrow\downarrow$  et  $\downarrow\uparrow$  qui n'y sont pas soumis. Cet effet, nommé effet de rotation des spins identiques à été introduit par Lhuillier et Laloë [14] et confirmé par plusieurs expériences soit en étudiant directement le processus de collision de manière microscopique [83], soit de manière macroscopique via l'effet d'auto-synchronisation [15, 84].

Les collisions viennent modifier la dynamique de spin via le potentiel effectif

$$V^c(\vec{r}, t) = U^c(\vec{r}, t)\mathbb{1} + \vec{W}^c(\vec{r}, t) \cdot \vec{\sigma} = \begin{pmatrix} (1 + \epsilon) g_{\uparrow\uparrow}\rho_{\uparrow\uparrow} + g_{\uparrow\downarrow}\rho_{\downarrow\downarrow} & \epsilon g_{\uparrow\downarrow}\rho_{\uparrow\downarrow} \\ \epsilon g_{\uparrow\downarrow}\rho_{\uparrow\downarrow} & (1 + \epsilon) g_{\downarrow\downarrow}\rho_{\downarrow\downarrow} + g_{\downarrow\uparrow}\rho_{\uparrow\uparrow} \end{pmatrix} \quad (2.28)$$

2. Cette approximation reste valable lorsque les atomes possèdent une structure interne à deux niveaux, dans le cas où les quatre sections efficaces  $a_{\uparrow\uparrow}$ ,  $a_{\downarrow\downarrow}$ ,  $a_t$  et  $a_d$  sont approximativement égales

où  $\epsilon = 1$  pour les bosons et  $-1$  pour les fermions et  $g_{\uparrow\uparrow}, g_{\downarrow\downarrow}, g_{\uparrow\downarrow}$  et  $g_{\downarrow\uparrow}$  sont reliés à la longueur de diffusion via  $g_{aa} = 4\pi \frac{\hbar^2 a_{aa}}{m}$  et  $g_{\uparrow\downarrow} = g_{\downarrow\uparrow} = 4\pi \frac{\hbar^2 (a_d + \epsilon a_t)}{m}$ . Il est important de noter que ce potentiel dépend uniquement du temps  $t$  et de la position  $\vec{r}$  : il ne dépend pas de l'impulsion  $\vec{p}$ . Les éléments de la matrice densité  $\rho_{\alpha\beta}$  qui apparaissent sont les éléments de la matrice  $\rho(\vec{r}, t)$ .

Ce potentiel vient modifier l'équation de la dynamique 2.21 au travers des termes

- $-\vec{\nabla}_{\vec{r}} U^c(\vec{r}, t) \cdot \vec{\nabla}_{\vec{p}} \vec{M}$  qui constitue une modification du potentiel de piégeage effectif,
- $-\vec{\nabla}_{\vec{r}} \cdot \vec{\nabla}_{\vec{p}} f$ , qui sera négligé car c'est un terme en gradient de  $\vec{W}^c$ , supposé petit devant les gradients de  $U$ ,
- $-\frac{2\Delta U^c(\vec{r}, t)}{\hbar} \times \vec{M}$  qui est une modification du champ Zeeman effectif  $\vec{W}$

Il convient également d'ajouter l'approximation de temps de relaxation sous la forme de  $\frac{\vec{M} - \vec{M}^{eq}}{\tau}$  dans le membre de droite de l'équation 2.21.

L'équation de la dynamique devient

$$\begin{aligned} \partial_t \vec{M} + \frac{\vec{p}}{m} \cdot \vec{\nabla}_{\vec{r}} \vec{M} - \vec{\nabla}_{\vec{r}} (U(\vec{r}) + U^c(\vec{r}, t)) \cdot \vec{\nabla}_{\vec{p}} \vec{M} - \vec{\nabla}_{\vec{r}} \vec{W}^c(\vec{r}, t) \cdot \vec{\nabla}_{\vec{p}} f \\ - \left( \vec{W}(\vec{r}) + \frac{2\vec{W}^c(\vec{r}, t)}{\hbar} \right) \times \vec{M} = \frac{\vec{M} - \vec{M}^{eq}}{\tau} \end{aligned} \quad (2.29)$$

où  $U^c$  est la contribution des collisions au terme de type potentiel scalaire de l'équation 2.21. Son expression complète est

$$U^c(\vec{r}, t) = \left( \frac{1 + \epsilon}{2} (g_{\downarrow\downarrow} + g_{\uparrow\uparrow}) + g_{\uparrow\downarrow} \right) \frac{n(r, t)}{4} + \frac{1 + \epsilon}{2} (g_{\uparrow\uparrow} - g_{\downarrow\downarrow}) \frac{m_z(r, t)}{4} \quad (2.30)$$

$\vec{W}^c$  est la contribution de type potentiel vecteur (le champ Zeeman différentiel, qui avait la forme  $\vec{W} = \Delta U \vec{z}$  dans 2.21). Il a pour expression

$$\vec{W}^c(\vec{r}, t) = \frac{\hbar}{2} \frac{1 + \epsilon}{2} \left( (g_{\uparrow\uparrow} - g_{\downarrow\downarrow}) \frac{n(\vec{r}, t)}{2} + (g_{\uparrow\uparrow} + g_{\downarrow\downarrow} - 2g_{\uparrow\downarrow}) \frac{m_z(\vec{r}, t)}{2} \right) \vec{z} + \epsilon \frac{g_{\uparrow\downarrow}}{4} \vec{m}(\vec{r}, t) \quad (2.31)$$

Nous pouvons donc interpréter l'effet des collisions via deux contributions : une contribution modifie le potentiel de piégeage effectif, c'est le terme  $U^c(r)$ . En fonction de son signe, les atomes sont attirés ou repoussés par les zones de forte densité et les zones fortement polarisées [76]. La deuxième contribution est une contribution au champ magnétique effectif à l'intérieur du piège, dont une partie s'ajoute (ou se soustrait) au champ Zeeman différentiel créé par le piège. Lorsqu'il se soustrait, cet effet est connu sous le nom de resserrement spectral du aux collisions (*collisionnal spectral narrowing*, en anglais) [85].

### Atomes bosoniques

Lorsque nous travaillons avec des atomes dont la statistique est bosonique, alors la forme du champ moyen décrivant l'effet des collisions est

$$V^c(\vec{r}, t) = U^c \mathbb{1} + \vec{W}^c \cdot \vec{\sigma} = \begin{pmatrix} 2g_{\uparrow\uparrow}\rho_{\uparrow\uparrow} + g_{\uparrow\downarrow}\rho_{\downarrow\downarrow} & g_{\uparrow\downarrow}\rho_{\uparrow\downarrow} \\ g_{\uparrow\downarrow}\rho_{\uparrow\downarrow} & 2g_{\downarrow\downarrow}\rho_{\downarrow\downarrow} + g_{\uparrow\downarrow}\rho_{\uparrow\uparrow} \end{pmatrix} \quad (2.32)$$

Nous observons donc que les collisions entre atomes ajoutent un terme de champ moyen qui se comporte comme un champ Zeeman. Dans la direction  $\vec{z}$  où un champ Zeeman lié au piège dipolaire est déjà présent, le champ Zeeman supplémentaire vaut

$$W_{z,b}^c(\vec{r}, t) = \vec{W}^c \cdot \vec{z} = \frac{1}{2} (2(g_{\uparrow\uparrow}\rho_{\uparrow\uparrow} - g_{\uparrow\downarrow}\rho_{\downarrow\downarrow}) + g_{\uparrow\downarrow}(\rho_{\downarrow\downarrow} - \rho_{\uparrow\uparrow})) \approx \frac{g}{2} (\rho_{\uparrow\uparrow} - \rho_{\downarrow\downarrow}) \quad (2.33)$$

où  $g \approx g_{\uparrow\uparrow} \approx g_{\downarrow\downarrow} \approx g_{\uparrow\downarrow}$  pour le Rubidium 87. Avec cette approximation, la forme simplifiée du potentiel  $\vec{W}$  est

$$\vec{W}^c(\vec{r}, t) = 4\pi \frac{a}{m} \vec{m}(\vec{r}, t) \quad (2.34)$$

### Atomes fermioniques

La forme du champ moyen de l'effet de rotation des spin identiques pour des atomes de type fermioniques est

$$V^c(\vec{r}, t) = U^c \mathbb{1} + \vec{W}^c \cdot \vec{\sigma} = \begin{pmatrix} g_{\uparrow\downarrow}\rho_{\downarrow\downarrow} & -g_{\uparrow\downarrow}\rho_{\uparrow\downarrow} \\ -g_{\uparrow\downarrow}\rho_{\uparrow\downarrow} & g_{\uparrow\downarrow}\rho_{\uparrow\uparrow} \end{pmatrix} \quad (2.35)$$

Dans la direction  $\vec{z}$ , le champ Zeeman supplémentaire vaut

$$W_{z,f}^c(\vec{r}, t) = \vec{W}^c \cdot \vec{z} = \frac{1}{2} (g_{\uparrow\downarrow}(\rho_{\downarrow\downarrow} - \rho_{\uparrow\uparrow})) = -W_{z,b}^c \quad (2.36)$$

Dans le cas des fermions, la contribution de ce champ moyen est simplement de signe opposé au cas bosonique lorsque les longueurs de diffusion  $g_{\uparrow\uparrow}, g_{\downarrow\downarrow}, g_{\uparrow\downarrow}$  sont approximativement égales.

## 2.4 Perte de cohérence

Jusqu'à présent, nous avons traduit sous la forme d'une équation décrivant l'évolution de la transformée de Wigner de la matrice densité d'un gaz de Rubidium 87 placé dans un piège dipolaire à une température et une densité suffisamment basses de sorte à ce que les collisions aient majoritairement lieu en onde  $s$ . Dans cette section, nous décrivons brièvement les autres phénomènes auxquels ce gaz est soumis, ainsi que leur effet sur la dynamique de la matrice

densité, afin de pouvoir, dans la suite, écrire une équation exhaustive décrivant la dynamique d'un gaz d'atomes ultra-froid.

Dans les paragraphes précédents, nous avons décrit deux mécanismes qui peuvent s'apparenter à de la perte de cohérence : la précession de Larmor, qui est reliée à la présence d'un champ Zeeman différentiel inhomogène à l'échelle du gaz. Cet effet rentre dans la catégorie des déphasages (pertes de cohérence) réversibles, puisque nous pourrions, en modifiant la champ Zeeman, inverser la dynamique de la précession et retourner dans l'état initial. Le deuxième mécanisme de perte de cohérence que nous avons décrit rentre dans la catégorie des déphasage irréversibles : c'est le terme de champ moyen provenant de l'effet de rotation des spins identiques. Provenant d'une interaction, le terme de champ moyen se traduit par un terme quadratique en la matrice densité. A priori, il n'est pas possible de manipuler le système afin d'inverser la dynamique.

### Pertes atomiques

Dans les expériences d'atome froid typiques, le gaz est confiné dans une chambre soumise à un vide allant de  $10^{-1}$  à  $10^{-13}$  Bar : l'enceinte de confinement est donc remplie d'un gaz résiduel qui n'est ni piégé, ni refroidi. Ainsi, l'énergie cinétique des particules du gaz résiduel est très largement supérieure à l'énergie nécessaire à donner aux atomes refroidis pour que ceux-ci s'échappent du piège : une collision entre un atome piégé et une particule du gaz résiduel conduit donc à l'expulsion de l'atome du piège. Ces collision causent donc une perte nette d'atomes, qui peut être décrite par l'équation

$$\frac{d}{dt}\rho = -\kappa\rho \quad (2.37)$$

$\kappa$  dépend des densités respectives du gaz résiduel et du gaz piégé [86]. D'autres mécanismes, comme les collisions entre un atome excité et un atome dans l'état fondamental peuvent également causer une pertes d'atomes dans le piège [87]. Les auteurs de [88, 89] rapportent que cet effet peut parfois être important. Dans tous les cas, les effets s'apparentant à des pertes atomiques pris en compte par le paramètre  $\kappa$  qui peut alors dépendre de l'intensité lumineuse des laser de piégeage ainsi que de la densité atomique.

### Relaxation du pseudo-spin

Un deuxième mécanisme touchant les populations intervient dans le système : l'émission spontanée. Via ce processus, un atome dont le pseudo-spin est dans une superposition des deux états hyperfins  $|F = 1\rangle$  et  $|F = 2\rangle$  peut relaxer vers l'état  $|F = 1\rangle$ , conduisant à une diminution des termes de cohérence. Cette relaxation est décrite par le terme de décohérence

$$\frac{d}{dt}\rho_{\uparrow\downarrow} = -\frac{\Gamma_{sp}}{2}\rho_{\uparrow\downarrow} \text{ et } \frac{d}{dt}\rho_{\uparrow\uparrow} = -\frac{d}{dt}\rho_{\downarrow\downarrow} = -\Gamma_{sp}\rho_{\uparrow\uparrow} \quad (2.38)$$

Il est intéressant de noter que le taux de relaxation par émission spontanée des termes de cohérence est la moitié du taux de relaxation des termes de population [72].

Comme ce mécanisme a des effets opposés pour chacune des populations, en prenant en compte les pertes atomiques, le système est alors soumis à des pertes différentielles pour chacun des deux pseudo-spin. Ces pertes différentielles sont décrites par

$$\frac{d}{dt}\rho_{\uparrow\uparrow} = -(\kappa + \Gamma_{sp})\rho_{\uparrow\uparrow} \quad (2.39)$$

$$\frac{d}{dt}\rho_{\downarrow\downarrow} = -(\kappa - \Gamma_{sp})\rho_{\downarrow\downarrow} \quad (2.40)$$

Les pertes atomiques différentielles jouent un rôle important et leur description est nécessaire afin d'obtenir un accord quantitatif avec les expériences.

### Expressions dans l'espace des phases

En terme de la densité de spin  $\vec{M}(\vec{r}, \vec{p}, t)$ , les équations 2.37, 2.38 écrites dans les sections précédentes prennent la forme

$$\left. \frac{d}{dt}\vec{M}(\vec{r}, \vec{p}, t) \right|_{pertes} = -\Gamma_{sp}\vec{M}(\vec{r}, \vec{p}, t) - \Gamma_{sp}f(\vec{r}, \vec{p}, t)\vec{z} - (\kappa - \Gamma_{sp})M_z(\vec{r}, \vec{p}, t)\vec{z} \quad (2.41)$$

Si nous préparons les spins dans le plan équatorial de la sphère de Bloch, où  $M_z(\vec{r}, \vec{p}, t) = 0$ , alors en l'absence d'émission spontanée (équation 2.38), ces derniers y restent, malgré les pertes atomiques. En présence d'émission spontanée, la projection du spin selon la direction  $\vec{z}$  tend vers

$$M_z(\vec{r}, \vec{p}, t) \rightarrow \frac{\Gamma_{sp}}{\Gamma_{sp} - \kappa}f(\vec{r}, \vec{p}, t) \quad (2.42)$$

$$m_z(\vec{r}, t) \rightarrow \frac{\Gamma_{sp}}{\Gamma_{sp} - \kappa}n(\vec{r}, t) \quad (2.43)$$

La composante selon  $\vec{z}$  du spin est alors proportionnelle à la densité atomique dans le piège.

## 2.5 Dynamique d'un gaz d'atomes de $^{87}\text{Rb}$ dans un piège dipolaire

Dans cette partie, nous écrivons l'équation qui régit la dynamique d'atomes de Rubidium 87 dans un piège dipolaire, dans le régime dilué (dit de Knudsen).

Les atomes sont décrits comme portant un pseudo-spin 1/2 provenant de la structure hyperfine du niveau  $5^2S_{1/2}$ . Ces spins sont soumis à un potentiel de piégeage moyen  $U(\vec{r})$ , ainsi qu'à un potentiel de piégeage différentiel  $\vec{W} = \Delta U(\vec{r})\vec{z} = (U_2(\vec{r}) - U_1(\vec{r}))\vec{z}$  qui peut être vu comme un champ Zeeman inhomogène orienté dans la direction  $\vec{z}$  de la sphère de Bloch et est donc responsable d'une précession de Larmor. Le mouvement orbital et la dynamique des spins est

affectée par les collisions atome-atome qui sont décrites par quatre longueurs  $a_{11}, a_{22}, a_d$  et  $a_t$ , qui pour le Rubidium 87 sont égales à quelques pourcent près. Ces collisions produisent trois effets : une modification effective du potentiel de piégeage, l'apparition de l'effet de rotation des spins identiques et finalement, les collision latérales, inélastiques<sup>3</sup>, donnent lieu à un temps de relaxation  $\tau$ .

Nous avons vu dans les sections précédentes que les équations de la dynamique dans l'espace sont données par la transformée de Wigner de l'équation d'évolution de la matrice densité. Quand nous décomposons la transformée de Wigner de la matrice densité en une densité de particules  $f$  et une densité de spin  $\vec{M}$

$$\rho(\vec{r}, \vec{p}, t) = f(\vec{r}, \vec{p}, t)\mathbb{1} + \vec{M}(\vec{r}, \vec{p}, t) \cdot \vec{\sigma} \quad (2.44)$$

Les équations pour  $f$  et pour  $\vec{M}$  peuvent être découplées et prennent la forme de l'équation 2.29

$$\partial_t f + \frac{\vec{p}}{m} \cdot \vec{\nabla}_{\vec{r}} f - \vec{\nabla}_{\vec{r}}(U(\vec{r}) + U^c(\vec{r})) \cdot \vec{\nabla}_{\vec{p}} f \approx -\frac{1}{\tau} (f - f^{eq}) \quad (2.45)$$

$$\partial_t \vec{M} + \frac{\vec{p}}{m} \cdot \vec{\nabla}_{\vec{r}} \vec{M} - \vec{\nabla}_{\vec{r}}(U(\vec{r}) + U^c(\vec{r})) \cdot \vec{\nabla}_{\vec{p}} \vec{M} - \left( \vec{W}(\vec{r}) + 4\pi \frac{a_t}{m} \vec{m} \right) \times \vec{M} \approx -\frac{1}{\tau} \left( \vec{M} - \vec{M}^{eq} \right) \quad (2.46)$$

Ces équations peuvent être simplifiées dans certaines conditions afin de mettre en évidence les différentes grandeurs qui régissent les différents régimes de la dynamique dans le piège.

### Piège harmonique et piège unidimensionnel

Dans le cas d'un piège harmonique, ce qui est le cas pour les pièges générés par des laser gaussiens (où les modes de Laguerre différent de zéro sont absents), alors le potentiel à la forme

$$U(\vec{r}) = \frac{1}{2}m\omega_x^2 x^2 + \frac{1}{2}m\omega_y^2 y^2 + \frac{1}{2}m\omega_z^2 z^2 \quad (2.47)$$

où  $\omega_{x,y,z}$  sont les fréquences associées au piège dans les directions respectives  $x, y$  et  $z$ . Dans le cas où l'une des trois fréquences de piégeage ( $\omega_x$ ) est très faible devant  $\frac{k_B T}{\hbar}$  tandis que les deux autres ( $\omega_y, \omega_z$ ) sont grandes devant  $\frac{k_B T}{\hbar}$ , alors les degrés de liberté dans les directions  $y$  et  $z$  sont gelés. Ce type de configuration de piège est appelé piège unidimensionnel. En fixant les variables de position  $y$  et  $z$  et les impulsions associées à ces directions à zéro, l'équation de

---

3. Ces collisions sont inélastiques dans le sens où l'énergie totale orbitale des deux atomes est conservée mais pour chaque atome pris individuellement, l'énergie orbitale n'est pas conservée. Il ne faut pas confondre ce type de collisions inélastiques avec celui habituel en physique atomique où c'est l'état interne des atomes qui est modifié.

la dynamique 2.46 se réécrit

$$\partial_t f + \frac{p_x}{m} \partial_x f - m\omega_x^2 x \partial_{p_x} f \approx -\frac{1}{\tau} (f - f^{eq}) \quad (2.48)$$

$$\partial_t \vec{M} + \frac{p_x}{m} \partial_x \vec{M} - m\omega_x^2 x \partial_{p_x} \vec{M} - \left( \vec{W}(x) + 4\pi \frac{a_t}{m} \vec{m} \right) \times \vec{M} \approx -\frac{1}{\tau} \left( \vec{M} - \vec{M}^{eq} \right) \quad (2.49)$$

Dans de tels pièges, la densité de particules suit la loi gaussienne pour un gaz sans interaction piégé dans un potentiel harmonique à l'équilibre thermique

$$f(x, p_x, t) = f^{eq}(x, p_x, t) = n(x) \exp\left(-\frac{1}{2} \frac{p_x^2}{mk_B T}\right), \quad n(x) = n_0 \exp\left(-\frac{1}{2} \frac{m\omega_x^2 x^2}{k_B T}\right) \quad (2.50)$$

avec  $n_0$  la densité au centre du piège. Cette distribution est confirmée par les expériences.

La totalité de la dynamique de spin est donc régie par l'équation qui gouverne  $\vec{M}$ . Afin de mettre en évidence les différences échelles de temps intervenant dans la dynamique de  $\vec{M}$ , nous introduisons  $x_T = \sqrt{\frac{k_B T}{m\omega_x^2}}$  l'extension spatiale typique associée à un gaz dans un piège harmonique à température  $T$  et  $p_T = \sqrt{mk_B T}$  l'impulsion typique des particules de ce gaz. Il devient possible d'adimensionner l'espace des phases via  $\frac{x}{x_T} \rightarrow x$ ,  $\frac{p_x}{p_T} \rightarrow p_x$ . Il est également possible d'adimensionner la distribution de spin via

$$\vec{M}(x, p_x, t) = f(x, p_x, t) \vec{S}(x, p_x, t) \quad (2.51)$$

$$\vec{m}(x, t) = n(x) \vec{s}(x, t) \quad (2.52)$$

de sorte à ce que la relation la relation entre  $\vec{m}$  et  $\vec{M}$  se traduise par

$$\vec{m}(x, t) = \int_{p_x} \vec{M}(x, p_x, t) dp_x \rightarrow \vec{s}(x, t) = \int_p \exp\left(-\frac{1}{2} p_x^2\right) \vec{S}(x, p_x, t) \quad (2.53)$$

Après avoir effectué ces transformations, l'équation 2.48 devient

$$\partial_t \vec{S} + \omega_x (p \partial_x - x \partial_{p_x}) \vec{S} - \left( \vec{W}(x) + \Omega_{ex}(x) \vec{s} \right) \times \vec{S} \approx -\frac{1}{\tau} \left( \vec{S} - \vec{S}^{eq} \right) \quad (2.54)$$

avec  $\Omega_{ex} = 4\pi \frac{a_t}{m} n(x)$ . Lorsque le membre de droite est absent, c'est à dire en l'absence de collision inélastique et des autres phénomènes de perte de cohérence, alors la dynamique de  $\vec{S}$  est la dynamique d'un ensemble de spins classiques en interaction.

Dans cette dernière équation, nous pouvons noter l'apparition de quatre fréquences caractéristiques :  $\omega_x, W_z(0), \Omega_{ex}(0)$  et  $\frac{1}{\tau}$ . La relation entre ces différentes fréquences conduit aux différents régimes de la dynamique des spins dans le piège.

### Piège harmonique tridimensionnel

Lorsque le confinement du piège est faible devant la température dans les trois directions de l'espace ( $\hbar\omega_x \approx \hbar\omega_y \approx \hbar\omega_z \ll k_B T$ ), alors l'équation adimensionnée de la dynamique contient les termes de transport supplémentaires

$$\omega_y (p_y \partial_y - y \partial_{p_y}) \vec{S} \quad (2.55)$$

$$\omega_z (p_z \partial_z - z \partial_{p_z}) \vec{S} \quad (2.56)$$

qui introduisent deux nouvelles échelles de fréquence par rapport à la dynamique à une dimension. Les quantités  $n(x, y, z)$ ,  $W_z(x, y, z)$  et  $\Omega_{ex}(x, y, z)$  deviennent également inhomogènes dans l'espace.

## 2.6 Dynamique dans l'espace énergie-angle

L'équation 2.46 décrit de manière précise la dynamique d'un gaz d'atomes froids piégés. Sa forme complexe ne permet pas d'isoler les conséquences des phénomènes physiques en jeu ni de mettre en évidence les différents régimes qu'elle présente. Dans le cadre du piège harmonique unidimensionnel, en dressant un parallèle avec l'approximation hydrodynamique, valide lorsque les collisions latérales sont suffisamment fréquentes pour rendre la variable impulsion aléatoire, nous introduisons dans cette section la représentation action-angle de l'espace des phases. Dans cette représentation, nous ferons l'hypothèse que la variable angle est le pendant de l'impulsion pour l'approximation hydrodynamique, nous permettant alors de simplifier l'équation 2.54.

Dans le cas où  $\frac{1}{\tau}$  est très faible devant les autres fréquences caractéristiques, alors la dynamique tombe dans la catégorie du régime de Knudsen (régime sans collisions). Dans ce régime les collisions latérales sont rares et dans un premier temps, nous pouvons les négliger totalement. L'énergie orbitale des atomes est alors conservée et leur trajectoire suit donc les courbes iso-énergie dans l'espace des phases. Lorsque ces trajectoires sont périodiques, comme c'est le cas pour les potentiels séparables (pour lesquels  $U(x, y, z) = U_x(x) + U_y(y) + U_z(z)$ , tels les pièges harmoniques), elles peuvent être décrites par les variables action  $J$  et angle  $\alpha$  telles que

$$J = \oint p_x dx \quad \text{et} \quad \alpha(t) = \omega(E)t = \partial_J E(J)t \quad (2.57)$$

La variable action n'est pas une variable dynamique, c'est une constante du mouvement. Elle ne dépend pas du temps, et permet d'indexer les trajectoires. Dans le cas d'un piège harmonique, énergie et action sont proportionnels  $E(J) \propto J$  et nous parlerons indifféremment d'énergie ou d'action. Dans les cas les plus généraux (lorsque le système reste intégrable), il existe toujours un lien entre  $E$  et  $J$ . Dans la suite du manuscrit nous emploierons systématiquement l'énergie  $E$ .

### Équation de la dynamique dans l'espace énergie-angle

Nous allons donc ré-écrire l'équation de la dynamique dans l'espace énergie-angle. Comme la seule variable dynamique est  $\alpha(t)$ , l'angle intervient donc pour le terme de transport. Nous avons

$$\omega_x(p\partial_x - x\partial_{p_x}) \rightarrow \omega(E)\partial_\alpha \quad (2.58)$$

La difficulté réside dans le lien qui permet de passer de  $J, \alpha$  à  $x, p_x$  afin de transformer les termes de précession de Larmor et d'échange. Dans un piège harmonique unidimensionnel,  $J(E) = E$  et  $\omega(E) = \omega_x$  est la fréquence même du piège. Ainsi le lien entre  $E, \alpha$  et  $x, p_x$  est

$$x(t) = \sqrt{2E} \cos \alpha(t) \text{ et } p_x(t) = -\sqrt{2E} \sin \alpha(t) \quad (2.59)$$

Une fonction quelconque  $u(x, p_x, t)$  peut se réécrire en fonction des coordonnées action-angle

$$u(E, \alpha, t) \equiv u(x(E, \alpha), p_x(E, \alpha, t), t) = u\left(\sqrt{2E} \cos \alpha(t), -\sqrt{2E} \sin \alpha(t), t\right) \quad (2.60)$$

Le terme d'échange dans 2.54 représente une interaction locale dans l'espace réel dont l'expression est un produit de la forme  $w(x, p_x, t) = \int u(x, p'_x, t)v(x, p_x, t)dp'_x$ , qui se transforme selon

$$w(E, \alpha, t) = \int \int K(E, \alpha, E', \alpha') u(E', \alpha', t)v(E, \alpha, t) dE'd\alpha' \quad (2.61)$$

avec pour noyau

$$K(E, \alpha, E', \alpha') = \frac{\Theta(E' - E \cos^2 \alpha)}{\sqrt{2}\sqrt{E' - E \cos^2 \alpha}} \delta\left(\alpha' - \arccos \sqrt{\frac{E}{E'}} \cos \alpha\right) \quad (2.62)$$

où  $\Theta$  est la fonction de Heaviside. Une interaction locale dans l'espace position-impulsion n'est plus locale dans l'espace énergie-angle.

Nous pouvons maintenant écrire l'équation de la dynamique en utilisant les nouvelles variables  $E, \alpha$

$$(\partial_t - \omega(E)\partial_\alpha) \vec{S}(E, \alpha, t) - \vec{W}(E, \alpha) \times \vec{S}(E, \alpha, t) \quad (2.63)$$

$$- \frac{\Omega_{ex}}{2\pi} \int e^{-E} K(E, \alpha, E', \alpha') \vec{S}(E', \alpha', t) \times \vec{S}(E, \alpha, t) dE'd\alpha' = 0 \quad (2.64)$$

Pour un potentiel harmonique,  $\vec{W}(E, \alpha) = \Delta_0(E) \cos^2 \alpha \vec{z}$ . Nous observons alors que la forme du terme de transport se trouve simplifiée, tandis que la forme du terme d'échange provenant des collisions élastiques et de l'effet de rotation des spin identiques se trouve complexifiée. En effet, dans la représentation action-angle, ce terme n'est local ni pour la variable action ni pour la variable angle, alors qu'il est local en position dans l'espace position-impulsion.

### Moyenne sur la variable angle

Dans le régime hydrodynamique où les collisions inélastiques sont fréquentes, il est habituel de faire l'approximation (dite hydrodynamique) que la variable impulsion est une variable évoluant rapidement et aléatoirement du fait des collisions, tandis que la variable position évolue lentement. Il est alors possible de moyenner les équations de la dynamique vis-à-vis de la variable rapide afin d'obtenir l'équation du fluide dans l'approximation hydrodynamique.

Ici, dans le régime de Knudsen, la variable action évolue lentement par rapport à la variable angle, du fait de l'absence des collisions changeant l'énergie. Nous pouvons donc faire le parallèle avec l'approximation hydrodynamique et moyenner les équations de la dynamique par rapport à la variable angle. Cette approximation est justifiée tant que la fréquence du mouvement harmonique est grande devant la fréquence des collisions inélastiques. Nous allons donc nous intéresser aux quantités moyennées sur l'angle, via

$$\vec{S}(\mathbf{E}, t) = \int \vec{S}(\mathbf{E}, \alpha, t) \frac{d\alpha}{2\pi}, \dots \quad (2.65)$$

Il est facile de montrer que la moyenne sur  $\alpha$  du terme de transport est zéro car le mouvement est périodique. Moyenner les termes de précession de Larmor et d'échange est en revanche plus difficile car ces derniers ont la forme d'un produit de fonctions dépendantes de la variable angle. Nous faisons donc l'hypothèse qu'il n'y a pas de corrélations entre  $\alpha$  et  $\vec{S}(\mathbf{E}, \alpha, t)$ , et que donc les produits de la forme  $u(\mathbf{E}, \alpha, t)\vec{S}(\mathbf{E}', \alpha, t)$  se transforment en  $u(\mathbf{E}, t)\vec{S}(\mathbf{E}', t)$ . Cette hypothèse est naturelle si les collisions élastiques qui changent  $\alpha$  sont suffisamment fréquentes pour que  $\alpha$  soit une variable aléatoire. Via cette simplification, l'équation de la dynamique devient

$$\partial_t \vec{S}(\mathbf{E}, t) - \vec{W}(\mathbf{E}) \times \vec{S}(\mathbf{E}, t) - \frac{\Omega_{ex}}{\sqrt{\pi}} \int e^{-E'} K(\mathbf{E}, \mathbf{E}') \vec{S}(\mathbf{E}', t) \times \vec{S}(\mathbf{E}, t) dE' = 0 \quad (2.66)$$

avec  $W_z(\mathbf{E}) = \Delta_0 \mathbf{E}$  pour un potentiel harmonique et

$$K(\mathbf{E}, \mathbf{E}') = \int \frac{\Theta(E' - E \cos^2 \alpha) d\alpha}{\sqrt{E' - E \cos^2 \alpha}} \frac{d\alpha}{2\pi} = \frac{2\sqrt{2}}{\pi} \frac{\mathcal{K}\left(-\frac{E}{|E-E'|}\right)}{\sqrt{|E-E'|}} \quad (2.67)$$

où  $\mathcal{K}$  est l'intégrale elliptique complète du premier type. L'équation 2.66 obtenue est similaire à celle obtenue par [90], bien que la dérivation diffère.

### Approximation de portée infinie

La figure 2.2 trace la forme du noyau de l'interaction  $K(\mathbf{E}, \mathbf{E}')$  pour un piège unidimensionnel et montre clairement que cette dernière est de très longue portée dans l'espace action-angle, bien qu'elle dérive d'une interaction locale en position. Ainsi nous pouvons simplifier à nouveau

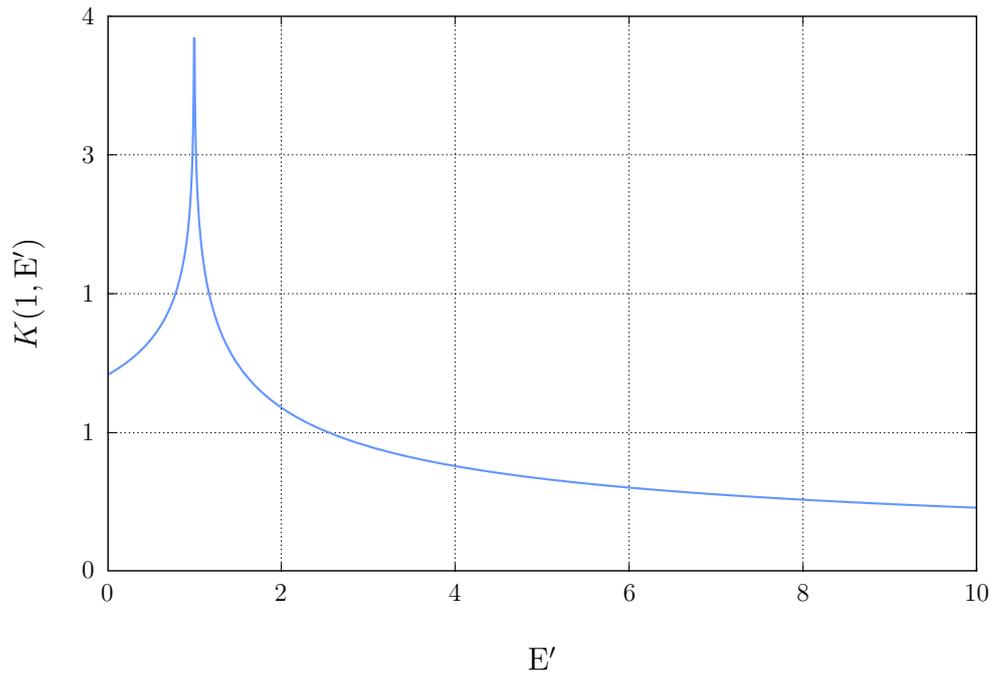


FIGURE 2.2 – Noyau  $K(1, E')$ . Comme la décroissance lente du graphe le souligne, le noyau de l'interaction est de très longue portée dans l'espace énergie. La présence d'une divergence en  $E' = 1 = E$  est attendue : en dimension une, deux atomes d'énergie orbitale identique explorent la même portion de l'espace des phases et sont donc soumis à des collisions beaucoup plus fréquemment que des atomes d'énergies distinctes.

l'équation de la dynamique en faisant l'approximation de portée infinie qui consiste à supposer que le noyau de l'interaction  $K(\mathbf{E}, \mathbf{E}') = K_\infty$  est une constante

$$K_\infty = \int_{\mathbf{E}} \int_{\mathbf{E}'} e^{-\mathbf{E}} e^{-\mathbf{E}'} K(\mathbf{E}, \mathbf{E}') = \sqrt{\pi} \quad (2.68)$$

L'équation de la dynamique peut alors être simplifiée

$$\partial_t \vec{S}(\mathbf{E}, t) - \left( \Delta U(\mathbf{E}) \vec{z} + \omega_{ex} \vec{S}(t) \right) \times \vec{S}(\mathbf{E}, t) = 0 \quad (2.69)$$

avec  $\vec{S}(t) = \int g(\mathbf{E}) e^{-\mathbf{E}} \vec{S}(\mathbf{E}, t) d\mathbf{E}$  le spin moyen : il apparaît alors que l'approximation de portée infinie est une approximation de champ moyen.  $g(\mathbf{E})$  est la densité d'état à l'énergie  $\mathbf{E}$  et vaut  $g(\mathbf{E}) = 1$  en dimension 1,  $g(\mathbf{E}) = \mathbf{E}$  en dimension deux et  $g(\mathbf{E}) = \frac{1}{2} \mathbf{E}^2$  en dimension 3.

Cette simplification supplémentaire présente l'avantage que l'équation de la dynamique présente là même forme quelque soit la dimension du piège (bien que la définition de  $\vec{S}$  dépende de la dimension), en revanche, comme toutes les approximations de portée infinie, il faut s'attendre à ce que l'équation ci-dessus surestime l'effet de rotation des spins identiques sur la dynamique.

### Collisions latérales et autres sources de désynchronisation

Dans les sections précédentes, nous avons négligé le membre de droite de l'équation de la dynamique 2.54 afin de pouvoir passer de l'espace position-impulsion vers l'espace action-angle. Nous pouvons réintroduire l'effet des collisions latérales via la même procédure, c'est à dire supposer que l'action est une constante du mouvement, et faire la moyenne sur la variable angle. Le terme devient alors

$$-\frac{1}{\tau} \left( \vec{M}(x, p_x, t) - \vec{M}^{eq}(x, p_x, t) \right) \rightarrow -\frac{1}{\tau} \left( \vec{S}(\mathbf{E}, t) - \vec{S}^{eq}(\mathbf{E}, t) \right) \quad (2.70)$$

Nous faisons alors l'approximation que la distribution de spin à l'équilibre est le spin moyen du gaz, c'est à dire que  $\vec{S}^{eq}(\mathbf{E}, t) \approx \vec{S}(t)$ , afin d'obtenir la forme du membre de droite de l'équation 2.46 dans l'espace action-angle

$$-\frac{1}{\tau} \left( \vec{S}(\mathbf{E}, t) - \vec{S}(t) \right) \quad (2.71)$$

Cette approximation peut se justifier de manière phénoménologique : sous cette forme, le terme obtenu est un terme de relaxation. Les collisions latérales, en permettant aux atomes de changer leur énergie orbitale, font relaxer le spin des atomes d'énergie donnée vers le spin moyen du gaz.

Concernant les autres sources de désynchronisation (pertes atomiques, émission spontanée, ...) décrites dans les sections précédentes, l'équation 2.41 se transforme en

$$\left. \frac{d}{dt} \vec{S}(\mathbf{E}, t) \right|_{pertes} = -\gamma_{sp} \vec{S}(\mathbf{E}, t) - \gamma_{sp} n(\mathbf{E}) \vec{z} - (\kappa - \Gamma_{sp}) S_z(\mathbf{E}, t) \vec{z} \quad (2.72)$$

### Modèle à deux macro-spins

Pour illustrer de manière simple les différents régimes de l'équation 2.69 il est possible d'utiliser un modèle à deux macro-spins. Les atomes piégés peuvent être séparés en deux catégories, les atomes chauds, dont l'énergie orbitale est élevée, dont les trajectoires explorent souvent les bords du piège, et les atomes froids, dont l'énergie orbitale est faible et qui restent piégés au centre du piège.

Nous pouvons approximer les pseudo-spins de ces catégories d'atomes par deux macro-spins  $\vec{S}^+$  et  $\vec{S}^-$ , soumis à un champ Zeeman différentiel ainsi qu'à l'*ISRE*. Pour les atomes chauds, le champ Zeeman perçu est

$$W^+ = \int_{E_0}^{E_t} g(E) W_z(E) dE \quad (2.73)$$

tandis que pour les atomes froids, ce dernier est

$$W^- = \int_0^{E_0} g(E) W_z(E) dE \quad (2.74)$$

où  $g(E)$  est la densité d'atomes d'énergie  $E$ ,  $E_t$  est l'énergie cinétique maximale des atomes piégés (c'est donc la profondeur du piège) et  $E_0$  est choisi de sorte à ce que 50% des atomes aient une énergie orbitale inférieure à  $E_0$

$$\int_0^{E_0} g(E) dE = \frac{1}{2} \quad (2.75)$$

Quitte à appliquer un champ magnétique supplémentaire égal à  $-(W^- + W^+) \vec{z}$ , nous pouvons considérer que  $W^+ = -W^- = W$ .

En l'absence du terme de relaxation et des termes de pertes atomiques, la dynamique de  $\vec{S}^-$  et  $\vec{S}^+$  est alors

$$\partial_t \vec{S}^-(t) = -W \vec{z} \times \vec{S}^-(t) + \Omega_{ex} \left( \vec{S}^-(t) + \vec{S}^+(t) \right) \times \vec{S}^-(t) \quad (2.76)$$

$$\partial_t \vec{S}^+(t) = W \vec{z} \times \vec{S}^+(t) + \Omega_{ex} \left( \vec{S}^-(t) + \vec{S}^+(t) \right) \times \vec{S}^+(t) \quad (2.77)$$

Ce modèle néglige la réduction de la norme de chacun des macro-spins lié à l'inhomogénéité du champ à l'intérieur de chacun des groupes d'atomes, et il est difficile de savoir s'il a tendance à sous estimer ou à surestimer l'*ISRE* : au sein du groupe chaud l'auto-synchronisation liée à l'*ISRE* est parfaite, mais les atomes ne sont soumis qu'à l'effet des atomes du groupe froid, car la forme du terme d'échange est  $\Omega_{ex} \vec{S}^-(t) \times \vec{S}^+(t)$ .

Grâce à ce modèle simplifié, il est aisé de représenter la dynamique du système sur la sphère de Bloch. Par exemple, en l'absence du terme d'échange  $\Omega_{ex}$  lié à l'*ISRE*, les deux macro-spins précessent sur la sphère de Bloch dans des directions opposées comme présenté sur la figure 2.3.

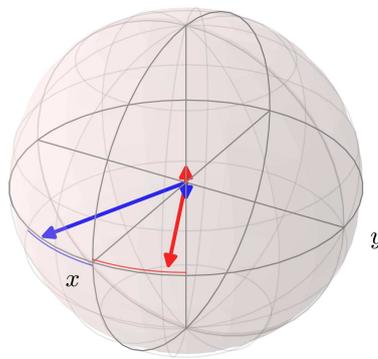


FIGURE 2.3 – Les deux macro-spins, représentés par les grandes flèches rouges et bleues, sont soumis à un champ Zeeman de signe opposé, représenté par les petites flèches rouges et bleues. S'il sont initialement préparés selon  $\vec{x}$ , alors leur trajectoire est celle notée sur cette figure et le spin total diminue avec le temps.

### 3 Expérience Forca-G

Dans cette section, nous détaillons l'expérience *ForCa-G*, réalisée par le groupe *SYRTE* à l'Observatoire de Paris. Nous nous restreignons à décrire les aspects de l'expérience qui ont une importance pour la suite de ce manuscrit, en particulier le protocole expérimental ainsi que la réalisation d'impulsions  $\pi/2$  et  $\pi$ . Les mesures que l'équipe de *ForCa-G* nous a fournies nous permettront de réaliser une comparaison expérience-théorie et fournissent une autre méthode de mesure quantitative de certains paramètres expérimentaux tels que la densité, la valeur de la longueur de diffusion, ..., et apportent une illustration des mécanismes de synchronisation dans un gaz d'atomes ultra-froids.

Le but de l'expérience *ForCa-G* est de placer une limite plus contraignante que les limites actuelles sur les déviations de la force d'interaction gravitationnelle à basse énergie et à courte portée. En plaçant le piège dipolaire à proximité d'une surface, deux forces supplémentaires sont à prendre en compte pour les atomes piégés : la force gravitationnelle s'exerçant entre les atomes et la surface, et la force de Casimir-Polder [91]. Le principe de l'expérience ForCa-G est basé sur la proposition [92], qui permet de mesurer ces deux contributions supplémentaires que sont la force gravitationnelle et le potentiel de Casimir-Polder. Finalement, en répétant l'expérience pour deux isotopes de masse différente, le  $^{87}\text{Rb}$  et le  $^{85}\text{Rb}$ , il est possible de résoudre séparément les deux contributions, et donc de mesurer l'attraction gravitationnelle entre une surface et un atome. Une telle mesure permettra de vérifier ou d'invalider le potentiel Newtonien à courte distance.

L'expérience *ForCca-G* est donc un capteur de force et sa sensibilité et sa précision sont reliées à la densité atomique dans le piège : plus cette dernière est élevée, plus la sensibilité du capteur de force est grande. Néanmoins, lorsque des densités atomiques élevées (entre  $10^{11}$  et  $10^{12}$  atomes par centimètre cube) sont réalisées par l'utilisation du refroidissement évaporatif, le phénomène d'*ISRE* commence à jouer un rôle au sein de la mesure. Il est d'autant plus important de comprendre l'effet des interactions et en particulier de l'*ISRE* que la précision de la mesure augmente avec sa durée : de long temps de cohérence sont nécessaires.

Nous allons donc étudier les mécanismes de synchronisation apparaissant dans un gaz d'atomes de Rubidium froidi. Ces mécanismes de synchronisation sont en effet les mécanismes qui permettent d'obtenir de longs temps de cohérence, et *in fine*, d'obtenir des mesures précises des grandeurs d'intérêt. Ces mécanismes sont sensibles à beaucoup d'éléments ; en particulier à la réalisation expérimentale de la mesure elle-même, ainsi qu'à la réalisation d'impulsions  $\pi$  et  $\pi/2$ . Nous allons donc détailler le protocole de mesure, les protocoles de mesure des paramètres expérimentaux non-contrôlés (densité, température, ...) ainsi que la réalisation des impulsions  $\pi$  qui permet l'obtention d'un d'écho de spin dans un but de synchronisation.

### 3.1 Protocole expérimental

#### Mesure

Le système de mesure de l'état interne des atomes est basé sur un système initialement développé pour les fontaines atomiques [93]. Lorsque la séquence interférométrique est finie, le piège est coupé, et les atomes, en chute libre pendant  $150ms$ , traversent plusieurs nappes lumineuses. En fonction de leur état interne, ces derniers émettent des photons de fluorescence qui sont détectés. L'intensité lumineuse alors recueillie est directement proportionnelle à la population de l'état interne. Cette mesure est donc soumise au bruit de projection quantique, car la mesure consiste à projeter le pseudo-spin atomique selon l'axe  $z$ , et à mesurer ensuite les populations d'atomes de pseudo-spin  $|\uparrow\rangle$  et  $|\downarrow\rangle$ . Si tous les atomes sont initialement dans l'état  $|F = 1\rangle = |\downarrow\rangle$ , alors à la fin de la séquence interférométrique, la mesure nous renseigne sur la probabilité de transition vers l'état excité

$$P_e = \frac{N_{F=2}}{N_{F=1} + N_{F=2}} \quad (2.78)$$

où  $N_{F=1}$  (respectivement  $N_{F=2}$ ) est le nombre d'atomes projetés sur  $|F = 1\rangle$  (respectivement  $|F = 2\rangle = |\uparrow\rangle$ ). Elle est soumise au bruit de projection quantique qui varie en  $1/\sqrt{N_{at}}$ , ainsi qu'à deux autres sources de bruit [73], le bruit électronique (en  $1/N_{at}$ ) et le bruit de plateau, qui ne dépend pas du nombre d'atomes.

#### Séquences interférométriques

La figure 2.4 représente le schéma d'une séquence interférométrique typique utilisée pour les mesures présentées plus tard dans ce manuscrit. Il est important de noter que la détection a toujours lieu à  $t = 5s$  (précédée d'un temps de chute libre de  $150ms$ ), quelque soit la durée de l'interféromètre (appelée  $T_R$ , temps Ramsey, la durée effective de l'interféromètre). Comme la préparation et le refroidissement des atomes a toujours lieu entre  $t = 0s$  et  $t = 0.6s$ , ceci signifie que la densité au début de la séquence interférométrique dépend de la durée de l'interféromètre lui-même. Une mesure pour  $T_R = 1s$  commencera à  $t = 3.85s$  et finira à  $t = 4.85s$ , afin d'avoir  $150ms$  de chute libre avant la mesure à  $t = 5s$ . Une mesure à  $T_R = 2s$  commencera à  $t = 2.85s$  pour finir à  $t = 4.85s$ . Ainsi, la mesure pour  $T_R = 2s$  aura été effectuée avec une densité initiale (c'est à dire, la densité lorsque l'interféromètre commence) plus élevée que la mesure à  $T_R = 1s$ . Ainsi, la densité initiale dans le piège croît avec le temps Ramsey  $T_R$  tandis que la densité d'atomes décroît au cours du temps.

### 3.2 Impulsion $\pi$ et écho de spin

Dans la section 2 décrivant la dynamique de spin d'atomes à deux niveaux dans un piège optique, nous avons montré que nous pouvions indexer les atomes via leur énergie orbitale, qui est une constante au cours de leur mouvement. De ce fait, nous pouvons modéliser ces

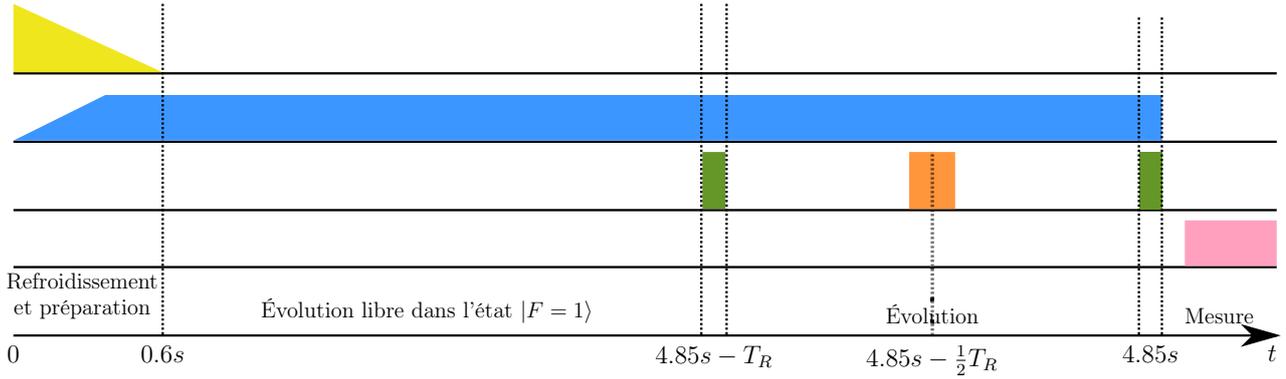


FIGURE 2.4 – Représentation schématique d'une séquence interférométrique utilisée pour effectuer les mesures. Chaque ligne représente l'intensité d'un laser. De haut en bas : lasers de refroidissement et préparation (jaune), lasers de piégeage (bleu), impulsion  $\frac{\pi}{2}$  (vert) et  $\pi$  (orange), nappes de fluorescence (rose) utilisées pour la mesure. Le début de la séquence est défini de sorte à ce que la mesure ait lieu ce qui donne lieu à à  $t = 5s$ . En conséquence, entre  $t = 0.6s$  et  $t = 4.85s - T_R$ , il y a une période d'évolution libre où les atomes sont placés dans l'état  $|F = 1\rangle$  afin de n'être soumis qu'aux effets de pertes atomiques. La durée des impulsions  $\frac{\pi}{2}$  et  $\pi$  n'est pas à l'échelle sur ce schéma.

derniers comme un ensemble de spins indexés par un nombre, chacun d'entre eux étant soumis à un champ magnétique spécifique. Nous considérons donc un ensemble de  $N$  spins  $\{\vec{S}_i(t)\}$  sur la sphère de Bloch, soumis à un champ magnétique  $\vec{B}_i$  orienté selon l'axe  $\vec{z}$  de la sphère de Bloch. Comme le champ magnétique est différent pour chaque spin, ces derniers précessent autour de l'axe  $\vec{z}$  à des vitesses différentes. Tout comme dans les séquences interférométriques expérimentales, le système est préparé initialement de sorte à ce que chaque spin pointe dans la direction  $\vec{x}$ . Comme  $\vec{B}_i \cdot \vec{S}_i$  est conservé, les spins sont contraints à évoluer dans le plan équatorial de la sphère de Bloch. Quitte à se placer dans le référentiel tournant à la même vitesse que le spin total  $\vec{S}(t) = \frac{1}{N} \sum_i \vec{S}_i(t)$ , nous considérons que le spin total pointe toujours dans la direction  $\vec{x}$ .

En notation complexe,  $s_i^+ = S_{i,x} + iS_{i,y}$  et  $s_i^+(t) = \exp(iB_i t)$ , soit

$$s^+(t) = \frac{1}{N} \sum_i s_i^+(t) = \frac{1}{N} \sum_i \exp(iB_i t) = 1 - \frac{1}{2N} \sum_i B_i^2 t^2 - \dots \quad (2.79)$$

car nous avons choisi  $\sum_i B_i = 0$  en nous plaçant dans le référentiel tournant. Le contraste,  $C(t) = |s^+(t)|$  décroît donc, à temps court, comme l'écart quadratique moyen des champs  $B_i$ . Ce phénomène est bien connu en RMN et correspond à l'élargissement des raies due à l'inhomogénéité du champ appliqué.

Nous soumettons alors l'ensemble de spin à une impulsion  $\pi$  à l'instant  $t_\pi$  après le début

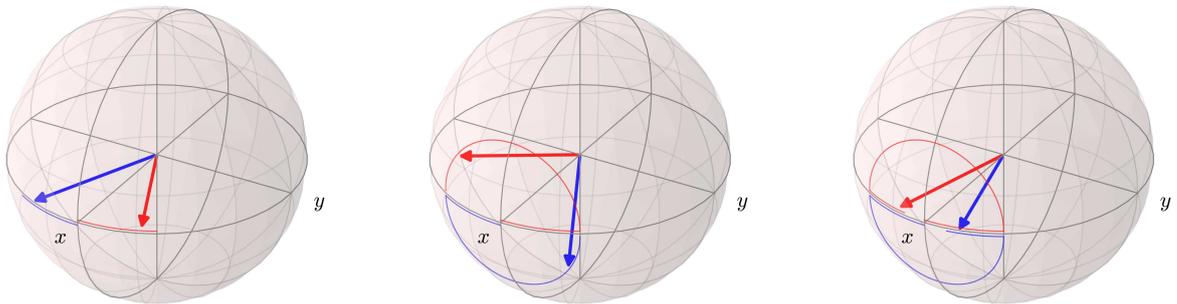


FIGURE 2.5 – Représentation de l'effet d'une impulsion  $\pi$  et du phénomène d'écho de spin. Deux pseudo-spins (en bleu et rouge) associés à des atomes d'énergie orbitale  $E_b$  et  $E_r$  distinctes sont initialement préparés de sorte à pointer dans la direction  $\vec{x}$ . Ces derniers sont soumis à deux pseudo champs magnétiques  $\vec{B}_b = B(E_b)\vec{z}$  et  $\vec{B}_r = B(E_r)\vec{z}$  distincts. Nous pouvons les choisir orientés selon  $\vec{z}$  mais ayant des directions opposées, conduisant à des vitesses de précession différentes : le spin en bleu précesse vers la droite le long de l'équateur, tandis que le spin rouge précesse vers la gauche (sphère de gauche). Avant l'impulsion  $\pi$ , le spin total, somme des spins bleu et rouge, décroît au cours du temps. Une impulsion  $\pi$  (sphère du milieu), appliquée à  $t = t_\pi$  se modélise sur la sphère de Bloch par une rotation quasi instantanée de  $\pi$  radians autour de l'axe  $\vec{x}$ , ainsi, après l'impulsion  $\pi$ , le spin total croît à nouveau (sphère de droite) jusqu'à être maximal à  $t = 2t_\pi$  : ce phénomène est appelé écho de spin.

de l'évolution ; c'est à dire que nous soumettons chacun des spins à un champ magnétique  $\vec{B}(t) = B_\pi \delta(t - t_\pi) \vec{x}$ , où  $B_\pi$  est choisi de manière précise, de sorte à ce que l'effet d'une telle impulsion se traduise sur la sphère de Bloch par une rotation de  $\pi$  radians autour de l'axe  $\vec{x}$ . Nous avons alors

$$s_i(t_\pi^-) = \exp(iB_i t_\pi) \text{ et } s_i(t_\pi^+) = \exp(-iB_i t_\pi) \quad (2.80)$$

Pour cette configuration spéciale de spins, l'impulsion  $\pi$  est équivalente au renversement effectif l'évolution du temps entre 0 et  $t_\pi$ . Ainsi, pour  $t_\pi \leq t \leq 2t_\pi$ , le contraste augmente à nouveau.

Nous déduisons alors que pour des spins sans interaction, plongés dans un champ magnétique inhomogène dirigé selon  $\vec{z}$ , l'évolution temporelle conduit à ce que, au temps  $t = t_\pi + \tau$ , l'état de l'ensemble de spin est identique à l'état à  $t = t_\pi - \tau$ , à une rotation  $\pi$  près. Ainsi, si tous les spins pointaient initialement dans la même direction, alors à  $t = 2t_\pi$ , les spins pointent à nouveau dans la même direction : on parle d'écho de spin [13]. Ce principe est représenté par la figure 2.5.

### Efficacité d'une impulsion $\pi$

Lors d'une expérience d'atomes froids, l'impulsion de pseudo-champ magnétique n'a pas la forme d'un pic delta : l'impulsion a une durée finie. Une représentation plus fidèle d'une impulsion  $\pi$  est donc

$$\vec{B}(t) = B_\pi \square(t - t_\pi, \delta t_\pi) \vec{x} \quad (2.81)$$

ou  $\square$  est la fonction porte de largeur  $\delta t_\pi$  et de hauteur  $\frac{1}{\delta t_\pi}$ . Cette impulsion correspond bien à une rotation d'un angle  $\pi$  autour de l'axe  $\vec{x}$  de la sphère de Bloch pour un spin qui n'est soumis à aucun autre champ magnétique. L'effet imparfait d'une impulsion  $\pi$  de largeur finie sur un spin soumis à un champ magnétique est dépeint par la figure 2.6. La figure 2.7 représente quant à elle l'efficacité de l'application d'une impulsion  $\pi$  à un ensemble de spins précessant à la vitesse  $\omega(\mathbf{E}) = \mathbf{E}\Delta\omega$ . L'ensemble est supposé à l'équilibre thermique, ce qui signifie que la population de spins à énergie  $E$  (en unités de  $k_B T$ ) est proportionnelle à  $\exp(-E)$ .

## 4 Phénomènes de synchronisation

### 4.1 Mécanismes de désynchronisation

La source principale de désynchronisation dans le système est reliée à l'inhomogénéité  $\Delta$  du champ Zeeman présent dans le piège. Cette inhomogénéité conduit à une réduction de la norme du spin total, appelé contraste. La prédiction théorique est une décroissance à temps courts du contraste selon [68]

$$C(t) = (1 + (\Delta t)^2)^{-\frac{d}{2}} \quad (2.82)$$

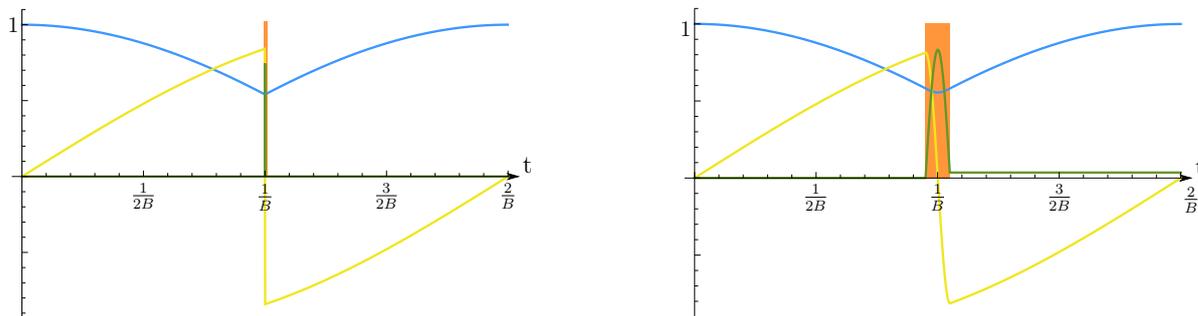


FIGURE 2.6 – À gauche : effet d’une impulsion  $\pi$  parfaite sur un spin unique. À droite : effet d’une impulsion  $\pi$  de largeur finie sur un spin unique. Les composantes  $x, y$  et  $z$  du spin sont représentées respectivement en bleu, jaune et vert. Le spin est plongé dans un champ magnétique  $B\vec{z}$  pour une durée  $\frac{2}{B}$  et l’impulsion (représentée en orange)  $\pi$  est de largeur  $\tau$ . Lorsque l’impulsion  $\pi$  est de largeur finie, le spin gagne une composante selon l’axe  $\vec{z}$  et ne revient donc pas exactement à son état initial, contrairement au cas d’une impulsion parfaite.

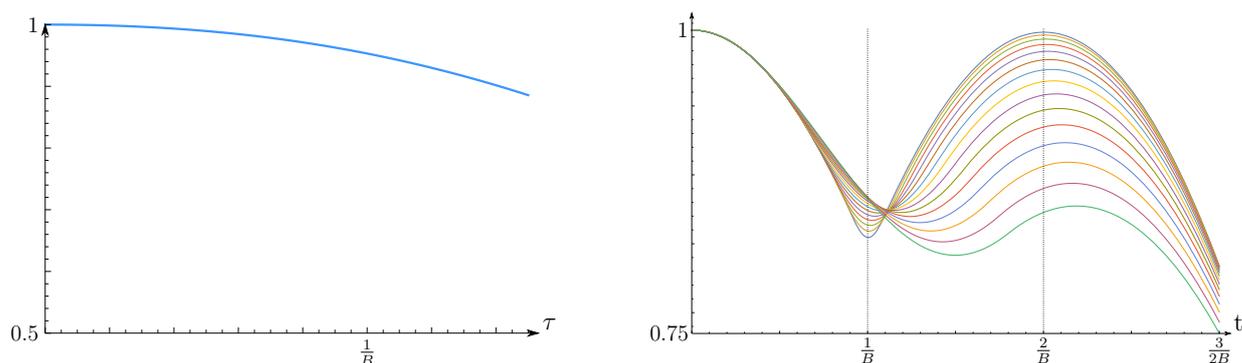


FIGURE 2.7 – Efficacité d’une impulsion  $\pi$  de largeur finie par rapport à une impulsion  $\pi$  parfaite. Un ensemble de 201 spins est plongé dans un champ magnétique inhomogène  $B_i\vec{z}$  pour une durée de  $\frac{2}{B}$ . L’impulsion  $\pi$  de largeur  $\tau$  est effectuée entre  $t = \frac{1}{B} - \frac{\tau}{2}$  et  $t = \frac{1}{B} + \frac{\tau}{2}$ .  $B_i$  est choisi distribué uniformément entre  $-B$  et  $B$ . À droite : l’efficacité de l’impulsion est égale à la norme du spin total (appelé contraste) au moment de l’écho ; elle décroît quadratiquement avec la largeur de l’impulsion. À droite : évolution temporelle de la composante  $x$  du spin total pour différentes largeurs ; la qualité de l’écho décroît avec la durée  $\delta t_\pi$  de l’impulsion  $\pi$ . L’impulsion est effectuée à  $t = \frac{1}{B}$ , et le trait pointillé à  $t = \frac{2}{B}$  marque le moment attendu de l’écho . Lorsque l’impulsion n’est pas parfaite, l’écho est non-seulement de moins bonne qualité, mais également retardé.

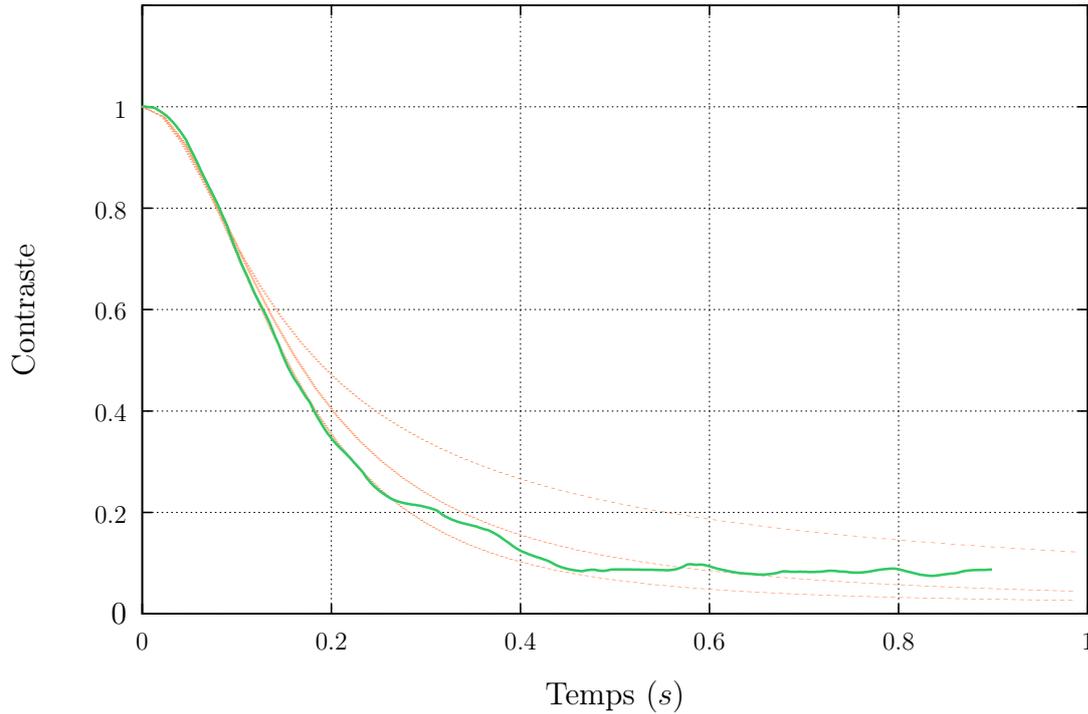


FIGURE 2.8 – L’inhomogénéité du champ Zeeman cause une réduction du contraste selon  $(1 + (\Delta t)^2)^{-\frac{d}{2}}$ . En vert : mesure réalisée sur l’expérience *ForCa-G* à faible densité, où les effets des interactions sont négligeables. Seules l’inhomogénéité du champ Zeeman et les pertes atomiques ont un effet sur l’évolution du contraste. En orange (de bas en haut) : prédiction théorique de la décroissance du contraste en dimension  $d = 3, 2$  et  $1$ . L’expérience réalisée au *SYRTE* correspond à  $d = 3$ , la différence à temps long est due aux autres phénomènes entrant en jeu (pertes atomiques différentielles et durée de vie finie).

où  $d = 1, 2, 3$  est la dimension du piège harmonique et  $\Delta$  caractérise l’inhomogénéité du champ magnétique :  $B(\mathbf{E}) = B_0 + \Delta E + o(E^2)$ . Cette source de désynchronisation ne dépend que de la température du gaz, et, en particulier, ne dépend pas de la densité atomique dans le piège. Son effet peut donc être mesuré expérimentalement à très faible densité, lorsque les interactions atomes-atomes, et donc l’*ISRE* est négligeable. La figure 2.8 représente une mesure effectuée au *SYRTE*, ainsi que sa comparaison avec la prédiction théorique ci-dessus.

Lorsque la densité augmente et que les interactions commencent à jouer un rôle important, l’inhomogénéité du champ Zeeman reste le phénomène responsable de la réduction du contraste à temps courts. La figure 2.9 montre que même à forte densité, la décroissance initiale du contraste suit la loi  $C(t) = (1 + (\Delta t)^2)^{-\frac{3}{2}}$ , tandis qu’à temps longs, l’effet des interactions devient dominant.

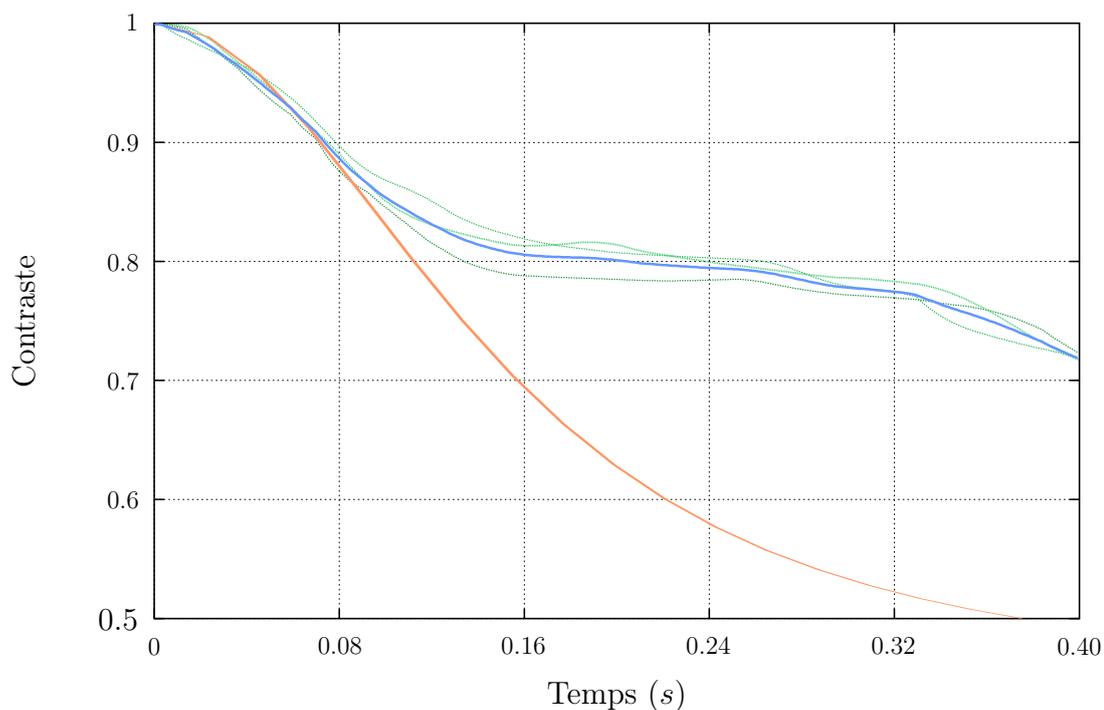


FIGURE 2.9 – A forte densité, où les interactions et l'*ISRE* jouent un rôle important, la décroissance à temps court reste régie par l'inhomogénéité du champ Zeeman, à laquelle s'ajoute l'inhomogénéité du champ moyen, dont l'effet est identique. En bleu : moyenne des trois mesures représentées en pointillés verts. Les paramètres expérimentaux sont identiques pour ces trois mesures. En orange : décroissance du contraste liée à l'inhomogénéité du champ Zeeman et du champ moyen. Les trois mesures en vert et leur moyenne en bleu permettent de se faire une idée de la taille des barre d'erreur lors de la mesure du contraste

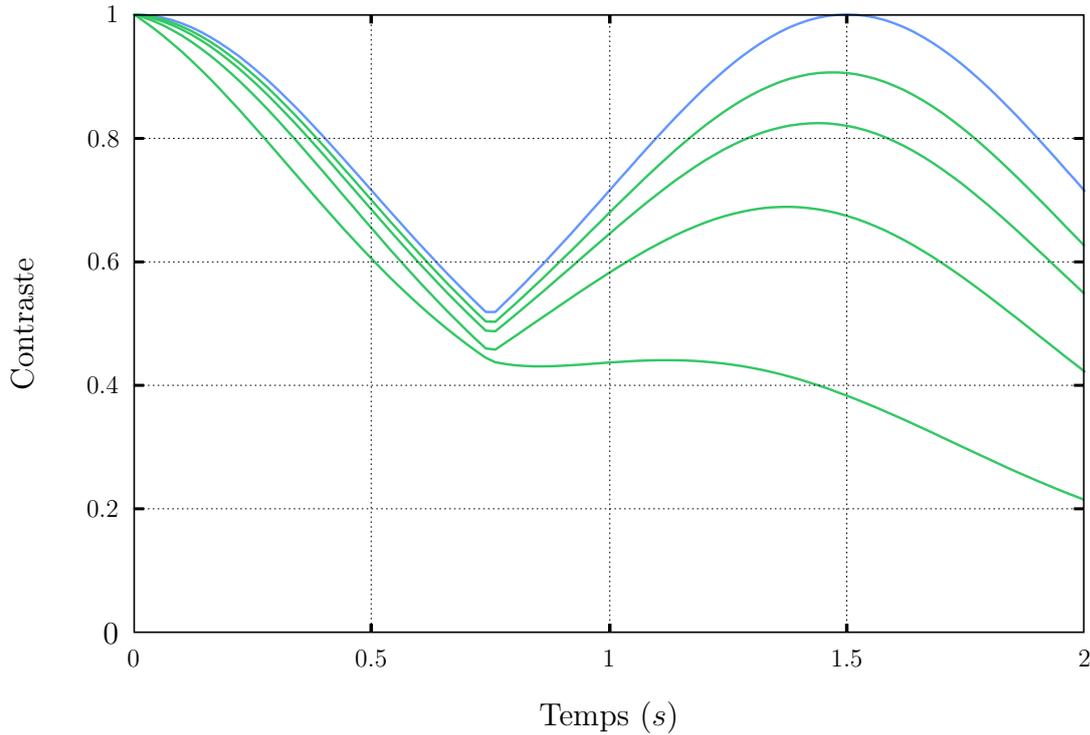


FIGURE 2.10 – Simulation de l'évolution du contraste en fonction du temps pour différentes valeurs du terme de relaxation. L'impulsion  $\pi$  est effectuée à  $t = 0.75$  s et l'écho est attendu à  $t = 1.5$  s. En l'absence de relaxation (courbe bleue) l'écho est parfait, tandis qu'en sa présence (courbes vertes), la qualité de l'écho se dégrade. L'écho est alors avancé, contrairement au cas présenté au paragraphe 3.2.

## 4.2 Impulsion $\pi$ et écho de spin

Le mécanisme d'impulsion  $\pi$  et le phénomène d'écho de spin ont été présentés dans la section 3.2. Ce mécanisme de synchronisation compense presque parfaitement les sources de déphasage inhomogène telles que le terme Zeeman lié au piège dipolaire ainsi que le terme de champ moyen de type Zeeman lié à l'*ISRE*. En revanche, il ne compense pas le terme de pertes différentielles.

La figure 2.10 représente l'évolution de la norme du spin total (contraste) en fonction du temps pour un ensemble de spin soumis au régime d'une expérience typique. En l'absence de relaxation, nous observons que le contraste augmente à nouveau une fois l'écho de spin effectué, et qu'il ré-atteint sa valeur maximale de 1. La technique d'écho de spin compense parfaitement les effets de type champ Zeeman dirigés selon  $\vec{z}$ . En revanche, en présence de relaxation ou de pertes différentielles, le contraste ne ré-atteint plus la valeur de maximale de 1. Ce type de déphasage n'est pas compensé. Un cas réel comme présenté à la figure 2.11 permet de s'assurer que le modèle capture correctement la dynamique de spin à faible densité, lorsque les

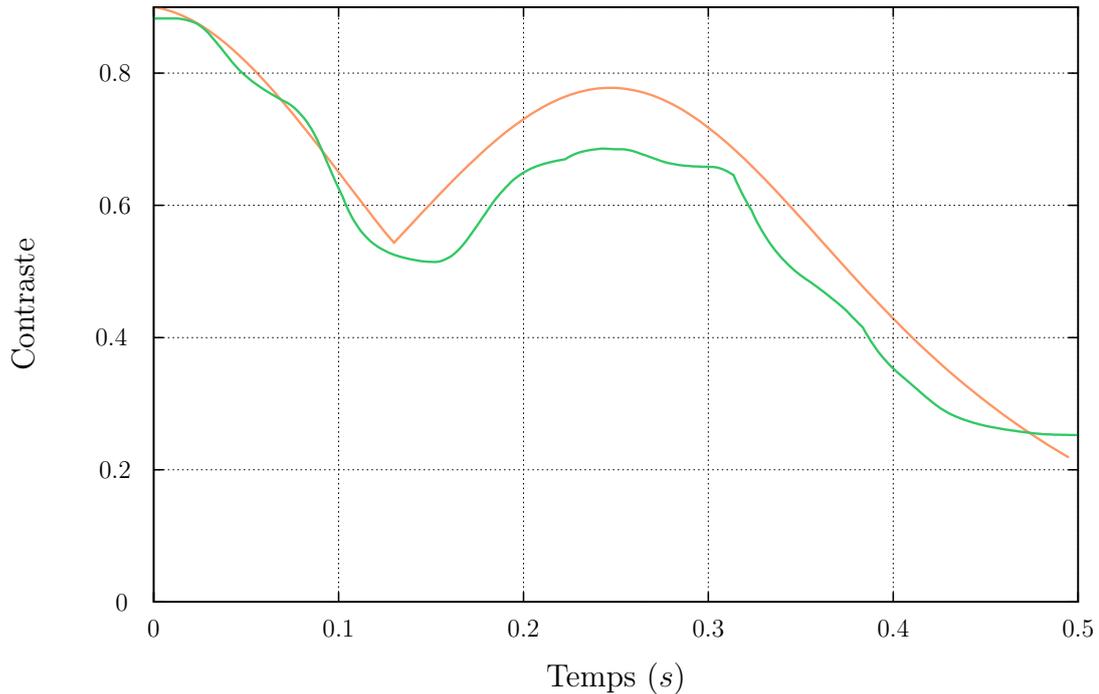


FIGURE 2.11 – Mesure (en vert) comprenant un écho de spin à  $t = 0.125$  s, comparé à une simulation numérique (en orange). La densité est suffisamment faible ( $0.4 \times 10^{12}$  atomes. $\text{cm}^{-3}$ ) pour que le phénomène d'*ISRE* soit négligeable. Le champ Zeeman différentiel est pris à la valeur mesurée de  $0.7$  rad. $\text{s}^{-1}$ , tandis que les autres paramètres sont ajustés. La préparation de l'état initial est telle que le contraste ne vaut pas 1.

interactions atomes-atomes n'ont pas d'effet.

### 4.3 Auto-synchronisation : l'effet de rotation des spin identiques

L'effet de rotation des spins identiques, ou *ISRE*, est un effet de synchronisation dont l'importance est proportionnelle à la densité atomique à l'intérieur du piège dipolaire. L'effet de ce mécanisme qui s'exprime comme un terme de précession autour d'un champ moyen  $\vec{S}(t)$ . Ce terme est non-linéaire dans la densité de spin. Son effet peut être compris de manière schématique en séparant les atomes en deux catégories; les atomes froids, piégés près du centre du piège, et les atomes chauds, explorant la totalité du piège. L'*ISRE* se comporte pour chacune de ces catégories comme une rotation autour du spin atomique total, dirigé selon la direction  $\vec{x}$  de la sphère de Bloch dans le référentiel tournant à la vitesse du spin total. Chacune des catégories de spin a tendance à précesser dans le plan équatorial dans des directions différentes. L'*ISRE* compense cette précession en permettant aux spins d'acquiescer une composante dans

la direction  $\vec{z}$ . Cette compréhension est schématisée par la figure 2.12.

Contrairement à la technique d'écho de spin, l'*ISRE* n'est a priori pas un mécanisme réversible de part sa non-linéarité. Tandis qu'il est possible d'annuler l'effet d'une impulsion  $\pi$  via une deuxième impulsion  $\pi$  et de compenser totalement les sources de déphasage inhomogène, il n'est pas possible d'annuler l'effet de l'*ISRE*, ni de compenser totalement aucune source de déphasage, comme noté par la figure 2.13 : en présence d'un effet d'*ISRE* fort, le contraste reste élevé mais ne ré-atteint jamais sa valeur maximale de 1.

La figure 2.14 est une simulation qui corrobore la représentation schématique de l'effet de l'*ISRE* donnée par la figure 2.12. Les atomes sont répartis en deux catégories : les atomes peu énergétiques situés au centre du piège (spin froids) et les atomes dont l'énergie orbitale est élevée (spin chauds) situés au bord du piège. L'*ISRE* se traduit par l'apparition d'une composante selon l'axe  $\vec{z}$ , opposée pour chacune des catégories.

Enfin, les figures 2.15 et 2.16 permettent de s'assurer que le modèle numérique capture correctement la dynamique de spin observée dans l'expérience *ForCa-G*. Les courbes sont prises à moyenne et respectivement forte densité atomique.

#### 4.4 Compétition entre les mécanismes

Les deux mécanismes permettant d'obtenir des temps de cohérence plus longs, la technique de l'écho de spin et l'*ISRE*, de manière surprenante, ne sont pas des mécanismes compatibles et entre en compétition. L'utilisation de ces deux méthodes au cours d'une même mesure peut conduire à un état final où le contraste est plus faible qu'il ne l'aurait été si un des deux mécanismes n'avait pas été présent. La figure 2.17 présente le contraste au cours du temps pour trois mesures de mêmes conditions initiales, durant lesquelles une impulsion  $\pi$  a été réalisée. La densité atomique initiale est suffisante pour que le phénomène d'*ISRE* joue un rôle important, pourtant le contraste se dégrade plus fortement que pour des mesures similaires sans écho de spin (figure 2.15).

Les deux mécanismes ne sont néanmoins pas systématiquement incompatibles. La figure 2.18 présente plusieurs simulations ayant des paramètres identiques, sauf pour l'impulsion  $\pi$  : cette dernière est réalisée à différents instants.

Nous avons vu, dans le paragraphe précédent la manifestation de la fréquence d'échange : lorsque cette dernière est suffisamment importante, alors le contraste ainsi que la composante selon  $\vec{z}$  des sous-ensembles de spins chauds et de spins froids oscille avec la fréquence d'échange. Nous avons vu également que la technique de l'écho de spin est dépendante du fait que les spins individuels des atomes sont situés sur l'équateur de la sphère de Bloch. La figure 2.12, qui est une représentation simplifiée de l'effet de l'*ISRE*, montre que ce dernier a pour effet de faire périodiquement sortir les spins atomiques du plan équatorial. En présence d'*ISRE*, nous avons donc deux instants caractéristiques : l'instant où les spins atomiques sont maximalelement hors du plan équatorial, et l'instant où les spins sont à nouveau au plus près du plan équatorial. Les figures 2.18 et 2.19 s'expliquent alors très facilement : à l'instant où les spins sont maximalelement

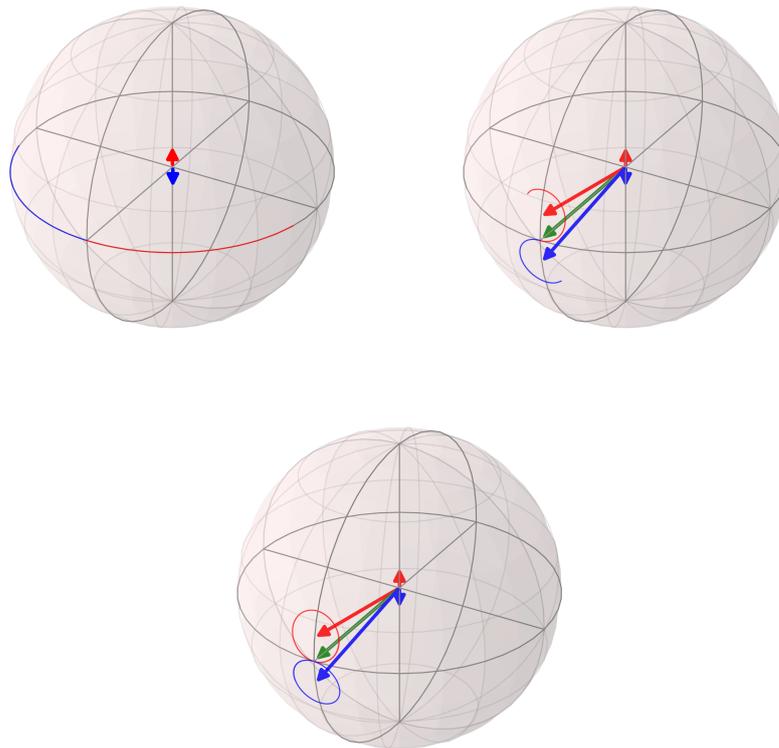


FIGURE 2.12 – Représentation schématique de l'effet de l'*ISRE*. Les atomes sont séparés en deux catégories en fonction de leur énergie orbitale : en bleu, les atomes peu énergétiques (froids), au centre du piège, en rouge, les atomes plus énergétiques (chauds) explorant la totalité du piège. L'*ISRE* se traduit par une resynchronisation associée à l'apparition d'une composante selon  $\vec{z}$ . La flèche verte représente le spin total, les petites flèches bleues et rouges représentent les champs Zeeman associés aux deux catégories atomiques.

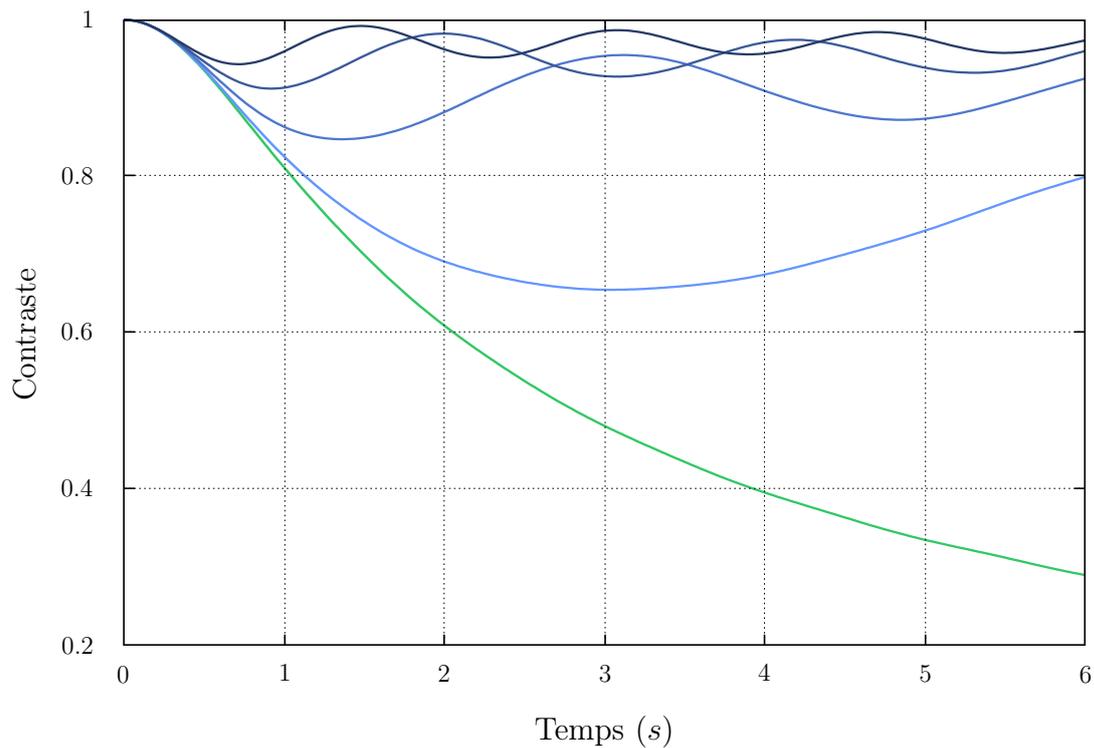


FIGURE 2.13 – En présence de l'*ISRE* (courbes bleues), le contraste ne décroît plus vers 0. En vert, à très faible densité, l'*ISRE* n'a pas d'effet et le contraste diminue. En bleu, le contraste oscille avec la fréquence d'échange (valant  $0.15 \text{ rad.s}^{-1}$  pour la courbe bleu clair,  $0.3 \text{ rad.s}^{-1}$ ,  $0.45 \text{ rad.s}^{-1}$  et  $0.6 \text{ rad.s}^{-1}$  pour la courbe la plus foncée). Ce mécanisme d'auto-synchronisation a été mis en évidence par C. Deutsch et al. [15] et à été utilisé pour d'autres expériences [94].

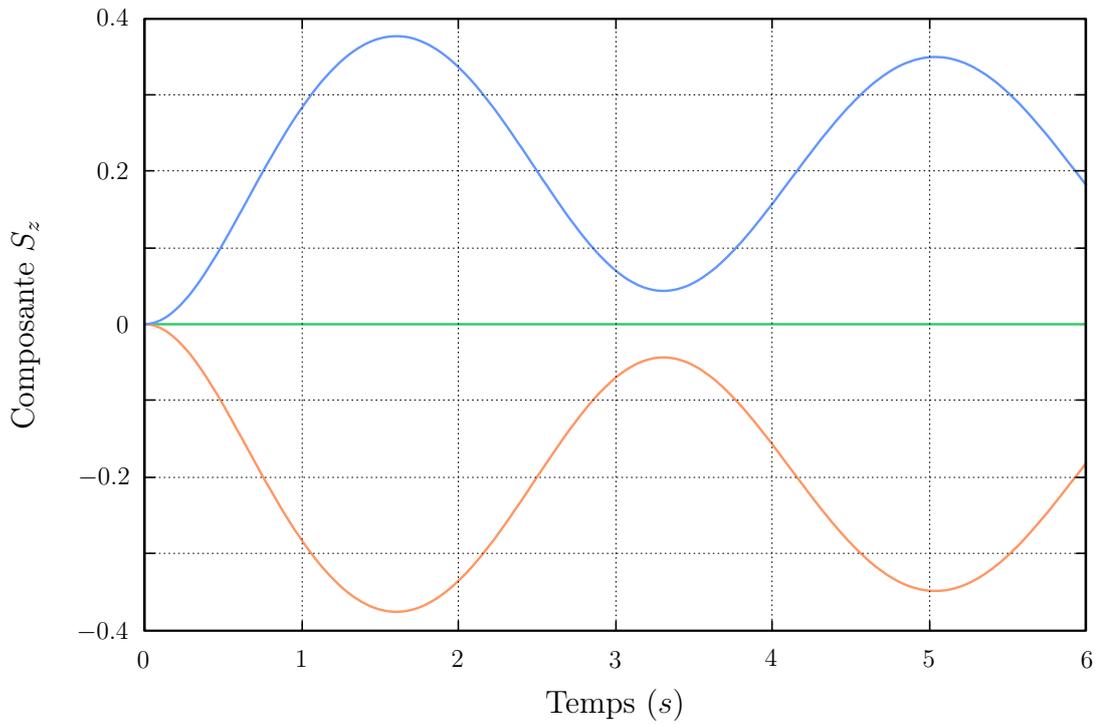


FIGURE 2.14 – Conformément à la séquence dépeinte sur la sphère de Bloch (figure 2.12), l'*ISRE* a pour effet de faire sortir les spins hors du plan équatorial de la sphère de Bloch. La somme des composantes  $S_z$  de 50% des spins associés aux atomes de l'énergie orbitale est la plus faible est représentée en bleu tandis que la composante  $S_z$  des 50% des spins des atomes restant est représentée en orange. La composante selon  $\vec{z}$  du spin total est représentée en vert et reste nulle tout au long de l'évolution. La fréquence d'échange est de  $0.6 \text{ rad}\cdot\text{s}^{-1}$ . L'effet est inversé par rapport à la figure 2.12 (les spin froids gagnent une composante selon  $+\vec{z}$  et les spins chauds une composante selon  $-\vec{z}$ ) : ceci est dû au signe du champ Zeeman différentiel.

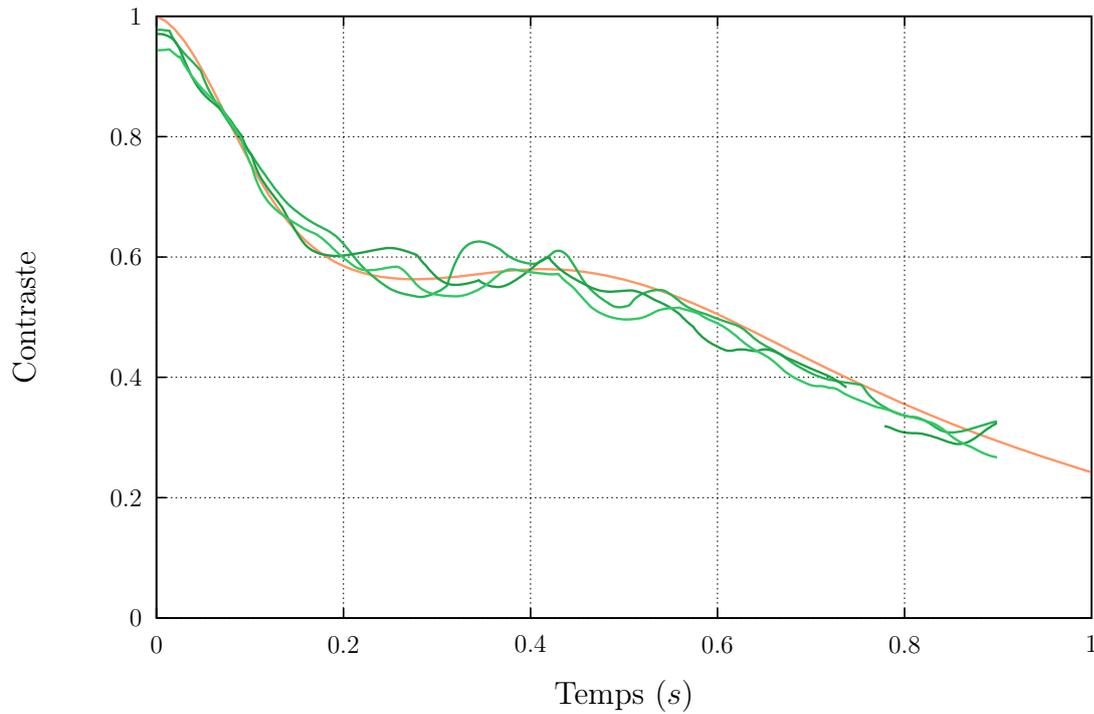


FIGURE 2.15 – Lorsque la densité au centre du piège est suffisamment élevée, l'*ISRE* permet de maintenir un contraste élevé sur des durées plus importantes (en comparaison avec la figure 2.8). En comparaison avec la figure 2.13, l'amplitude des oscillations du contraste est fortement réduite par le terme de relaxation et le temps de vie fini. En vert : trois séries de mesures avec les mêmes paramètres. En orange : ajustement via la simulation numérique. Le champ Zeeman différentiel est pris à la valeur mesurée de  $0.7 \text{ rad.s}^{-1}$  tout comme le temps de vie dans le piège (3 s) et la fréquence d'échange est choisie proportionnelle à la densité :  $2.8 \text{ rad.s}^{-1}$  pour une densité de  $0.9 \times 10^{12} \text{ atomes.cm}^{-3}$ . Les autres paramètres (champ moyen et pertes différentielles) sont ajustés.

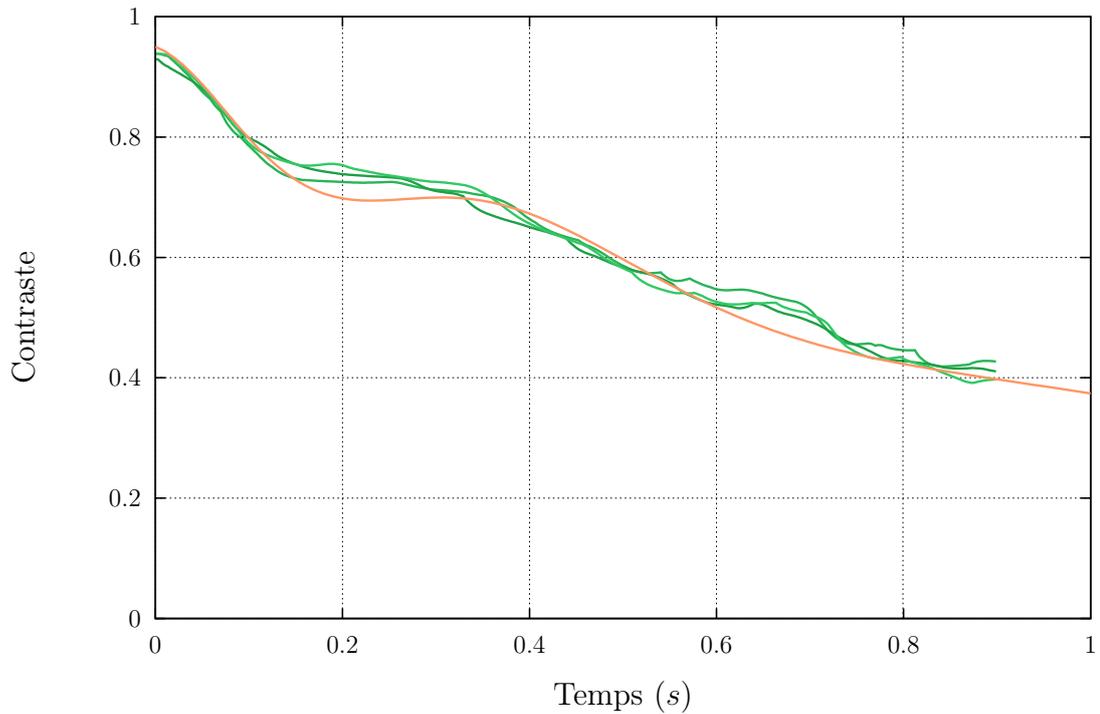


FIGURE 2.16 – À très forte densité, l'*ISRE* accroît encore la durée sur laquelle le contraste reste élevé. En vert, trois séries de mesures avec les mêmes paramètres, en orange, ajustement via la simulation numérique. Le champ Zeeman différentiel est pris à la valeur mesurée de  $0.7 \text{ rad.s}^{-1}$  tout comme le temps de vie dans le piège (3 s) et la fréquence d'échange est choisie approximativement proportionnelle à la densité :  $4 \text{ rad.s}^{-1}$  pour une densité de  $1.7 \times 10^{12} \text{ atomes.cm}^{-3}$ , à comparer avec la figure 2.15. Les autres paramètres (champ moyen et pertes différentielles) sont ajustés.

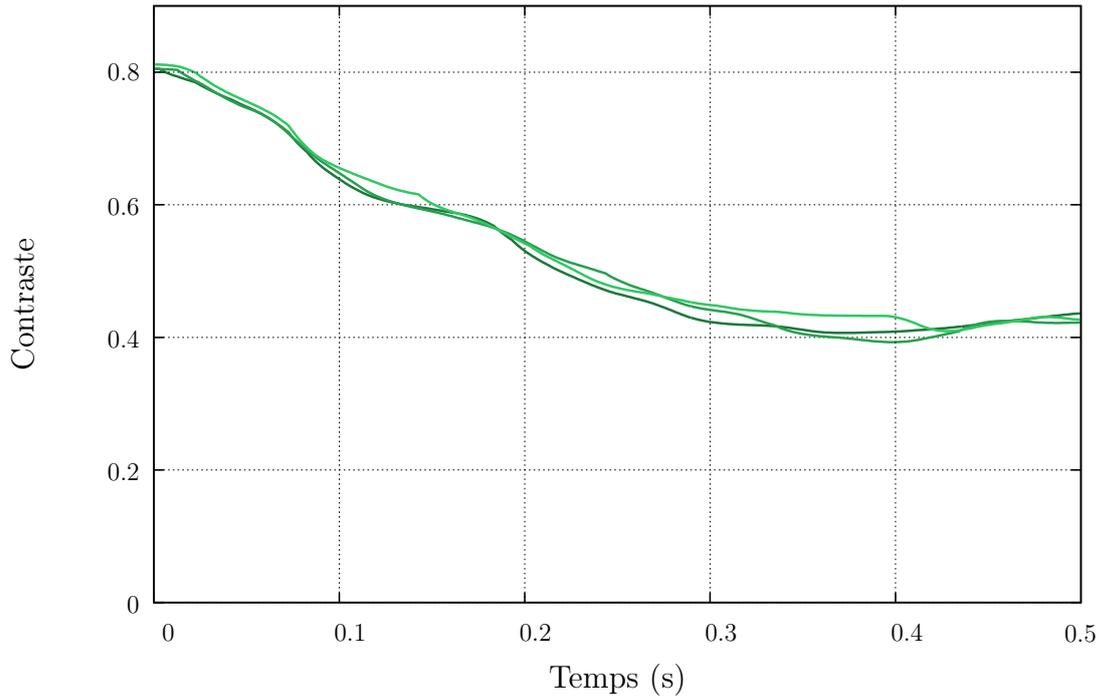


FIGURE 2.17 – Action négative d’une impulsion  $\pi$  en présence d’*ISRE*. En comparaison avec la figure 2.15, le contraste décroît ici plus vite (à densité identique) et ne présente pas la résurgence typique en présence d’*ISRE*. En comparaison avec 2.11, malgré la présence d’une impulsion  $\pi$  à  $t = 0.125$  s, le contraste ne réaugmente pas. Les trois mesures sont réalisées pour des conditions similaires à celles de 2.15, la seule différence étant l’impulsion  $\pi$ .

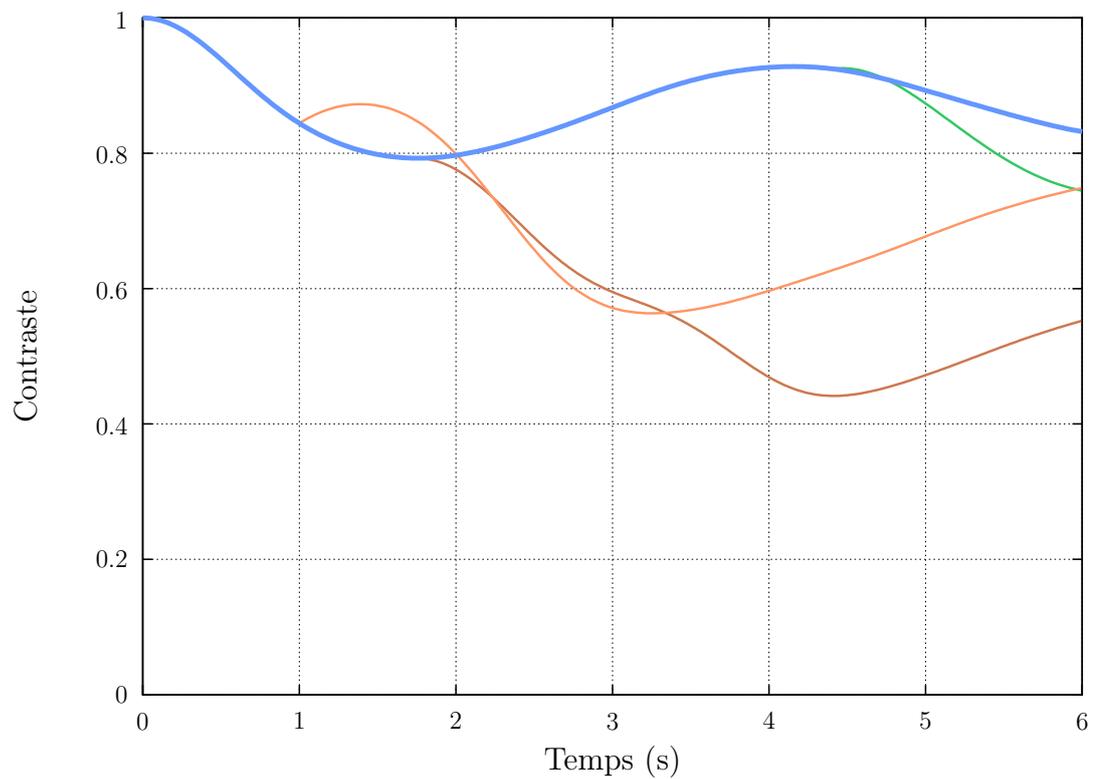


FIGURE 2.18 – Action conjuguée d’une impulsion  $\pi$  et de l’effet d’*ISRE*. Trois cas sont présentés : en bleu, seul l’*ISRE* est utilisé. En orange, l’impulsion  $\pi$  dégrade le contraste et aucun phénomène d’écho n’est observé (l’impulsion  $\pi$  est effectuée à  $t = 1$  s pour la courbe orange foncé et à  $t = 1.75$  s pour la courbe orange clair). En vert, l’impulsion est effectuée à  $t = 4$  s et ne dégrade que peu le contraste. Bien que systématiquement négatif sur cette figure, la technique de l’écho de spin n’a pas toujours le même effet.

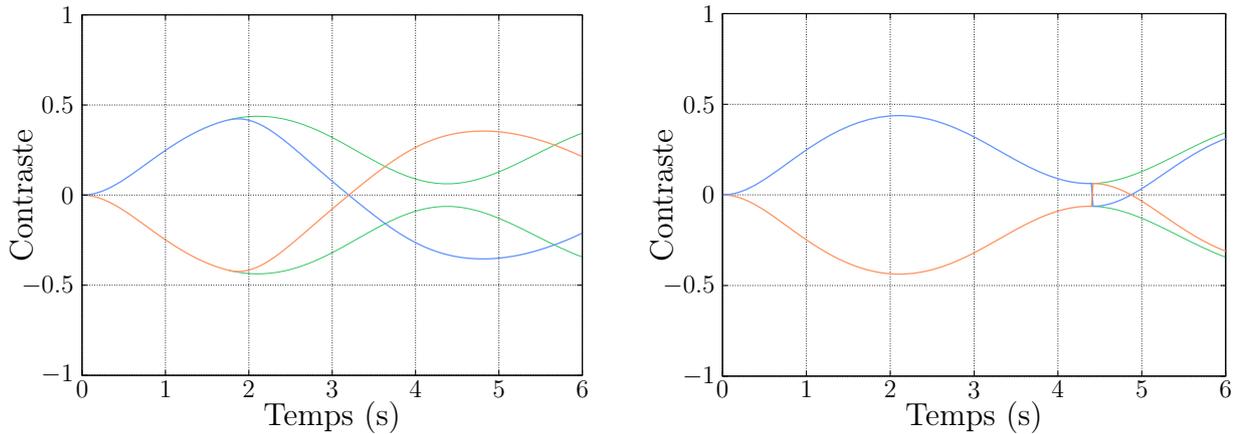


FIGURE 2.19 – Composante  $S_z$  des spins chauds et froids. Au moment de l'impulsion  $\pi$ , le signe de la composante selon  $\vec{z}$  change de signe : c'est la cause de la dégradation du contraste causée par la technique d'écho de spin en présence d'*ISRE* : la dégradation est d'autant plus importante que la composante  $S_z$  est grande au moment de l'impulsion  $\pi$ . En bleu : composante  $S_z$  des spins froids. En orange : composante  $S_z$  des spins chauds, en vert : trajectoire que ces derniers suivraient en l'absence d'impulsion  $\pi$ .

hors du plan équatorial, l'effet de l'impulsion  $\pi$  est le plus dégradant pour le contraste. Ce phénomène est schématisé sur la figure 2.20

La figure 2.21 présente le contraste final, au moment ou est attendu l'écho de spin, en fonction de l'instant auquel l'impulsion  $\pi$  est effectuée et corrobore l'image présentée sur les figures 2.19 et 2.20

#### 4.5 Écho de spin en présence d'interactions

La structure des équations de la dynamique indique que la réalisation d'une impulsion  $\pi$  associée à un changement de signe du terme d'interaction conduit à l'apparition d'un écho de spin, comme l'indique la figure 2.22. La réalisation d'une opération de ce genre peut passer, par exemple, par l'utilisation d'une résonance de Feshbach, comme proposé et réalisé dans [90]. Une étude expérimentale dans l'expérience *ForCa-G* n'est malheureusement pas possible, car la résonance de Feshbach n'est pas accessible.

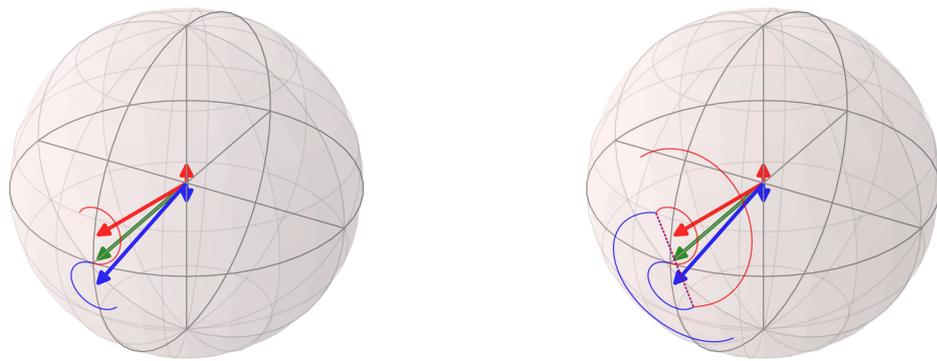


FIGURE 2.20 – Effet schématique d’une impulsion  $\pi$  au moment où les spins sont maximale-ment hors du plan équatorial. À gauche : comme sur la figure 2.12, en fonction de l’énergie orbitale des atomes auxquels ils sont associés, les spins sortent de l’équateur via la précession autour des macro-spin rouges et bleu, correspondant à la somme du spin total (flèche verte) et des champ Zeeman (courtes flèches bleue et rouge). À droite : l’impulsion  $\pi$  change l’hémisphère dans lequel sont situés les spins mais ne change pas les macro-spins autour desquels ces derniers précessent. La précession conduit alors à une désynchronisation plus importante.

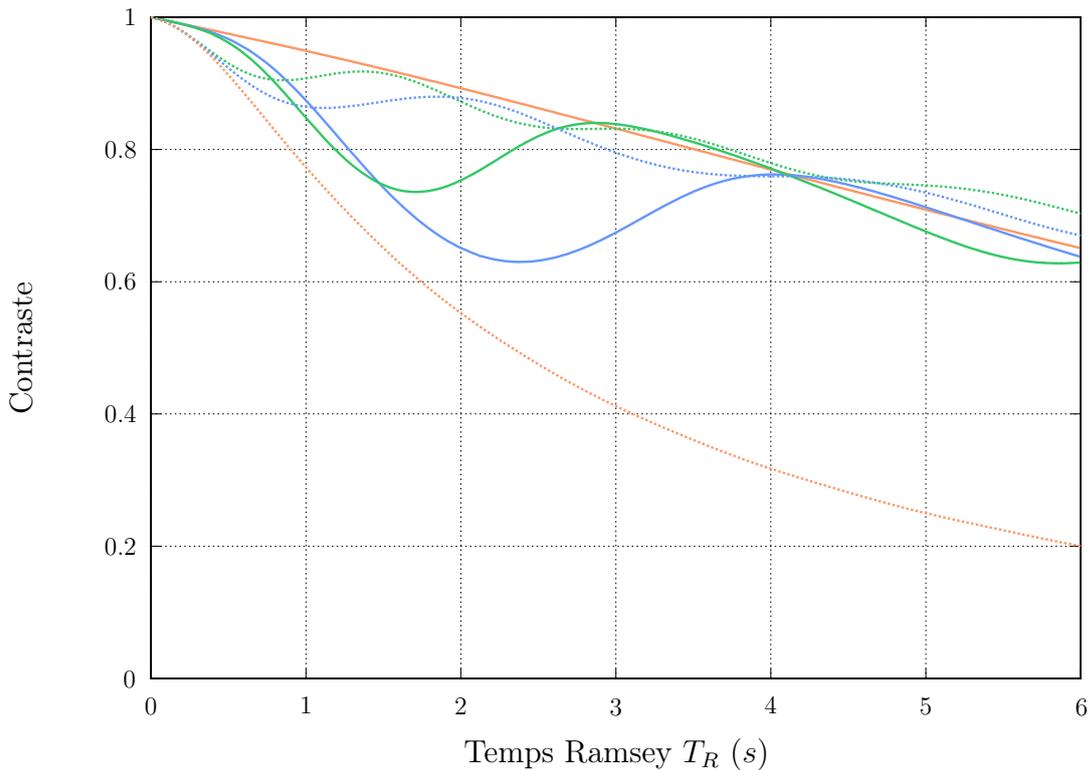


FIGURE 2.21 – Les courbes en traits pleins représentent le contraste à l’instant où est attendu l’écho de spin en présence d’ISRE. L’impulsion  $\pi$  est effectuée au temps  $t = \frac{1}{2}T_R$  et la mesure du contraste a lieu à  $t = T_R$  : à chaque point de la courbe correspond une séquence interférométrique complète contenant une impulsion  $\pi$  au milieu. Les courbes en traits pointillés représentent le contraste obtenu en l’absence d’impulsion  $\pi$ . En orange : faible densité, l’effet de l’ISRE est négligeable : l’écho de spin compense une partie des sources de décohérence et le contraste est plus élevé avec l’impulsion  $\pi$  (courbe orange en trait plein) que sans l’impulsion  $\pi$  (courbe orange pointillé). En revanche, en présence de l’ISRE, sur les courbes vertes et bleues, le contraste avec l’impulsion  $\pi$  (en traits plein) n’est pas systématiquement meilleur que le contraste sans l’impulsion  $\pi$  (en pointillés). Nous pouvons remarquer qu’en présence de l’ISRE, le contraste avec ou sans impulsion  $\pi$  est approximativement identique toutes les deuxièmes oscillations : pour la courbe verte, le contraste est dégradé à  $T_R = 1.5$  s (première oscillation liée à l’ISRE) mais n’est pas dégradé pour  $T_R = 3$  s (deuxième oscillation). Cette observation concorde avec le cas présenté à la figure 2.19 : l’impulsion  $\pi$  est très dégradante lorsque les spins sont maximale-ment éloignés du plan équatorial. A  $T_R = 3$  s l’impulsion  $\pi$  a eu lieu à  $t = 1.5$  s, moment où les spins sont à nouveau proches du plan équatorial (à  $T_R = 1.5$  s a lieu un maximum de la courbe pointillé). A contrario à  $T_R = 1.5$  s, l’impulsion  $\pi$  a lieu à  $t = 0.75$  s, ce qui coïncide avec le moment où les spins sont loin du plan équatorial (à  $t = 0.75$  s a lieu un minimum de la courbe pointillé).

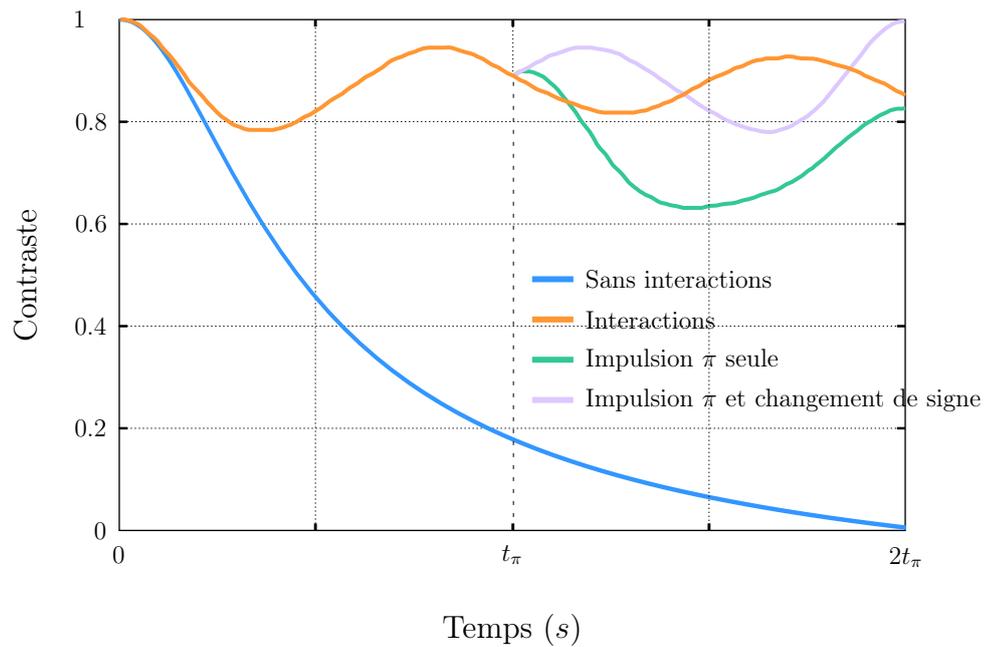


FIGURE 2.22 – L'utilisation simultanée d'une impulsion  $\pi$  et d'un changement de signe du terme d'interaction conduit à un écho de spin parfait, comme le montre la courbe mauve. La courbe en bleu représente le contraste en l'absence d'interactions, la courbe en orange est le contraste en l'absence d'impulsion  $\pi$ . La courbe verte représente le contraste lorsque seule l'impulsion  $\pi$  est effectuée et conduit à la dégradation attendue du contraste, contrairement à la courbe mauve pour laquelle le signe de l'interaction est changé au moment de l'impulsion  $\pi$ . L'impulsion est réalisée au temps  $t_\pi$ .

## 5 Conclusion

La dynamique d'un gaz d'atomes bosonique piégé est généralement décrite dans l'espace des phases position-impulsion. Dans le régime particulier de l'expérience *ForCa-G* réalisée *SYRTE* à l'Observatoire de Paris, appelé régime de Knudsen ou régime sans collisions, l'espace des phases position-impulsion n'est pas adapté à la description de la dynamique du gaz atomique. En effet, dans ce régime, l'énergie est une quantité conservée au cours du mouvement, à l'exception de rares collisions. Nous pouvons donc décrire la dynamique dans l'espace des phases énergie-angle, communément utilisé dans la description des oscillateurs harmoniques. La variable angle est une variable rapide, dans le sens où l'échelle de temps typique qui est associée à sa variation est la plus petite des échelles de temps présentes dans l'expérience : il est donc possible d'intégrer les équations du mouvement vis-à-vis de cette variable afin d'obtenir des équations ne dépendant plus que du temps et de l'énergie. Ce procédé est similaire à l'approximation hydrodynamique, qui consiste à intégrer les équations du mouvement par rapport à l'impulsion, qui, dans le régime hydrodynamique est la variable dont l'échelle de temps de variation est la plus petite, afin d'obtenir des équations ne dépendant plus que du temps et de la position.

Une fois la dynamique simplifiée dans l'espace énergie-angle, il convient de décrire de manière quantique l'effet des collisions entre atomes sur les états internes des atomes. L'effet le plus notable de ces collisions est le phénomène de rotation des spins identiques, introduit par [14]. Ce phénomène introduit un terme de précession supplémentaire dans l'équation de la dynamique, et est associé à une fréquence caractéristique, la fréquence d'échange qui est proportionnelle à la densité atomique. Ainsi, ce terme est non-linéaire en la densité atomique et conduit à un phénomène collectif : le mécanisme d'auto-synchronisation des spins atomiques. Ce mécanisme conduit à un temps de cohérence plus long pour l'horloge atomique.

Dans le but d'accroître de manière supplémentaire le temps de cohérence, une technique utilisée dans de nombreux domaines est la technique de l'écho de spin [13], à laquelle est également associée une fréquence caractéristique (associée à la durée entre le moment où est réalisée l'impulsion  $\pi$  et le moment où l'écho de spin est attendu). De manière surprenante, les phénomènes d'auto-synchronisation et d'écho de spin ne se cumulent pas nécessairement pour prolonger le temps de cohérence de l'ensemble atomique. En particulier, pour certains rapports de fréquence (demi-entiers) entre la fréquence d'échange et la fréquence associée à l'écho de spin, l'effet cumulé est dégradant pour le temps de cohérence. L'étude réalisée dans ce manuscrit décrit une image simple des raisons conduisant à cet effet dégradant : lorsque les pseudo-spins atomiques sont décrits sur la sphère de Bloch, il est évident que la technique de l'écho de spin requiert que ces derniers restent au maximum sur l'équateur de la sphère de Bloch. Au contraire, l'effet de rotation des spins identiques conduisant au phénomène d'auto-synchronisation fait sortir de manière périodique les spins de l'équateur de la sphère de Bloch. Au moment où ces derniers sont maximale hors de l'équateur, la technique de l'écho de spin dégrade de manière maximale le temps de cohérence. En revanche, une fois que les spins sont à nouveau sur l'équateur de la sphère de Bloch, la technique d'écho de spin et l'auto-synchronisation des spins n'interagissent plus de manière dégradante.

Cette compréhension de la manière dont les impulsions  $\pi$  et l'effet de rotation des spin identiques s'affectent mutuellement permet de réaliser des expériences telles que [95] où la densité atomique, donc la fréquence d'échange, est choisie de sorte à ce que l'horloge réalisée soit insensible aux fluctuations de la densité atomique, permettant une meilleure stabilité et répétabilité.



## Conclusion et perspectives

La *théorie moderne de la polarisation*, introduite par King-Smith, Vanderbilt et Resta vient palier aux problèmes contenus dans l'approche de Clausius-Mossotti lorsqu'une description quantique des isolants cristallins est utilisée. Elle permet d'interpréter la polarisation comme une quantité géométrique, qui s'exprime sous la forme d'une phase de Zak et qui contient naturellement le quantum de polarisation propre aux systèmes possédant une invariance par translation. Au travers de la description thermodynamique de la polarisation proposée ici en complément à la *théorie moderne de la polarisation*, nous avons illustré quelques propriétés et difficultés propres au problème des diélectriques en présence d'un champ électrique statique :

- dans la jauge scalaire, nécessaire pour que Hamiltonien et énergie coïncident, le champ électrique ne peut pas être décrit comme une perturbation. Quelque soit la valeur du champ électrique, les échelles de Wannier-Stark possèdent des niveaux d'énergie arbitrairement éloignés du spectre à champ nul,
- il est néanmoins possible de développer en « perturbation » le spectre de Wannier-Stark à champ faible en se basant sur des états localisés, les états de Wannier, qui ne sont pas des états propres du système à champ nul. Ce développement fait intervenir la quantité géométrique connue sous le nom de connexion de Berry et associée à la position des états de Wannier, sous la forme de la phase de Zak apparaissant dans la *théorie moderne de la polarisation*,
- le premier ordre de ce développement, qui correspond à la polarisation spontanée fait uniquement intervenir la phase de Zak, et ne fait pas intervenir le spectre à champ électrique nul. Ceci signifie qu'il est possible d'avoir deux systèmes avec des spectres identiques et des polarisations différentes. En polarisation électrique comme en magnétisme orbital, connaître le spectre ne suffit pas : il faut également connaître les fonctions d'onde du système,
- le deuxième ordre en champ électrique du développement des échelles de Wannier-Stark fait non-seulement intervenir la connexion de Berry, mais il fait également intervenir le spectre, contrairement à la polarisation. Il ne correspond pas au résultat que fournirait une théorie de perturbation naïve, contrairement à la polarisation,
- l'approche thermodynamique se heurte au caractère non-borné du spectre de Wannier-Stark ; il n'y a pas « d'état d'énergie minimale » dans un système à la limite thermodynamique. Cette difficulté est levée par l'introduction d'un potentiel chimique local qui

assure un remplissage uniforme des niveaux d'énergie, et qui permet la description de l'état métastable de longue durée de vie présent avant la rupture Zener.

Le travail effectué dans ce premier chapitre peut être poursuivi dans d'autres pistes que celles étudiées. Le cas tridimensionnel n'est pas du tout exploré. En dimension deux, nous avons montré qu'il existait un lien avec les isolants de Chern ; le cas tridimensionnel contient-il un lien avec les isolants topologiques faibles et forts propres à cette dimension ? Dans cette optique, une étude des propriétés de localisation des fonctions de Wannier semble nécessaire : de manière similaire au cas bidimensionnel, nous nous attendons à ce que ces dernières ne soient pas systématiquement localisables simultanément dans les trois directions de l'espace, et nous nous attendons à l'existence d'un lien entre le nombre de directions simultanément localisables et les indices faibles du cristal.

Dans le cas bidimensionnel, nous n'avons pas étudié le cas où le champ électrique est placé selon une direction irrationnelle du réseau : ce cas est relié aux systèmes quasi-périodiques. Tout comme il est possible de relier le papillon de Hofstadter (spectre d'un cristal bidimensionnel soumis à un champ magnétique) à un système quasi-périodique unidimensionnel, comment peut-on relier champ électrique et systèmes quasi-périodiques, et que pouvons-nous en apprendre [56] ?

Finalement, les interactions entre électrons ne sont que très brièvement abordées. Comment ces dernières impactent-elles la compréhension de la polarisation donnée par la *théorie moderne de la polarisation* ? L'étude de la polarisation pour des modèles présentant un terme d'interaction sur site, tel que le modèle de Hubbard [96-98], constitue un premier pas dans cette direction. Les auteurs de [99] traitent du problème de la polarisation dans les isolants présentant des interactions manière numérique avec les outils de la DMFT.

La dynamique d'un gaz d'atomes froids piégés est présentée dans le second chapitre. L'élément clé est la transformation de la dynamique depuis l'espace des phases  $r, p$  vers l'espace énergie-angle  $E, \alpha$ . Dans le régime de Knudsen où les collisions latérales sont rares, il est possible d'intégrer les équations de la dynamique sur la variable angle afin d'obtenir une équation portant uniquement sur la variable énergie. Un modèle simple, le modèle à deux macro-spins, associé à des simulations numériques permet alors de capturer et de décrire les différents phénomènes apparaissant au cours de la dynamique (mesurées dans l'expérience *ForCa-G*) :

- l'inhomogénéité du champ Zeeman de piégeage se traduit par une précession des pseudo-spins atomiques le long de l'équateur de la sphère de Bloch à des vitesses différentes, conduisant à une réduction du contraste,
- la technique de l'écho de spin, qui consiste à appliquer une impulsion  $\pi$  (qui se traduit par une rotation d'un angle  $\pi$  autour de l'axe  $\vec{y}$  de la sphère de Bloch) permet de compenser totalement l'effet de l'inhomogénéité du champ Zeeman,
- l'auto-synchronisation, conséquence de l'*ISRE* ayant lieu au cours des collisions atomes-atomes, permet également de compenser l'effet de l'inhomogénéité du champ Zeeman. Le mécanisme est distinct de l'impulsion  $\pi$  dans le sens où l'auto-synchronisation conduit les spins atomiques à sortir périodiquement du plan équatorial de la sphère de Bloch,

- lorsque la technique d'écho de spin est utilisée en présence d'auto-synchronisation, l'effet résultant est inattendu : les deux phénomènes rentrent en compétition, conduisant à une dégradation du contraste importante si l'impulsion  $\pi$  est réalisée au moment où les spins sont maximalelement éloignés de l'équateur.

Grâce à ces images simples permettant de décrire avec précision la dynamique de spin piégés, de nouvelles questions se posent. Nous avons vu que pour de fortes valeurs de la fréquence d'échange le contraste oscille dans le temps mais ne décroît plus vers 0 : le gaz est dans un régime synchronisé. Dans divers systèmes, il existe une transition de synchronisation [100-102]. Est-ce également le cas pour un gaz atomique refroidi ? Une étude numérique des solutions de l'équation de la dynamique semble indiquer la présence d'un tel régime, cependant une étude analytique est nécessaire afin de caractériser ce phénomène.

L'inhomogénéité du champ Zeeman conduit à une dérive temporelle connue (théoriquement et expérimentalement) de la fréquence de l'horloge atomique [103]. L'auto-synchronisation vient également modifier cette fréquence : peut-on quantifier et prévoir cette modification grâce à l'équation de la dynamique proposée ? Au champ Zeeman crée par le piège lui-même vient s'ajouter une composante provenant du champ moyen émergeant des collisions latérales entre atomes. Cette composante de champ moyen est proportionnelle à la densité et conduit à une compensation partielle, voire totale du champ Zeeman pour certaines densités magiques [95]. Le même phénomène ce produit-il pour la fréquence de l'horloge ?

Le modèle simple développé et les simulations effectuées semblent indiquer que la chorégraphie des spins lié à l'auto-synchronisation peut être renversée temporellement via l'utilisation d'une impulsion miroir selon le plan  $(\vec{x}, \vec{z})$ . Tandis que la réalisation d'une telle impulsion est impossible théoriquement et expérimentalement (mais possible dans une simulation numérique), existe-t-il des séquences permettant de renverser partiellement où totalement les phénomènes émergeant des collisions atomes-atomes ? Dans [104], les auteurs utilisent une série d'impulsions  $\pi$  et  $\frac{\pi}{2}$  selon les axes  $\vec{x}$  et  $\vec{y}$  afin d'obtenir un écho normalement absent en présence d'interaction. De telles séquences permettraient l'obtention d'un écho de spin en présence d'interactions [105, 106] et permettraient de réaliser des renversement du temps similaire à [107].

Le travail réalisé ici porte sur le régime non-dégénéré où le comportement ne dépend que peu du caractère fermionique ou bosonique des atomes utilisés. Dans le régime dégénéré qui apparaît pour des températures plus basses, les comportements pour les fermions [108] et pour les bosons [59] deviennent très différents. Certains systèmes se comportent également comme des spins 1, 3/2 voire même 3 [109], et il est également possible d'utiliser des atomes de Rydberg [110], ce qui introduit une interaction de longue portée spatiale. Le cas bosonique est très particulier : en deçà de la température critique de condensation, il est possible d'avoir une coexistence entre la phase condensée et le gaz thermique. Il serait intéressant de savoir dans quelle mesure les techniques utilisées ici s'appliquent à ces deux systèmes.

L'expérience *ForCa-G* a pour but de piéger les atomes dans un réseau optique vertical, soumis à la gravité [111]. Un tel réseau est très similaire au cas étudié dans le premier chapitre de ce manuscrit en remplaçant le champ électrique  $\vec{\epsilon}$  par le champ gravitationnel  $\vec{g}$  : dans la

direction du réseau, les atomes sont décrits par les états de Wannier-Stark, conduisant à une modification notable de la dynamique atomique. Comment-y est modifié le phénomène d'auto-synchronisation ? Quel impact cette configuration a sur la fréquence de l'horloge ? La première étape consiste à comprendre si et comment le recouvrement entre les états de Wannier-Stark peut conduire à un effet d'auto-synchronisation entre les atomes piégés dans différents états, localisés dans différents puits du réseau optique.

## Annexe A

# Statistical mechanics approach to the electric polarization and dielectric constant of band insulators

Publié dans *Phys. Rev. B* **94** 15 (2016).

**Statistical mechanics approach to the electric polarization and dielectric constant of band insulators**Frédéric Combes,<sup>1,\*</sup> Maximilian Trescher,<sup>2</sup> Frédéric Piéchon,<sup>1</sup> and Jean-Noël Fuchs<sup>1,3</sup><sup>1</sup>*Laboratoire de Physique des Solides, CNRS UMR 8502, Université Paris-Sud, F-91405 Orsay Cedex, France*<sup>2</sup>*Dahlem Center for Complex Quantum Systems and Institut für Theoretische Physik, Freie Universität Berlin, Arnimallee 14, D-14195 Berlin, Germany*<sup>3</sup>*Laboratoire de Physique Théorique de la Matière Condensée, CNRS UMR 7600, Université Pierre et Marie Curie, 4 place Jussieu 75252 Paris Cedex 05, France*

(Received 7 June 2016; published 6 October 2016)

We develop a theory for the analytic computation of the free energy of band insulators in the presence of a uniform and constant electric field. The two key ingredients are a perturbation-like expression of the Wannier-Stark energy spectrum of electrons and a modified statistical mechanics approach involving a local chemical potential in order to deal with the unbounded spectrum and impose the physically relevant electronic filling. At first order in the field, we recover the result of King-Smith, Vanderbilt, and Resta for the electric polarization in terms of a Zak phase—albeit at finite temperature—and, at second order, deduce a general formula for the electric susceptibility, or equivalently for the dielectric constant. Advantages of our method are the validity of the formalism both at zero and finite temperature and the easy computation of higher order derivatives of the free energy. We verify our findings on two different one-dimensional tight-binding models.

DOI: [10.1103/PhysRevB.94.155109](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.94.155109)**I. INTRODUCTION**

From the classical point of view, a periodic distribution of discrete charges—as found in a crystal—possesses a well-defined polarization (i.e., an electric dipole moment) if it is charge neutral. However, due to the periodicity of the charge distribution, this polarization is only defined modulo a Bravais vector, that is, an integer in the proper units. The latter is misleadingly known as the quantum of polarization, although unrelated to Planck's constant. In addition to that, if dynamics are specified for this charge distribution, then it also possesses an electric susceptibility  $\chi$ , related to the dielectric constant  $\epsilon$  by  $\epsilon = 1 + \chi$ . The classical picture (also known as the Clausius-Mossotti approach) [1], however, fails when the electrons are described at the quantum level, as extended Bloch states lead to a continuous charge distribution rendering the classical formula meaningless. Hence, one must use a new approach to describe the polarization of a crystal. Since the work of King-Smith, Vanderbilt, and Resta (KVR) [2–4], tools needed to compute the electric polarization in crystals are available. Their approach, named *the modern theory of polarization*, is based on the understanding that a change of polarization corresponds to an adiabatic flow of charges in an insulator (for a pedagogical review of the modern theory of polarization, see [5]). The current resulting from an adiabatic deformation of the crystal can easily be computed from the Bloch wave functions, and the resulting change in polarization is proportional to the difference of the Zak phase [6] between the initial and final states. In turn, the Zak phase corresponds to the position of the Wannier center of a Bloch band inside a unit cell. In light of this fact, we can use a localization prescription for the delocalized Bloch wave functions of a band: if we assume that the electrons (and therefore their whole charge) are localized at their Wannier centers, then the classical formula for discrete charge distribution gives the expected result for

the polarization. From the Zak phase properties we gain the insight that, at the quantum level, the polarization does not depend on the density of charge (i.e., the modulus square of the Bloch states), but on the phase of the Bloch states. In this context, the quantum of polarization appears related to the Zak phase being defined modulo  $2\pi$ .

Despite the breakthrough of this approach, there are still difficulties with it. From a general point of view, the polarization is an equilibrium quantity—that should be computable from standard statistical mechanics—and not a transport property, while the modern theory of polarization relies on adiabatic currents. Also it is essentially restricted to zero temperature. Here, we propose to adopt a statistical mechanics approach similar to the one usually developed for the magnetic response (see for example [7]). Using a scalar gauge, we start by computing the energy spectrum of band electrons in an electric field (the well-known Wannier-Stark ladder [8–11]) at second order in the electric field. This spectrum is unbounded, which constitutes a major difficulty for a standard statistical mechanics approach. To circumvent this difficulty, we develop a modified approach that takes into account the fact that the band insulator in a weak electric field remains translationally invariant in practice. The key ingredient is to introduce a local chemical potential that forces the physical electronic filling in each unit cell.

After the pioneering work of King-Smith and Vanderbilt [2] and of Resta [3], there have been many further developments in the computation of the dielectric properties of insulating crystals. Here, we briefly review some of these. Nunes and Vanderbilt have developed a real-space approach to the computation of electric polarization and susceptibility [12]. It is based on the KVR formula extended to treat the case of field-induced polarization and not only spontaneous polarization. Several authors have adapted density functional theory to a finite electric field by introducing an energy functional that depends on the electric polarization as computed using the KVR formula [13–15]. In this way they can access the dielectric susceptibility and higher order response functions;

\*frederic.combes@u-psud.fr

however the electric polarization is taken from KVR. Kirtman and co-workers have developed a vector potential approach that bypasses the difficulty related to the unbounded position operator present in the scalar electric potential but has other problems [16]. The same authors [17] have also attacked the problem by replacing the true electric scalar potential by a piecewise linear (such as sawtooth or continuous triangular) potential that has the advantage of corresponding to a periodic Hamiltonian. A drawback of this approach is that it does not recover the KVR polarization. Recently, Nourafkan and Kotliar have included correlation effects in the computation of the electric polarization [18]. Swiecicki and Sipe use linear response theory at finite frequency to obtain the dielectric function [19].

In the following, we consider one-dimensional tight-binding models of band insulators as the minimal models capturing the physics at stake. The outline of the paper is as follows. In Sec. II we give a general derivation of the electric polarization and susceptibility at finite temperature. The two crucial steps in the derivation are (i) a perturbation-like expression (power series in the electric field) for the energy spectrum of a tight-binding model in a constant electric field, and (ii) modified statistical mechanics involving a local chemical potential in order to properly handle the unbounded energy spectrum. Then, in Sec. III, we check our results and approximations on two toy models that can either be solved analytically or numerically. Section IV contains a discussion and a conclusion. In appendices, we give details on the derivations. Appendix A discusses the position operator. Appendix B gives the chemical potential as a function of the electric field. Appendix C shows that strong interactions between electrons impose a local electronic filling. Appendix D presents an alternative derivation of the finite-temperature polarization and susceptibility based on the charge density.

## II. GENERAL DERIVATION

We consider a one-dimensional tight-binding model for electrons in a periodic crystal made of  $N$  unit cells, each containing  $N_b$  sites/orbitals. Eventually, we are interested in studying the thermodynamic limit in which  $N \rightarrow \infty$  at fixed number of bands  $N_b$ . The ions are treated minimally; they form a rigid lattice, have no dynamics, have no atomic polarizability, but they do carry an electric charge so as to make the whole system charge neutral. As the spin plays no essential role in the presence of an electric field, we assume spinless electrons that carry a charge  $-e = -1$ . The Fermi energy is set within a band gap, such that the whole system is a charge-neutral insulating crystal (a dielectric).

### A. Free energy and its field derivatives:

#### Global chemical potential

As electric polarization and susceptibility are defined for charge-neutral systems only, any statistical mechanics approach must take place in the canonical ensemble where the number of electrons is fixed. The polarization  $\mathcal{P}$  and susceptibility  $\chi$  are defined as the first and second derivatives of the free energy  $F$  with respect to the electric field  $\mathcal{E}$ , at

vanishing electric field

$$\mathcal{P} = -\frac{1}{L} \frac{\partial}{\partial \mathcal{E}} F \Big|_{\mathcal{E}=0} \quad (1)$$

and

$$\chi = -\frac{1}{L} \frac{\partial^2}{\partial \mathcal{E}^2} F \Big|_{\mathcal{E}=0}, \quad (2)$$

where  $L$  is the length of the crystal.

The total free energy  $F$  contains two contributions: one due to the ions and one due to the electrons. As we wish to focus on the electronic contribution we treat the ions as static charges in a scalar potential. This choice leads to their contribution to the free energy as

$$F_{\text{ions}} = \sum_n \sum_{i=1}^{N_b} q_i [-\mathcal{E}(na + x_i)] = \sum_n -q\mathcal{E}na, \quad (3)$$

where the sum over  $n$  is a sum over the unit cells ( $n$  is a unit cell index taking  $N$  values),  $q = \sum_{i=1}^{N_b} q_i$  is the total ionic charge in a unit cell, and the origin of position is taken as the (charge-weighted) barycenter of the ions of the  $n = 0$  unit cell [20]:

$$\bar{x} = \frac{1}{q} \sum_{i=1}^{N_b} q_i x_i = 0. \quad (4)$$

In the following, we set the lattice spacing  $a = 1$ .

For technical simplicity, we introduce a chemical potential  $\mu$  and compute the free energy of electrons

$$F_{e^-}(N_{e^-}, \mathcal{E}, \beta) = \mu N_{e^-} + \Omega_{e^-}(\mu, \mathcal{E}, \beta) \quad (5)$$

from the grand potential

$$\Omega_{e^-}(\mu, \mathcal{E}, \beta) = -\frac{1}{\beta} \sum_{\gamma} \ln(1 + e^{-\beta(E_{\gamma} - \mu)}), \quad (6)$$

where  $\beta = 1/T$  is the inverse temperature. The chemical potential  $\mu$  is used to impose the overall (i.e., global) charge neutrality of the system and  $\gamma$  is the set of quantum numbers labeling the energy spectrum. For the moment, we assume that we are able to compute the energy spectrum  $\{E_{\gamma}\}$  of a single electron in the lattice in the presence of an electric field (this energy spectrum is discussed in the next section). The total number of electrons is

$$N_{e^-} = -\frac{\partial \Omega_{e^-}}{\partial \mu} = \sum_{\gamma} n_F(E_{\gamma} - \mu), \quad (7)$$

where

$$n_F(E) = \frac{1}{e^{\beta E} + 1} \quad (8)$$

is the Fermi function at zero chemical potential. Charge neutrality means that  $N_{e^-} = qN$ . Inverting Eq. (7) gives the chemical potential  $\mu$  as a function of  $\beta$ ,  $N_{e^-}$ , and  $\mathcal{E}$ .

### B. Generalities on the Wannier-Stark ladder energy spectrum for an infinite system

In order to conduct a statistical mechanics approach, we need to know what kind of energy spectrum we have to

deal with. The case of an electric field in a tight-binding Hamiltonian is delicate as the spectrum is unbounded: there are states of infinite positive and negative energies. We consider a one-dimensional tight-binding Hamiltonian  $H_0$  describing the electrons in a crystal, in which we introduce the electric field  $\mathcal{E}$  using the scalar gauge  $A_0 = -\mathcal{E}X$  [21]. The full Hamiltonian is then

$$H = H_0 + \mathcal{E}X, \quad (9)$$

where  $X$  is the position operator (see Appendix A). As  $H_0$  is invariant under translation of one unit cell, it commutes with the translation operator  $T_a$  ( $a = 1$  is the size of the unit cell) such that  $T_a^{-n} H_0 T_a^n = H_0$  for any integer  $n$ .

By contrast the position operator verifies the ‘‘ladder’’ identity  $T_a^{-n} X T_a^n = X + n\mathbb{1}$ . As a consequence, if  $|\psi\rangle$  is an eigenvector of  $H$  with eigenvalue  $E(\mathcal{E})$ , then successive application of the translation operator implies that  $T_a^n |\psi\rangle$  is also an eigenvector of  $H$  with eigenvalue  $E(\mathcal{E}) + n\mathcal{E}$ . Defining  $|E\rangle$  as the eigenstate such that  $-1/2 \leq X(\mathcal{E}) = \langle E|X|E\rangle < 1/2$  and  $E(\mathcal{E})$  the corresponding eigenenergy, we deduce that, for any integer  $n$ , the translated state

$$|E_n\rangle = T_a^n |E\rangle \quad (10)$$

is an eigenstate of energy

$$E_n(\mathcal{E}) = E(\mathcal{E}) + \mathcal{E}n \quad (11)$$

with a mean position

$$X_n(\mathcal{E}) = \langle E_n|X|E_n\rangle = X(\mathcal{E}) + n \quad (12)$$

translated by  $n$  unit cells. The integer  $n$  labels the unit cells (in a finite system it takes  $N$  values). Equations (10), (11), and (12) are the essential characteristics of the so-called Wannier-Stark ladder (WSL) [8]. The eigenstates are called Wannier-Stark (WS) states. A simple counting argument shows that if the tight-binding spectrum at zero field comprises  $N_b$  bands, each containing  $N$  states, then the full spectrum of the Hamiltonian  $H$  is made by  $N_b$  such ladders that will be labeled by an index  $\alpha = 1, \dots, N_b$ . This can be schematically written as

$$\begin{aligned} |E_n^\alpha\rangle &= T_a^n |E^\alpha\rangle, \\ E_n^\alpha(\mathcal{E}) &= E^\alpha(\mathcal{E}) + \mathcal{E}n, \\ X_n^\alpha(\mathcal{E}) &= X^\alpha(\mathcal{E}) + n, \end{aligned} \quad (13)$$

where hereafter the quantities  $|E^\alpha\rangle$ ,  $E^\alpha(\mathcal{E})$ , and  $-1/2 \leq X^\alpha(\mathcal{E}) < 1/2$  are referred to as respectively the center state, the energy center, and the position center of the  $\alpha$  ladder.

The validity of properties (13) necessarily implies that the WS states  $|E_n^\alpha\rangle$  are localized states such that we can also associate a localization length  $\xi_\alpha(\mathcal{E})$  to each WSL. An estimation of this localization length  $\xi_\alpha$  is obtained by computing the mean-squared spreading of WS states around their mean position  $X_n^\alpha$ :

$$\begin{aligned} \xi_\alpha^2 &= \langle E_n^\alpha|(X - X_{n,\alpha})^2|E_n^\alpha\rangle \\ &= \langle E_n^\alpha|(H_0 - E_\alpha^0)^2|E_n^\alpha\rangle/\mathcal{E}^2, \end{aligned} \quad (14)$$

where

$$E_0^\alpha(\mathcal{E}) \equiv \langle E_n^\alpha|H_0|E_n^\alpha\rangle = \langle E^\alpha|H_0|E^\alpha\rangle, \quad (15)$$

such that we can write

$$E^\alpha(\mathcal{E}) = E_0^\alpha(\mathcal{E}) + \mathcal{E}X^\alpha. \quad (16)$$

The quantity  $E_0^\alpha = \langle E^\alpha|H_0|E^\alpha\rangle$  should not be mistaken for  $E_{n=0}^\alpha = E^\alpha = \langle E^\alpha|H|E^\alpha\rangle$  (they only agree at  $\mathcal{E} = 0$ ). We stress that for finite electric field  $\mathcal{E}$ , the WSL states  $|E_n^\alpha\rangle$  of a given ladder  $\alpha$  are a general linear combination that mixes Bloch states  $|E^\beta(k)\rangle$  of different band indices  $\beta = 1, \dots, N_b$  [22]. The above expression of the localization length shows that it can be estimated as  $\xi_\alpha \sim W/\mathcal{E}$ , where  $W$  is the bandwidth. This agrees with the usual semiclassical expression for the size of Bloch oscillations; see, e.g., [23].

Next we will focus on the thermodynamics of the unbounded Wannier-Stark spectrum and come back later to the exact expression of the energies  $E^\alpha(\mathcal{E})$ . For now, it is sufficient to know that they exist and depend on the electric field: the major difficulty of the statistical mechanics approach, namely the unbounded spectrum, is what we focus on next.

### C. Statistical mechanics of the Wannier-Stark ladder: Local chemical potential

The presence of an energy spectrum with no lower bound leads to an unstable ground state. In a large but finite system, it means that all the electrons are on one side of the crystal. Such a ground state is drastically different from the zero-field ground state: the zero-field ground state is translationally invariant and charge neutral at the scale of a unit cell. When turning on the field, the zero-field ground state happens to be a metastable state of the system: it is known that Zener tunneling from this state to the finite-field ground state gives rise to a finite lifetime of the metastable state. However this lifetime happens to be large as the probability of Zener tunneling  $\sim \exp(-\text{Cst} \times \text{gap}^2/\mathcal{E})$  is exponentially suppressed when the electric field goes to zero. From a statistical physics point of view, this means that the ergodicity time is much larger than the measurement time: the true ground state is not reached in practice and the system only explores states that are closely related to the zero-field ground state. On physical grounds, the polarization and susceptibility of the insulating crystal are related to how the zero-field ground state evolves into another translationally invariant and charge-neutral (at the scale of the unit cell) state when the field is turned on. See, for example, the discussion in [14] and references therein.

Following this line, we ought to enforce translational invariance when we compute the free energy of the electrons in a small but finite electric field. Due to the structure of the spectrum, which is a set of WSL  $E_n^\alpha$  whose states within a ladder are related by the translation operator, enforcing translational invariance is simple: each rung  $n$  (taking  $N$  values) of a given ladder  $\alpha$  (fixed) should be equally populated. While imposing this constraint is not an easy task when working with the free energy, the grand-canonical ensemble possesses a useful tool in order to do that: the chemical potential. This quantity is a Lagrange multiplier that enforces a specific average number of electrons. We now introduce one such Lagrange multiplier  $\mu_n(\mathcal{E})$  in each unit cell, tuned such that all the rungs of a single ladder are equally populated, and such that the total number of electrons still ensures the overall charge neutrality. In other words, we impose charge neutrality

not only globally, but also *locally*, in each unit cell. Within this approach the grand potential (6) becomes

$$\Omega(\{\mu_n\}, \mathcal{E}, \beta) = -\frac{1}{\beta} \sum_{n,\alpha} \ln(1 + e^{-\beta[E_n^\alpha(\mathcal{E}) - \mu_n(\mathcal{E})]}) \quad (17)$$

and the constraint is realized for a local chemical potential

$$\mu_n(\mathcal{E}) = \mathcal{E}n + \tilde{\mu}(\mathcal{E}) = \mu^{(0)} + \mathcal{E}n + \mathcal{E}\mu^{(1)} + O(\mathcal{E}^2), \quad (18)$$

where  $\mu^{(0)}$  is the value of the chemical potential that realizes the charge neutrality at zero field. Upon translation of all the energies, it can be set to 0 (choice in the zero of energy). The term  $\mathcal{E}n$  enforces that all rungs of a single ladder are populated equally, and  $\mu^{(1)}$  is the first-order correction to  $\mu^{(0)}$ . In Appendix B, we show that

$$\mu^{(1)} = \frac{\sum_\alpha (\partial_\mathcal{E} E^\alpha) n'_F(\overline{E^\alpha})}{\sum_\alpha n'_F(\overline{E^\alpha})}, \quad (19)$$

where we have defined the average energy of the  $\alpha$  Bloch band as  $\overline{E^\alpha} \equiv \int_{-\pi}^{\pi} \frac{dk}{2\pi} E^\alpha(k)$  [it is also the zero-field limit of the center of the  $\alpha$  ladder  $E^\alpha(\mathcal{E} \rightarrow 0)$ ],  $\partial_\mathcal{E} E^\alpha \equiv \partial_\mathcal{E} E^\alpha(\mathcal{E})|_{\mathcal{E}=0}$ . Here we only derived the zeroth and first order in  $\mathcal{E}$  of the chemical potentials  $\mu_n(\mathcal{E})$ : the next orders are not needed if we are only interested in the polarization and the susceptibility as shown in Appendix B.

Once the constraint is imposed, the free energy of the electrons is

$$F_{e^-}(N_{e^-}, \mathcal{E}, \beta) \approx \sum_n q\mu_n - \frac{1}{\beta} \sum_{n,\alpha} \ln(1 + e^{-\beta[E^\alpha(\mathcal{E}) - \mathcal{E}\mu^{(1)}]}), \quad (20)$$

which replaces (5) in the case of a local chemical potential. In the previous equation, we used that  $\sum_n q = qN = N_{e^-}$ . We then add the free energy of the ions (we recall that they are taken as static charges in a scalar potential), see Eq. (3), to obtain the total free energy of the system

$$F(\mathcal{E}) \approx \sum_n q\mathcal{E}\mu^{(1)} - \frac{1}{\beta} \sum_{n,\alpha} \ln(1 + e^{-\beta[E^\alpha(\mathcal{E}) - \mathcal{E}\mu^{(1)}]}). \quad (21)$$

Note that the contribution of ions cancels the  $\mathcal{E}n$  term coming from  $\mu_n$  in the total free energy  $F$ .

We can now express the polarization [from its thermodynamic definition Eq. (1)] as

$$\mathcal{P} = -\sum_\alpha n_F(\overline{E^\alpha}) \partial_\mathcal{E} E^\alpha \quad (22)$$

as well as the susceptibility as

$$\chi = -\sum_\alpha [n_F(\overline{E^\alpha}) \partial_\mathcal{E}^2 E^\alpha + n'_F(\overline{E^\alpha}) (\partial_\mathcal{E} E^\alpha)^2] + \left( \sum_\alpha n'_F(\overline{E^\alpha}) \partial_\mathcal{E} E^\alpha \right)^2 \left( \sum_\alpha n'_F(\overline{E^\alpha}) \right)^{-1}. \quad (23)$$

Note that the above two formulas only require the knowledge of the energy spectrum [more precisely the center of the WSL  $E^\alpha(\mathcal{E})$ ] at finite electric field in the limit of vanishing field. Eigenstates are not involved.

To summarize, the true ground state in the presence of a weak electric field is not reached during an experimentally accessible time due to exponentially suppressed Zener tunneling from the zero-field ground state to the finite-field ground state. We therefore made the assumption that instead of exploring the full phase space, the system in the presence of a weak electric field only explores the space of translationally invariant configurations (which are the configurations that are closest to the zero-field ground state). Using this assumption, we derived the free energy and then obtained the polarization and susceptibility.

In Appendix C, we explore a toy model in which we turn back to a single global chemical potential and add interactions between electrons in the form of an electrostatic cost for charge inhomogeneity. While the derivation is model specific, it shows that the polarization and the susceptibility obtained with a global chemical potential and for strong interactions agree with that obtained with a local chemical potential and no interactions. In other words, the main effect of electrostatic interactions is to enforce electroneutrality within each unit cell.

#### D. Perturbative-like expansion of the Wannier-Stark ladder energies

The WSL are generated by the translation operator  $T_a$ . We call  $|E_n^\alpha\rangle$  a WS state belonging to the  $\alpha$ th WSL and with center position in the  $n$ th unit cell. This means that we can decompose the Hilbert space in orthogonal subspaces (labeled by  $\alpha$ ) which are spanned by the families  $\{|E_n^\alpha\rangle, n\}$ , with  $T_a|E_n^\alpha\rangle = |E_{n+1}^\alpha\rangle$  and  $H|E_n^\alpha\rangle = [E^\alpha(\mathcal{E}) + \mathcal{E}n]|E_n^\alpha\rangle$ . Such families are stable under the translation operator, span subspaces that are orthogonal to one another, and hence block-diagonalize the Hamiltonian. Reciprocally, if we find sufficiently many such subspaces (that is, as many subspaces as there are ladders in the finite-field spectrum, or Bloch bands in the zero-field spectrum) then each subspace is the subspace spanned by a single WSL: the Hamiltonian is block-diagonal and every block is part of a single ladder. Using the properties of the WSL spectrum, and taking a normalized  $|\psi^\alpha\rangle$  that verifies  $\langle\psi^\alpha|T_a|\psi^\alpha\rangle = 0$  (it does not necessarily need to be a WS state) in one of these subspaces, we have that the center of the  $\alpha$  ladder is

$$\lim_{N \rightarrow \infty} \frac{1}{N} \sum_{n=-(N-1)/2}^{(N-1)/2} \langle T_a^n \psi^\alpha | H | T_a^n \psi^\alpha \rangle = E^\alpha(\mathcal{E}), \quad (24)$$

where  $N$ , assumed to be odd, is the number of unit cells in the crystal. We assume here that the state  $|\psi^\alpha\rangle$  is localized in the  $n = 0$  unit cell, i.e.,  $-\frac{1}{2} \leq \langle\psi^\alpha|X|\psi^\alpha\rangle < \frac{1}{2}$ . If it is not the case, we apply the translation operator  $T_a$  sufficiently many times to translate the state back to the  $n = 0$  unit cell.

To build a perturbative-like treatment, we use the Wannier states (or ‘‘Wannier functions’’)  $|w_n^\alpha\rangle$  defined at zero electric field and which constitute a basis of the Hilbert space. For isolated bands, they are defined as

$$|w_n^\alpha\rangle = \int_{\text{BZ}} \frac{dk}{\sqrt{2\pi}} e^{-ikn} |E^\alpha(k)\rangle, \quad (25)$$

where  $|E^\alpha(k)\rangle$  are the Bloch states for the band  $\alpha$  of the zero-field Hamiltonian [ $H_0|E^\alpha(k)\rangle = E^\alpha(k)|E^\alpha(k)\rangle$ ]. The Wannier

functions have several interesting properties: (i) they block-diagonalize the zero-field Hamiltonian, and there are as many blocks as there are bands; (ii) for fixed  $\alpha$ , the family  $\{|w_n^\alpha\rangle, n\}$  is invariant under translation, i.e.,  $T_a|w_n^\alpha\rangle = |w_{n+1}^\alpha\rangle$ ; (iii) for suitable choices of the phase of the Bloch eigenvectors [24], they are localized and as such, the matrix elements of the position operator are well defined in the Wannier basis. Despite their name, the Wannier functions are not the WS states (they are not eigenstates of the Hamiltonian in the presence of an electric field). However their properties match those required by the presence of a WSL; hence we will use them as the starting point of our perturbative expansion. In a loose sense, Wannier functions  $|w_n^\alpha\rangle$  are the  $\mathcal{E} \rightarrow 0$  limit of WS states  $|E_n^\alpha\rangle$ .

We look for orthonormalized vectors  $|n, \alpha, \mathcal{E}\rangle$  such that (i)  $|n, \alpha, \mathcal{E} = 0\rangle \equiv |w_n^\alpha\rangle$  the Wannier functions; (ii) for any given value of the field,  $T_a|n, \alpha, \mathcal{E}\rangle = |n + 1, \alpha, \mathcal{E}\rangle$  so as to enforce the translational invariance of the family; and (iii)  $\langle m, \alpha, \mathcal{E}|H|n, \beta, \mathcal{E}\rangle = 0$  for all  $\alpha \neq \beta$  which ensures that the Hamiltonian is block-diagonalized. We do not require that the  $|n, \alpha, \mathcal{E}\rangle$  are eigenstates of the Hamiltonian in the presence of a field (i.e., WS states), as this is not needed in order to recover the value of  $E^\alpha(\mathcal{E})$ .

Due to the translational invariance requirement, we can generically write the  $|n, \alpha, \mathcal{E}\rangle$  as

$$|n, \alpha, \mathcal{E}\rangle = |w_n^\alpha\rangle + \mathcal{E} M_d(\mathcal{E})^{\beta\alpha} |w_{n+d}^\beta\rangle, \quad (26)$$

where a sum over repeated indices  $\beta$  and  $d$  is assumed. We can interpret the matrices  $M_d(\mathcal{E})$  as the Fourier coefficients of a periodic function  $M(k, \mathcal{E})$ , where  $k$  can be thought of as a reciprocal vector in the first Brillouin zone (BZ). The states  $|n, \alpha, \mathcal{E}\rangle$  need to be normalized and orthogonal to one another, and this condition is given by

$$[\mathbb{1} + \mathcal{E} M(k, \mathcal{E})]^\dagger [\mathbb{1} + \mathcal{E} M(k, \mathcal{E})] = \mathbb{1}, \quad (27)$$

and for  $\alpha \neq \beta$ , they must be orthogonal for the Hamiltonian, which is a condition expressed by

$$[\mathbb{1} + \mathcal{E} M(k, \mathcal{E})]^\dagger H(k) [\mathbb{1} + \mathcal{E} M(k, \mathcal{E})] = 0$$

$$\text{with } H(k) = \left[ E(k) + e\mathcal{E}\mathcal{A}(k) + e\mathcal{E}\frac{i}{2}(\overleftarrow{\partial}_k - \overrightarrow{\partial}_k) \right], \quad (28)$$

where  $E(k)$  is the matrix of the Bloch energies  $E^{\alpha\beta}(k) = \delta^{\alpha\beta} E^\alpha(k)$ ,  $\overleftarrow{\partial}_k$  (resp.  $\overrightarrow{\partial}_k$ ) acts as a derivative on all the terms that are to its left (resp. right), and  $\mathcal{A}(k)$  is the matrix of Berry connection

$$\mathcal{A}^{\alpha\beta}(k) = \text{Im} \left\langle u^\alpha(k) \left| \frac{\partial}{\partial k} u^\beta(k) \right. \right\rangle. \quad (29)$$

The cell-periodic Bloch state  $|u^\alpha(k)\rangle$  [eigenstate of the zero-field Bloch Hamiltonian  $H_0(k) = e^{-ikX} H_0 e^{ikX}$ ] is related to the Bloch eigenvector  $|E^\alpha(k)\rangle$  by

$$\langle n, i | E^\alpha(k) \rangle = e^{ik(n+x_i)} u_i^\alpha(k), \quad (30)$$

where  $\langle n, i | E^\alpha(k) \rangle$  is the amplitude of the Bloch eigenvector on the site  $i$  of the unit cell  $n$ . The position operator (see Appendix A) is such that  $X = \sum_{n,i} (n + x_i) |n, i\rangle \langle n, i|$ , where  $n$  is the position of the unit cell ( $n$  takes  $N$  values) and  $x_i$  is the position within the unit cell (or intracell position, with  $i$  taking  $N_b$  values).

These two constraints allow us to find  $M(k, \mathcal{E})$  order-by-order in the electric field, and the knowledge of  $M(k, \mathcal{E})$  allows us to take the trace on a single block of the Hamiltonian to get

$$\begin{aligned} E^\alpha(\mathcal{E}) &= \int_{\text{BZ}} \frac{dk}{2\pi} \left[ E^\alpha(k) + \mathcal{E} \mathcal{A}^{\alpha\alpha}(k) \right. \\ &\quad \left. - \mathcal{E}^2 \sum_{\beta \neq \alpha} \frac{\mathcal{A}^{\alpha\beta}(k) \mathcal{A}^{\beta\alpha}(k)}{E^\beta(k) - E^\alpha(k)} + \dots \right] \\ &= \overline{E^\alpha} + \mathcal{E} \overline{\mathcal{A}^{\alpha\alpha}} - \mathcal{E}^2 \sum_{\beta \neq \alpha} \int_{\text{BZ}} \frac{\mathcal{A}^{\alpha\beta} \mathcal{A}^{\beta\alpha}}{E^\beta - E^\alpha}. \quad (31) \end{aligned}$$

We indicate an average over the BZ by  $\overline{f} \equiv \int_{\text{BZ}} f \equiv \int_{\text{BZ}} \frac{dk}{2\pi} f(k)$ , where  $f(k)$  is any function of  $k$ .

In the zeroth order, one recognizes the mean value  $\overline{E^\alpha}$  of the energy of the  $\alpha$ th Bloch band, a result already found in [8]. This is also the average energy of the  $n = 0$  Wannier state  $\langle w_0^\alpha | H_0 | w_0^\alpha \rangle$  in the absence of an electric field.

The first-order term  $\overline{\mathcal{A}^{\alpha\alpha}} = \frac{Z^\alpha}{2\pi}$  is proportional to the Zak phase  $Z^\alpha$  [6] of the band and first appeared in [9]. It is also related to the position of the  $n = 0$  Wannier state (also known as the Wannier center)  $\langle w_0^\alpha | X | w_0^\alpha \rangle = Z^\alpha / (2\pi)$ . In other words the two first terms are simply the expectation value of the total energy in the Wannier state  $E^\alpha(\mathcal{E}) = \langle w_0^\alpha | (H_0 + \mathcal{E}X) | w_0^\alpha \rangle + O(\mathcal{E}^2)$ . Although this is strongly reminiscent of first-order perturbation theory, below we argue that this is actually not the case.

These two first terms of the WSL can also be obtained by the semiclassical quantization of Bloch oscillations; see for instance [10,11].

Surprisingly, the second-order term in (31) is not simply a second-order perturbation formula like  $\sum_{\beta \neq \alpha} \frac{|\langle w_0^\alpha | X | w_0^\beta \rangle|^2}{E^\alpha - E^\beta}$  because the number and position of BZ integrals are not matching.

It is important to realize that the expansion of the WSL in powers of the field is not perturbative in the usual sense. Indeed, at zeroth order, the energy is the mean value of the energy of the Bloch band, which is not an eigenvalue of the Hamiltonian in the absence of the electric field. Also, the WS states do not coincide with the Bloch eigenstates in the zero-field limit. A crucial point is therefore to realize that in order to obtain the electric response of the crystal even in the low-field limit, one has to use  $\lim_{\mathcal{E} \rightarrow 0} E_n^\alpha(\mathcal{E}) = \overline{E^\alpha}$  instead of  $E^\alpha(k)$  as the energy spectrum suffers from a discontinuity at  $\mathcal{E} = 0$ .

When choosing the Wannier functions  $|w_n^\alpha\rangle$ , we mentioned a phase (or gauge) choice: the Bloch eigenvectors  $|E^\alpha(k)\rangle$  may be multiplied by an arbitrary phase  $e^{i\phi^\alpha(k)}$ . Besides the fact that  $e^{i\phi^\alpha(k)}$  has to be smooth and periodic over the Brillouin zone, there are no other restrictions. Indeed, if the aforementioned phase factor were not periodic or smooth, we would lose the localization properties of the Wannier functions. On the one hand, upon a gauge change, the off-diagonal Berry connection  $\mathcal{A}^{\alpha\beta}(k)$  is modified by the phase factor  $e^{-i[\phi^\alpha(k) - \phi^\beta(k)]}$ ; hence the product  $\mathcal{A}^{\alpha\beta}(k) \mathcal{A}^{\beta\alpha}(k)$  is gauge invariant, and so is the second order of the WSL energies. On the other hand, the diagonal Berry connection  $\mathcal{A}^{\alpha\alpha}(k)$  is

modified by the total derivative  $\partial_k \phi^\alpha$  whose integral over the Brillouin zone is quantized to an integer (which counts how many times the phase winds around the origin). But remember that we have previously required that the vector  $|n = 0, \alpha, \mathcal{E}\rangle$  is located in the  $n = 0$  unit cell, which in turn imposes that the Wannier function  $|w_0^\alpha\rangle$  has its center in the zeroth unit cell. Transforming to a gauge where  $e^{i\phi^\alpha(k)}$  winds one extra time around the origin amounts to translation by one unit cell all the Wannier functions of the band  $\alpha$ . The spectrum being unbounded by both above and below, an unambiguous definition of the WSL imposes that  $|w_0^\alpha\rangle$  must be situated in the zeroth unit cell. Translating it back amounts to effectively canceling the extra winding of the phase. The above expression is hence gauge invariant. It is actually well known that the Zak phase is gauge-invariant despite its being an open-path geometric phase; see, for example, the nice discussion in Ref. [10]. Note, however, that the Zak phase depends on the choice of position origin. Here, we have made the choice that the charge-weighted barycenter of the ions  $\bar{x} = 0$  in the  $n = 0$  unit cell.

### E. Full expression of the polarization and the susceptibility

Before giving the full expressions of the polarization and of the susceptibility—i.e., essentially inserting (31) in (22) and (23)—we recall the hypotheses we have used in their derivation: (i) we restrict ourselves to uniform filling of the WSL states, which is a valid approximation at low electric field (suppressed Zener tunneling) and low temperature (both with respect to the gap and to the electrostatic interaction energy, i.e., costly charge inhomogeneities); (ii) the origin of position is taken as the charge-weighted barycenter of the ions in the  $n = 0$  unit cell; (iii) the phases of the Bloch eigenvectors are such that the Wannier functions  $|w_0^\alpha\rangle$  are localized in the zeroth unit cell.

With these hypotheses, using the perturbative expression of the WSL energies found in the previous section and restoring all constants that were previously set to 1, we reach

$$\mathcal{P} = -\frac{e}{a} \sum_{\alpha} n_F(\bar{E}^\alpha) \bar{\mathcal{A}}^{\alpha\alpha} = -e \sum_{\alpha} n_F(\bar{E}^\alpha) \frac{Z^\alpha}{2\pi} \quad (32)$$

and

$$\begin{aligned} \chi &= \frac{e^2}{a} \sum_{\alpha, \beta \neq \alpha} n_F(\bar{E}^\alpha) \int_{\text{BZ}} \frac{\mathcal{A}^{\alpha\beta} \mathcal{A}^{\beta\alpha}}{E^\beta - E^\alpha} \\ &\quad - \frac{e^2}{a} \sum_{\alpha} n'_F(\bar{E}^\alpha) \bar{\mathcal{A}}^{\alpha\alpha^2} + \frac{e^2}{a} \frac{[\sum_{\alpha} n'_F(\bar{E}^\alpha) \bar{\mathcal{A}}^{\alpha\alpha}]^2}{\sum_{\alpha} n'_F(\bar{E}^\alpha)}, \end{aligned} \quad (33)$$

where  $\bar{f} \equiv a \int_{\text{BZ}} \frac{dk}{2\pi} f(k)$ . At zero temperature, we recover the well-known formula of King-Smith, Vanderbilt, and Resta [2,4] for the polarization

$$\mathcal{P} = -\frac{e}{a} \sum_{\alpha \text{ occ.}} \bar{\mathcal{A}}^{\alpha\alpha} = -e \sum_{\alpha \text{ occ.}} \frac{Z^\alpha}{2\pi} \quad (34)$$

and a recent result of Swiecki and Sipe [19] for the susceptibility

$$\chi = \frac{e^2}{a} \sum_{\alpha \text{ occ.}} \sum_{\beta \neq \alpha} \int_{\text{BZ}} \frac{\mathcal{A}^{\alpha\beta} \mathcal{A}^{\beta\alpha}}{E^\beta - E^\alpha} \geq 0. \quad (35)$$

The susceptibility is positive, in agreement with a general argument [25]. In the above formula, the sum over  $\alpha$  is restricted to occupied bands.

### F. Quantum of polarization

At zero temperature, the electric polarization of a bulk crystal is defined up to a *quantum of polarization*, which is an integer in the proper units [4]. The *quantum of polarization* means that from the bulk point of view, the polarization cannot be defined in an absolute manner: as long as the surface of the crystal is not specified, we can only get the difference of polarization between two configurations of the crystal. For instance one can access unambiguously the change of polarization upon a change of the applied stress by only looking at the bulk. Then an adiabatic pumping argument shows that two identical configurations in the bulk can have a difference of polarization which is an integer. Hence an absolute value of the bulk polarization has to be defined up to an integer.

In the above formula for the polarization (32), the quantities which are defined up to an integer are the Wannier centers  $\bar{\mathcal{A}}^{\alpha\alpha}$ , meaning that the finite-temperature formula we give does not obviously possess this *quantum of polarization*. To recover it, we need to recall that the spectrum is made of several WSL of the form  $E^\alpha(\mathcal{E}) + \mathcal{E}n$ , and that each rung corresponds to a localized eigenstate. To unambiguously define the different energies  $E^\alpha(\mathcal{E})$ , we have imposed that the  $n = 0$  eigenstates of the different ladders belong to the same unit cell: it would make no sense to compare the energy of a state that is located in the  $m$ th unit cell to the energy of one other located in the  $n$ th unit cell, as the latter would feel an extra electric potential  $\mathcal{E}(m - n)$ , hence have its energy shifted by  $\mathcal{E}(m - n)$  with respect to the former eigenstate. Now, to change the value of the Wannier center  $\bar{\mathcal{A}}^{\alpha\alpha}$  by one, we need to make a gauge choice in which the phase of the Bloch eigenvectors winds an extra time around the origin when we go from one side of the Brillouin zone to the other. But this extra winding amounts to moving the WS states of the ladder  $\alpha$  by one unit cell, which we cannot do unless we also move the other ladders, as we would then compare the energies of the different ladders by comparing the energy of states in different unit cells.

So if we change the Wannier center of one band  $\bar{\mathcal{A}}^{\alpha\alpha}$  by the integer  $p$ , then we must change it for all the bands at once, and the change of polarization we get would then be

$$\sum_{\alpha} p n_F(\bar{E}^\alpha) = p \quad (36)$$

and we therefore recover the *quantum of polarization* also at finite temperature. This fact also lead to the gauge invariance of the susceptibility  $\chi$  at finite temperature. Indeed, the quantity

$$-\sum_{\alpha} n'_F(\bar{E}^\alpha) \bar{\mathcal{A}}^{\alpha\alpha^2} + \frac{[\sum_{\alpha} n'_F(\bar{E}^\alpha) \bar{\mathcal{A}}^{\alpha\alpha}]^2}{\sum_{\alpha} n'_F(\bar{E}^\alpha)} \quad (37)$$

does not change when we shift simultaneously the Wannier centers  $\bar{\mathcal{A}}^{\alpha\alpha}$ .

Along with the presence of a quantum of polarization, the polarization and susceptibility should be invariant both under a change of the origin of position and under a change of the unit

cell. The former invariance is a direct consequence of charge neutrality and is easily checked. The latter is harder to verify because the Berry connection does not trivially change under a change of the unit cell. We did check it for every example we considered, however.

### III. TOY MODELS: ANALYTICS VERSUS NUMERICS

To check our analytical predictions, we now consider two toy models that can be solved exactly either analytically or numerically.

#### A. Chain of uncoupled dimers

The first model is an infinite chain of uncoupled dimers, i.e., a chain of molecules made of two different atoms  $A$  and  $B$ , each with a single orbital. Atoms are located at  $x_A + n$  and  $x_B + n$ , where  $n$  is an integer (we set the lattice spacing  $a = 1$ ). Each dimer is characterized by an intradimer hopping amplitude  $t = 1$  and on-site energies  $\pm\Delta$  for the two sites forming the dimer. There are no interdimer hopping amplitudes, which greatly simplifies the problem. In this case, it is obvious that the electric response of the crystal is identical to that of a single dimer, which is easily computed. For the  $n$ th dimer [and taking the mean ion position in the  $n = 0$  unit cell as the origin ( $x_A + x_B)/2 = 0$ ] the Hamiltonian in an electric field reads

$$H_{\mathcal{E}} = \begin{pmatrix} \Delta + \frac{x_A - x_B}{2} \mathcal{E} & 1 \\ 1 & -\Delta - \frac{x_A - x_B}{2} \mathcal{E} \end{pmatrix} + n\mathcal{E}. \quad (38)$$

The model depends on two parameters ( $\Delta$  and  $x_A - x_B$ ) and on the applied electric field  $\mathcal{E}$ . The eigenenergies are

$$E_n^{\pm}(\mathcal{E}) = E^{\pm}(\mathcal{E}) + n\mathcal{E} = \pm \sqrt{\left(\Delta + \frac{x_A - x_B}{2} \mathcal{E}\right)^2 + 1} + n\mathcal{E}, \quad (39)$$

which are indeed two WSL labeled by  $\alpha = \pm$ . Expanding to second order in the electric field, we find that the WSL centers are

$$E^{\alpha}(\mathcal{E}) \approx \alpha \sqrt{\Delta^2 + 1} + \alpha \frac{(x_A - x_B)\Delta}{2\sqrt{\Delta^2 + 1}} \mathcal{E} + \alpha \frac{(x_A - x_B)^2}{8(\Delta^2 + 1)^{3/2}} \mathcal{E}^2. \quad (40)$$

This should be compared to the perturbative-like result given in Eq. (31) and involving the dispersion relation and the diagonal and off-diagonal Berry connections. In order to compute the latter, we need the zero-field Bloch Hamiltonian:

$$H_0(k) = e^{-ikX} H_0 e^{ikX} = \begin{pmatrix} \Delta & e^{-ik(x_A - x_B)} \\ e^{ik(x_A - x_B)} & -\Delta \end{pmatrix}. \quad (41)$$

The energy bands have a flat dispersion relation  $E^{\alpha}(k) = \alpha \sqrt{\Delta^2 + 1}$  and therefore  $\overline{E^{\alpha}} = \alpha \sqrt{\Delta^2 + 1}$  which matches the zeroth order in the WSL ladder (40). The cell-periodic parts of the Bloch states are

$$\begin{aligned} |u^+(k)\rangle &= \left( \cos \frac{\theta}{2} e^{-i\frac{\phi}{2}}, \sin \frac{\theta}{2} e^{i\frac{\phi}{2}} \right), \\ |u^-(k)\rangle &= \left( -\sin \frac{\theta}{2} e^{-i\frac{\phi}{2}}, \sin \frac{\theta}{2} e^{i\frac{\phi}{2}} \right) \end{aligned} \quad (42)$$

[in the periodic gauge where  $|E^{\alpha}(k + 2\pi)\rangle = |E^{\alpha}(k)\rangle \Rightarrow u_i^{\alpha}(k + 2\pi) = e^{-2i\pi x_i} u_i^{\alpha}(k)$ ], and

$$\cos \theta = \frac{\Delta}{\sqrt{\Delta^2 + 1}}, \quad \sin \theta = \frac{1}{\sqrt{\Delta^2 + 1}}, \quad \phi = k(x_A - x_B). \quad (43)$$

The diagonal Berry connection is also independent of  $k$ :

$$\overline{\mathcal{A}^{\alpha\alpha}} = \mathcal{A}^{\alpha\alpha} = \alpha \frac{1}{2} (\partial_k \phi) \cos \theta = \alpha \frac{1}{2} (x_A - x_B) \frac{\Delta}{\sqrt{\Delta^2 + 1}}, \quad (44)$$

and we recognize the first order of the WSL ladder of (40). Finally, the off-diagonal Berry connection is

$$\mathcal{A}^{-+} = \mathcal{A}^{+-} = -\frac{1}{2} (\partial_k \phi) \sin \theta, \quad (45)$$

so that the second order of the perturbative expansion is

$$\sum_{\beta \neq \alpha} \frac{\mathcal{A}^{\alpha\beta} \mathcal{A}^{\beta\alpha}}{E^{\alpha}(k) - E^{\beta}(k)} = \alpha \frac{(x_A - x_B)^2}{8(\Delta^2 + 1)^{3/2}}, \quad (46)$$

recovering the second order of Eq. (40). The perturbative-like expansion of the WSL energies is therefore correct for the chain of dimers. Thus it can be safely used in the thermodynamic derivation of the electric polarization and susceptibility. Note also that in the case of a chain of decoupled dimers, the use of a local chemical potential is clearly justified as each dimer is independently half filled even in the presence of an electric field.

#### B. Rice-Mele chain

In order to study solitons in polymer chains such as polyacetylene, Rice and Mele proposed a tight-binding model of a dimerized chain with staggered on-site potential [26]. It is a standard toy model in the study of the electric polarization of crystals [2,11].

The chain is made of an alternating succession of sites  $A$  and  $B$  occupied by cations and carrying each half an electron charge  $e/2$  (this is related to considering spinless electrons). The sites are equally spaced so that  $x_A - x_B = \frac{1}{2} + n$ , where  $n$  is an integer. The Bloch Hamiltonian is given by

$$H_0(k) = \begin{pmatrix} \Delta & 2t(\cos \frac{k}{2} - i\delta \sin \frac{k}{2}) \\ 2t(\cos \frac{k}{2} + i\delta \sin \frac{k}{2}) & -\Delta \end{pmatrix}, \quad (47)$$

where  $\pm\Delta$  are the on-site energies on the two sublattices and the two hopping amplitudes are  $t(1 \pm \delta)$ . In the following we set  $t = 1$  in addition to  $a = 1$  and  $e = 1$ . The chain of uncoupled dimers studied in the previous section corresponds to  $\delta = 1$  and  $t = \frac{1}{2}$  while  $\Delta \neq 0$  and  $x_A - x_B$  should not be restricted to  $\frac{1}{2} + n$ . The energy spectrum at zero electric field is

$$E^{\pm}(k) = \pm \sqrt{\Delta^2 + 4 \cos^2 \frac{k}{2} + 4\delta^2 \sin^2 \frac{k}{2}}. \quad (48)$$

For simplicity and following [2], we set  $\Delta = \Delta_0 \cos \theta$  and  $\delta = \delta_0 \sin \theta$  and use the single angular parameter  $\theta$  to tune the model by choosing  $\Delta_0 = \delta_0 = 0.6$  as an example.

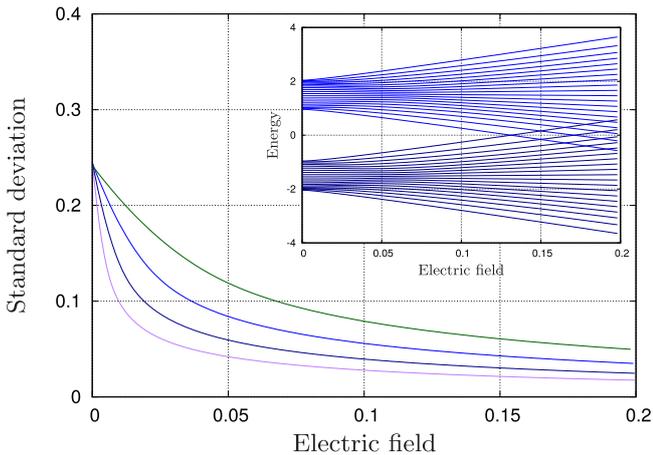


FIG. 1. Inset: Spectrum of the Rice-Mele chain for  $\theta = \frac{3}{4}\pi$ , in the presence of an electric field. For readability, the spectrum corresponds to a small chain of 20 unit cells. At zero field, the chain is a two-band insulator, while at finite field, the bands evolve into a WSL with energies  $E_n^\pm(\mathcal{E}) = \bar{E}^\pm + \mathcal{E}n + \mathcal{E}\mathcal{A}^{\pm\pm} + \dots$ ; see Eq. (31). Main panel: Standard deviation of the numerical energy levels with respect to the analytical levels of an infinite chain [up to second order; see Eq. (31)], i.e.,  $\sqrt{\frac{1}{N} \sum_n (E_{n,\text{numeric}}^- - E_{n,\text{analytic}}^-)^2}$ , for  $N = 20$  (highest deviation), 40, 80, and 160 (lowest deviation) unit cells. The initial decrease of the deviation is exponential  $e^{-\mathcal{E}/\mathcal{E}_c}$  and characterized by the field  $\mathcal{E}_c \sim \frac{W}{N}$  where  $W$  is the bandwidth. High-field decrease of the deviation with respect to the Wannier-Stark ladder of the infinite system is governed by a second characteristic value of the field. Units are such that  $e = 1$ ,  $\hbar = 1$ ,  $t = 1$  and  $a = 1$ .

### 1. WSL: Numerics on finite versus analytics for infinite chain

In the case of the Rice-Mele chain, in contrast to the dimer chain, it is not possible to analytically obtain the energy spectrum of an infinite chain in the presence of an electric field. However, we can numerically obtain the spectrum for a finite chain with an electric field and compare it with Eq. (31), which gives the perturbative-like expansion in powers of the electric field in the thermodynamic limit; see Fig. 1. The agreement becomes very good when the electric field is sufficiently large that finite-size effects are negligible (i.e.,  $\mathcal{E} \gg \frac{W}{N}$  where  $W$  is the bandwidth) and sufficiently small to be in the weak-field regime (i.e.,  $\mathcal{E} \ll W$ ) and also that the order  $\mathcal{E}^2$  expansion of the WSL is valid (corresponding to an even larger electric field). These inequalities are equivalent to requiring that the WS localization length  $\xi \sim \frac{W}{\mathcal{E}}$  be smaller than the system size  $Na = N$  and larger than the lattice spacing  $a = 1$ . In summary, the WSL regime of a bulk crystal exists in a finite system provided that  $\mathcal{E} \gg \frac{W}{N}$ . In addition, one explores the weak-field limit provided that  $\mathcal{E} \ll W$ . Figure 1 also shows that the first level crossing between levels coming from different bands occurs at an electric field  $\sim \frac{g_{\text{sp}}}{N}$ . This is similar to  $\frac{W}{N}$  as the gap and the bandwidth are taken to be of the same order.

A convenient way of identifying this WSL regime is to plot the “energy center”  $E_n^\alpha - \mathcal{E}X_n^\alpha$ , where  $E_n^\alpha(\mathcal{E})$  is the energy of a numerically obtained eigenstate and  $X_n^\alpha(\mathcal{E})$  is its average position, as a function of  $X_n^\alpha$  for a given band  $\alpha$  (see Fig. 2). Indeed, in the WSL regime, the energy spectrum should be given by Eq. (31), which shows that

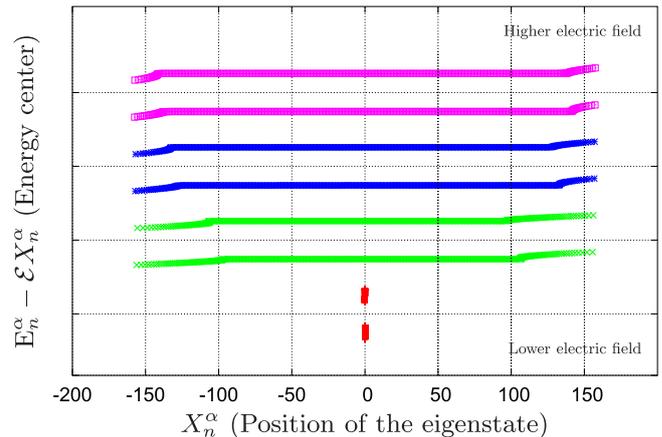


FIG. 2. Energy center  $E_n^\alpha - \mathcal{E}X_n^\alpha$  as a function of the average position  $X_n^\alpha$  for eigenstates of a finite chain with  $N = 320$  unit cells in an electric field.  $n$  is the unit cell index and  $\alpha$  is the index labeling the two bands. At weak electric field,  $\mathcal{E} \ll W/N$ , the energy center spans the zero-field bandwidth and the average position is the chain center for all eigenstates (the two bands are visible in red in the figure). When increasing the electric field and once the WSL regime is reached (green), bulk eigenstates form a plateau and all have the same energy center. Edge effects are seen on the two ends of the chain and tend to disappear with increasing field (blue and magenta). The curves in different colors are shifted vertically for clarity; the typical (vertical) distance between curves of the same color is of the order of the band gap. Units are such that  $e = 1$ ,  $\hbar = 1$ ,  $t = 1$  and  $a = 1$ .

$E_n^\alpha - \mathcal{E}X_n^\alpha \approx \bar{E}^\alpha + O(\mathcal{E}^2)$  is almost field independent. When the electric field is smaller than  $\frac{W}{N}$  and negligible, almost all eigenstates have the same average position at the center of the chain and eigenenergies that vary continuously between the bottom and the top of the zero-field band (see the red points in Fig. 2). Then, when the field becomes larger than  $\sim \frac{W}{N}$ , eigenstates become localized in different unit cells ( $X_{n+1}^\alpha - X_n^\alpha \approx 1$ ), but all have the same  $E_n^\alpha - \mathcal{E}X_n^\alpha$  forming a plateau as a function of the average position (see the green curve). The plateau is electric field independent and given by  $E_n^\alpha - \mathcal{E}X_n^\alpha \approx \bar{E}^\alpha$  until the electric field becomes larger than  $\sim W$ . Then the plateau starts to depend on the electric field in a quadratic manner  $E_n^\alpha - \mathcal{E}X_n^\alpha \approx \bar{E}^\alpha + O(\mathcal{E}^2)$  revealing the electric susceptibility. The only deviations from this typical behavior are found near the edges of the finite chain.

### 2. Polarization and susceptibility

The first-order term in  $\mathcal{E}$  of the trace of  $H_\mathcal{E} = H_0 + \mathcal{E}X$  on the WSL emerging from the lower band is presented in Fig. 3 (see the red crosses) as a function of the parameter  $\theta$  for a finite Rice-Mele chain with 80 sites. This is essentially the zero-temperature polarization. It is compared with the Wannier center (or Zak phase divided by  $2\pi$ ) for the lower band computed for the infinite system (see the blue full line).

For the infinite system, the polarization is defined modulo 1 and  $\mathcal{P} \rightarrow -\mathcal{P}$  under inversion. Inversion symmetry is only present at particular values of  $\theta$ , implying that  $\mathcal{P} = -\mathcal{P}$  modulo 1. These remarkable values of the parameters are  $\theta = 0$  or  $\pi$  corresponding to a charge density wave (CDW) like chain, with site-centered inversion symmetry resulting in

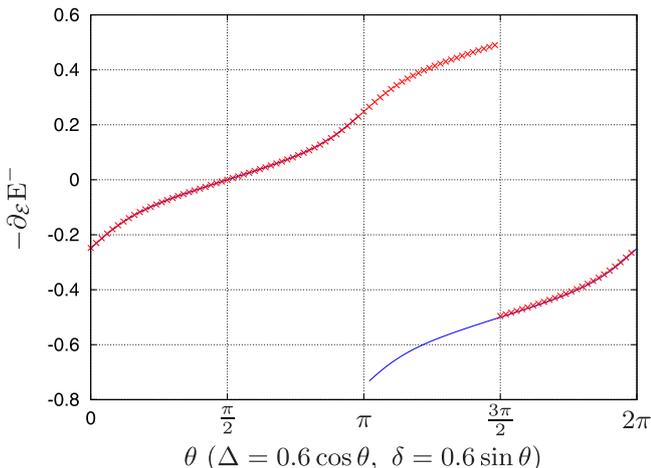


FIG. 3. Zero-temperature spontaneous polarization  $\mathcal{P}$  (in units such that  $e = 1$ ) as a function of the Rice-Mele parameter  $\theta$ :  $\theta = 0$  and  $\pi$  correspond to a CDW chain and  $\theta = \pi/2$  and  $3\pi/2$  to an SSH chain. The numerically computed first order of the WSL  $-\partial_\epsilon E^-|_{\epsilon=0}$  emerging from the valence band of a finite Rice-Mele chain with 80 unit cells is shown with red crosses. The analytical prediction of Eq. (31) for the infinite system  $\mathcal{P} = -X^-$  is shown as a blue line, where  $X^-$  is the Wannier center of the lower band (in units such that  $a = 1$ ). For the infinite system (blue line), the polarization is defined modulo the quantum of polarization, which is 1 here, such that  $-1/2 \leq \mathcal{P} < 1/2$ . For the finite chain, the polarization has an absolute meaning and is not defined modulo a quantum of polarization. When  $\pi < \theta < 2\pi$ , the finite chain has two edge states with opposite energies inside the bulk gap. Units are such that  $e = 1$ ,  $\hbar = 1$ ,  $t = 1$  and  $a = 1$ .

a quantized spontaneous polarization  $\mathcal{P} = \pm \frac{1}{2}$ , and  $\theta = \frac{\pi}{2}$  or  $\frac{3\pi}{2}$ , corresponding to a Su-Schrieffer-Heeger (SSH) chain [27], with bond-centered inversion symmetry leading to a vanishing spontaneous polarization  $\mathcal{P} = 0$ . Note that from a bulk perspective, the two SSH phases  $\theta = \frac{\pi}{2}$  and  $\frac{3\pi}{2}$  are identical and cannot be distinguished. Their difference of behavior is only revealed upon introducing an edge. In particular, the bulk polarization cannot be used to characterize the SSH as a 1D topological insulator as it vanishes in both phases [28].

However, for a finite chain, the polarization can be given an absolute meaning (i.e., without the modulo inherent to the quantum of polarization) because once the edges are specified, the polarization becomes a well-defined quantity. In the  $\theta \in [\pi, 2\pi]$  range, the chain with an even number of sites possesses one localized state at each end of the chain with opposite energies within the bulk gap. The jump in polarization at  $\theta = 3\pi/2$  happens when both edge states cross zero energy. For the finite chain, there is now a clear difference in polarization between the SSH chain at  $\theta = \pi/2$  for which the polarization vanishes and  $\theta = 3\pi/2$  for which the polarization jumps from 1 to  $-1$ . The first phase is considered to be trivial and the second to be topological.

Figure 4 presents the second-order term in  $\mathcal{E}$  of the trace of  $H_\mathcal{E} = H_0 + \mathcal{E}X$  on the WSL emerging from the lower band. This is essentially the zero-temperature susceptibility. Small finite-size effects can be noted at the second order around  $\theta = 0$  and  $\theta = \pi$ . This behavior of the susceptibility as a

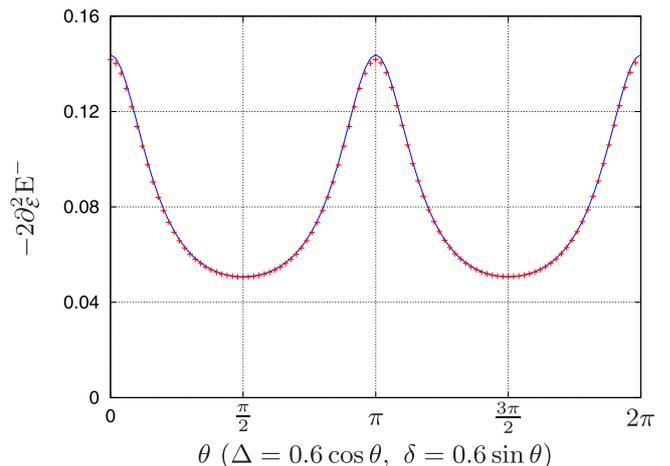


FIG. 4. Numerically computed second order of the energy of the WSL  $-2\partial_\epsilon^2 E^-|_{\epsilon=0}$  emerging from the lowest band of the Rice-Mele model as a function of the angular parameter  $\theta$  (red crosses) compared with the analytical value of Eq. (31) (blue line). This is essentially the susceptibility  $\chi$  at zero temperature. The calculation was done using 80 unit cells; finite-size effects explain the small difference between the numerical and analytical curves around  $\theta = 0, \pi$ . Units are such that  $e = 1$ ,  $\hbar = 1$ ,  $t = 1$  and  $a = 1$ .

function of  $\theta$  qualitatively follows that of the square of the localization length of the maximally localized Wannier state.

Breaking particle-hole symmetry by adding a term  $E_0(k)\sigma_0$  (where  $\sigma_0$  is the  $2 \times 2$  identity matrix) to the Hamiltonian of the Rice-Mele model changes the energy spectrum but not the wave functions. Therefore it does not change the polarization and the susceptibility as the WSL—i.e., the energy levels given in Eq. (31)—are left unchanged.

#### IV. CONCLUSION

In the present work, we have devised a statistical mechanics approach to the electric properties—polarization and susceptibility—of a band insulator at finite temperature. The key steps consist in, first, computing the Wannier-Stark ladder energy spectrum in a perturbative-like fashion at second order in the electric field and, second, in obtaining a relevant thermodynamical potential by imposing a local electroneutrality within each unit cell in the presence of the electric field. Our main results are Eq. (31) for the WSL energy spectrum at second order in the electric field, Eq. (32) for the electric polarization at finite temperature, and Eq. (33) for the electric susceptibility at finite temperature. The correctness of the perturbative WSL energy spectrum (31) was checked by comparing it with exact calculations in the case of two different toy models (a chain of uncoupled dimers and a Rice-Mele chain). One advantage is that the same method can be used to compute response functions at first and second order (and actually also at higher orders).

Qualitatively, at zero temperature and in the simplest two-band model, the spontaneous polarization is essentially given by the Wannier center, i.e., the average position of the Wannier function (which is gauge independent), as found by King-Smith, Vanderbilt, and Resta using a quite different

approach. For the susceptibility, the physical interpretation is more complicated. At zero temperature, it is qualitatively given by the square of the localization length of the maximally localized Wannier function [29,31], divided by an energy gap which is the energy difference between the average energies of the two bands. Indeed

$$\chi = \sum_{\alpha \text{ occ.}} \sum_{\beta \neq \alpha} \int_{\text{BZ}} \frac{A^{\alpha\beta} A^{\beta\alpha}}{E^\beta - E^\alpha} \sim \frac{\langle w_n^- | (\Delta X)^2 | w_n^- \rangle}{E^+ - E^-}, \quad (49)$$

where  $\sqrt{\langle w_n^- | (\Delta X)^2 | w_n^- \rangle}$  is the localization length of the maximally localized Wannier function of the band  $\alpha = -$  and  $\Delta X = X - \langle X \rangle$ .

Eventually, we mention the difficulty of using a gauge-invariant perturbative approach based on Green's functions to compute the density of states in the presence of an electric field (the polarization is related to the first derivative of the density of states with respect to the field and the susceptibility to the second derivative). Such an approach was, for example, proposed in [32] for both the electric and magnetic responses. Whereas it works well for the magnetic field, allowing us to compute the magnetization and the orbital magnetic susceptibility [7], it encounters severe difficulties in the case of an electric field. In particular, the authors of Ref. [32] have to assume that the finite-field polarization is given by the Zak phase in order to use their method but cannot derive this fundamental relation.

Apart from the present approach, we are aware of two others that amount to imposing a local electronic filling within each unit cell. First, one can directly replace the linearly rising electric potential in the Hamiltonian by a piecewise linear potential (such as sawtooth or continuous triangular) with either the periodicity of the Bravais lattice or a supercell periodicity (see for example [17] for a discussion). Then the energy spectrum remains that of a periodic system and the usual thermodynamics can be employed automatically resulting in electroneutrality within each cell. The drawback of this approach is that it does not recover the correct Zak phase formula for the electric polarization, although it has been used to compute higher order responses such as the electric susceptibility. A second approach would consist in defining a local density of states (involving not only the WSL energy spectrum but also the WS states) in order to impose the local electronic filling by a local chemical potential. We tried this approach—which we find physically quite appealing—and were surprised to realize that it also does not recover the KVR formula for the electric polarization [33].

#### ACKNOWLEDGMENT

We acknowledge useful discussions with Gilles Montambaux and Lih-King Lim, especially on the Zak phase.

#### APPENDIX A: POSITION OPERATOR

In this appendix, we discuss more precisely the position operator and its action on the WS states. The position operator

$$X = \sum_n \sum_{i=1}^{N_b} X_i |n, i\rangle \langle n, i| \quad (A1)$$

can be split into two distinct parts  $X = x + R$ . The contribution  $x$ —the intracell position operator—is defined by

$$x = \sum_n \sum_{i=1}^{N_b} x_i |n, i\rangle \langle n, i|, \quad (A2)$$

and is translationally invariant  $x = T_a^{-n} x T_a^n$ . As a consequence we can write

$$x^\alpha = \langle E_n^\alpha | x | E_n^\alpha \rangle = \langle E^\alpha | x | E^\alpha \rangle. \quad (A3)$$

By contrast, the contribution  $R$ —the Bravais lattice position operator—is defined by

$$R = \sum_n \sum_{i=1}^{N_b} n |n, i\rangle \langle n, i| \quad (A4)$$

and verifies the ladder identity  $T_a^{-n} R T_a^n = R + n\mathbb{1}$ . Note that in each unit cell, it is simply proportional to the identity. For this contribution we can write

$$R^\alpha = \langle E_n^\alpha | R | E_n^\alpha \rangle = \langle E^\alpha | R | E^\alpha \rangle + n = r^\alpha + n. \quad (A5)$$

For each ladder, the previously defined position center is thus the sum of two distinct contributions  $X^\alpha = x^\alpha + r^\alpha$ . On the one side the contribution  $x^\alpha$  measures the intracell asymmetry of the probability of WS states  $|E_n^\alpha\rangle$ ; on the other side the contribution  $r^\alpha$  measures the intercell asymmetry of the probability of WS states  $|E_n^\alpha\rangle$ .

#### APPENDIX B: CHEMICAL POTENTIAL AS A FUNCTION OF THE FIELD

In this appendix, we show that we only need the dependence of the chemical potential on the electric field at first order in order to obtain the susceptibility. The total free energy is

$$F = \sum_{n,\alpha} \mu_n - \frac{1}{\beta} \sum_{n,\alpha} \ln(1 + e^{-\beta[E_n^\alpha(\mathcal{E}) - \mu_n]}) - \sum_n q\mathcal{E}n, \quad (B1)$$

where  $E_n^\alpha(\mathcal{E}) = E^\alpha(\mathcal{E}) + \mathcal{E}n$  and in the local chemical potential approach,  $\mu_n = \tilde{\mu}(\mathcal{E}) + \mathcal{E}n$ , with  $\tilde{\mu}(\mathcal{E}) = \mu^{(0)} + \mathcal{E}\mu^{(1)} + \dots$ . The free energy per unit cell is therefore

$$\frac{F}{N} = q\tilde{\mu}(\mathcal{E}) - \frac{1}{\beta} \sum_\alpha \ln(1 + e^{-\beta[E^\alpha(\mathcal{E}) - \tilde{\mu}(\mathcal{E})]}). \quad (B2)$$

Taking a derivative with respect to the field, we find that the polarization at finite electric field is

$$\mathcal{P}(\mathcal{E}) = - \sum_\alpha \partial_\mathcal{E} E^\alpha(\mathcal{E}) n_F[E^\alpha(\mathcal{E}) - \tilde{\mu}(\mathcal{E})]. \quad (B3)$$

We used that the number of electron in each unit cell is fixed by the requirement of local electroneutrality so that

$$q = \sum_\alpha n_F[E^\alpha(\mathcal{E}) - \tilde{\mu}(\mathcal{E})]. \quad (B4)$$

Taking a second derivative with respect to the field, we find that the polarizability is

$$\chi = \sum_\alpha [n_F(E^\alpha) \partial_\mathcal{E}^2 E^\alpha + n_F'(E^\alpha) \partial_\mathcal{E} E^\alpha (\partial_\mathcal{E} E^\alpha - \partial_\mathcal{E} \tilde{\mu})]. \quad (B5)$$

At zero electric field, only  $\tilde{\mu} \rightarrow \mu^{(0)}$  and  $\partial_\varepsilon \tilde{\mu} \rightarrow \mu^{(1)}$  appear in the expression of the polarization and susceptibility. As  $\mu^{(0)}$  can conveniently be set to 0 (by a choice of the origin of energy), we only need to know the first derivative of the chemical potential with respect to the field in order to obtain the polarization and the susceptibility. This quantity is obtained from the fact that the number of electron in each unit cell,  $q$  in Eq. (B4), should not depend on the electric field. Therefore  $\partial_\varepsilon q = 0$  so that

$$\mu^{(1)} = \left. \frac{\sum_\alpha (\partial_\varepsilon E^\alpha) n'_F(E^\alpha)}{\sum_\alpha n'_F(E^\alpha)} \right|_{\varepsilon=0}. \quad (\text{B6})$$

Using this result in the above expression for the susceptibility, we recover Eq. (23). More generally,  $\partial_\varepsilon q = 0$  gives  $\partial_\varepsilon \tilde{\mu}(\varepsilon) = \frac{\sum_\alpha [\partial_\varepsilon E^\alpha(\varepsilon)] n'_F[E^\alpha(\varepsilon) - \tilde{\mu}(\varepsilon)]}{\sum_\alpha n'_F[E^\alpha(\varepsilon) - \tilde{\mu}(\varepsilon)]}$ .

### APPENDIX C: ELECTRON INTERACTIONS AND GLOBAL VERSUS LOCAL FILLING

In this appendix, we justify the assumption of a charge distribution that retains the Bravais lattice periodicity even in the presence of an electric field. We therefore relax the local chemical potential hypothesis [which states that the chemical potential depends on the unit cell  $n$  through  $\mu_n = \tilde{\mu}(\varepsilon) + \varepsilon n$ ] and turn back to a unique global chemical potential  $\mu$ . The latter serves to impose overall charge neutrality (global) but not necessarily electroneutrality in each unit cell (local). The new ingredient is to add interactions between charges (electrons and ions) giving a cost to charge inhomogeneities. The goal is to show that a local electroneutrality within each unit cell naturally emerges in the limit of strong electrostatic interactions.

The WSL spectrum is not bounded from below, and as so, when we write the partition function, we sum over configurations of infinitely negative energy. Such configurations correspond to charge distributions that are highly inhomogeneous: most of the electrons are on one side of the crystal. However, such an electronic filling should have a cost. What would be the influence on the polarization and susceptibility of such an electrostatic cost? Below, we propose a toy model of interacting electrons. It is exactly solvable as it can be seen as a model of independent unit cells.

We consider spinless electrons in a one-dimensional two-band system, whose two WSL are  $E^+(\varepsilon) + \varepsilon n = E(\varepsilon) + \varepsilon n$  and  $E^-(\varepsilon) + \varepsilon n = -E(\varepsilon) + \varepsilon n$  (our toy model is assumed to possess a particle-hole symmetry). As WS states are localized, we may associate each state to a unit cell through its center. Every unit cell can then have four states: either empty, or occupied by one electron in either the  $E^-$  or the  $E^+$  ladder, or doubly occupied. For the sake of simplicity, we set an extra cost  $2U$  to a doubly occupied unit cell. Hence, the 4 possible ‘‘grand-canonical energy levels,’’ including the ionic contribution, are

$$-\varepsilon n, E^- - \mu, E^+ - \mu, E^- + E^+ + \varepsilon n + 2U - 2\mu. \quad (\text{C1})$$

The grand-canonical partition function is therefore

$$\Xi = \prod_n (e^{\beta \varepsilon n} + e^{\beta[E(\varepsilon)+\mu]} + e^{-\beta[E(\varepsilon)-\mu]} + e^{-\beta[\varepsilon n+2U-2\mu]}). \quad (\text{C2})$$

The unit cells range from  $n = -(N-1)/2$  to  $+(N-1)/2$  with  $N$  odd, the system contains  $N$  electrons, and from  $\beta^{-1} \partial_\mu \ln \Xi = N$ , we find that the chemical potential is  $\mu = U$  at all orders in the field (due to particle-hole symmetry, which is best seen if the electrostatic cost of  $2U$  is shared equally by the empty and doubly occupied states). We therefore obtain a simple expression for the free energy  $F = \beta^{-1} \ln \Xi + \mu N$ :

$$F = -\frac{N \ln 2}{\beta} - \frac{1}{\beta} \sum_n \ln \{e^{-\beta U} \cosh(\beta \varepsilon n) + \cosh[\beta E(\varepsilon)]\}. \quad (\text{C3})$$

From this we are able to compute the polarization as

$$\mathcal{P} = \partial_\varepsilon E \frac{\sinh(\beta E)}{e^{-\beta U} + \cosh(\beta E)}. \quad (\text{C4})$$

If the limit of weak interactions  $U \ll T$ , we can rewrite the polarization as

$$\mathcal{P} = \partial_\varepsilon E \frac{\sinh(\beta E)}{1 + \cosh(\beta E)} = - \sum_{\alpha=\pm} (\partial_\varepsilon E^\alpha) n_F(\overline{E^\alpha}), \quad (\text{C5})$$

which agrees with Eq. (22), whereas in the limit of strong interactions  $U \gg T$ , we find

$$\mathcal{P} = \partial_\varepsilon E \tanh(\beta E). \quad (\text{C6})$$

At first sight, this is puzzling. We have devised a model in order to show that the local chemical potential hypothesis is valid in the strong-interaction limit, and we recover our previous results—obtained using local chemical potentials—in the opposite limit of weak interactions. The reason is twofold. First, the local chemical potential hypothesis does not play a role at first order in the field (i.e., for the polarization) and only appears at the second order (i.e., for the susceptibility; see below). This is the reason why the polarization at  $U = 0$  is the same whether one uses a global chemical potential  $\mu$  or local chemical potentials  $\{\mu_n\}$ . Second, in the strong-interaction limit, our model freezes so strongly the charge fluctuations that it is actually equivalent to a local *canonical ensemble* (exactly one electron in each unit cell) rather than a local *grand-canonical ensemble* (one electron on average per unit cell). Indeed, the partition function for a single unit cell at  $n = 0$  occupied by one electron is  $Z_1 = 2 \cosh[\beta E(\varepsilon)]$  giving a polarization  $T \partial_\varepsilon \ln Z_1 = \partial_\varepsilon E \tanh(\beta E)$ . In the main part of the paper, we developed a local grand-canonical approach. However, in the remaining of this appendix, we continue the investigation of the interacting model that resembles a local canonical (rather than grand-canonical) ensemble in the strong-interaction limit. The aim is to see whether a strong-interaction limit is equivalent to imposing a local electronic filling (either in a local canonical or a local grand-canonical ensemble).

Taking another derivative, we access the susceptibility

$$\begin{aligned} \chi &= -\partial_{\mathcal{E}}^2 E \frac{\sinh(\beta E)}{e^{-\beta U} + \cosh(\beta E)} \\ &\quad - (\partial_{\mathcal{E}} E)^2 \beta \frac{1 + e^{-\beta U} \cosh(\beta E)}{[e^{-\beta U} + \cosh(\beta E)]^2} \\ &\quad - \beta \frac{e^{-\beta U}}{e^{-\beta U} + \cosh(\beta E)} \frac{N^2}{12}, \end{aligned} \quad (\text{C7})$$

where we used that  $\sum_{n=-(N-1)/2}^{(N-1)/2} n^2/N \approx N^2/12$  when  $N \gg 1$ . On the one hand, in the weak-interaction limit  $\beta U \ll 1$ , we find

$$\chi = -\sum_{\alpha} \left[ \partial_{\mathcal{E}}^2 E^{\alpha} n_F(\overline{E^{\alpha}}) + (\partial_{\mathcal{E}} E^{\alpha})^2 n'_F(\overline{E^{\alpha}}) + \frac{N^2}{12} n'_F(\overline{E^{\alpha}}) \right]. \quad (\text{C8})$$

The two first terms are expected [compare with Eq. (33) when  $\mu^{(1)} = 0$ , as here  $\tilde{\mu}(\mathcal{E}) = \mu = U$  is field independent] but not the last term (proportional to  $N^2$ ). It is not intensive and diverges in the thermodynamic limit. It reflects the fact that imposing a global electronic filling in the presence of an electric field and in the absence of a repulsion between electrons, the system does not remain a band insulator but contains partially filled bands due to inter-band tunneling. Such a conducting system does not have a finite electric susceptibility in the thermodynamic limit. This is a signature of a metallic behavior (usually best captured at finite frequency). On the other hand, in the strong-interaction limit  $\beta U \gg 1$ , we find

$$\begin{aligned} \chi &= \partial_{\mathcal{E}}^2 E \tanh(\beta E) + (\partial_{\mathcal{E}} E)^2 \beta \operatorname{sech}^2(\beta E) \\ &\quad + \frac{N^2}{12} e^{-\beta U} \beta \operatorname{sech}(\beta E). \end{aligned} \quad (\text{C9})$$

We now see that the term which depends on the size of the crystal is proportional to  $N^2 e^{-\beta U}$  and that is linked to the configurations which present charge inhomogeneity. It can still be controlled in a more stringent limit of strong interactions involving the size of the system. The temperature should only be lower than  $U/\ln N$  in order for the last term to be negligible. Typically  $U \sim \frac{e^2}{4\pi\epsilon a}$  is of the order of 10 eV, i.e., of  $10^5$  K. Therefore even for  $N \sim 10^{23}$ , the temperature should be lower than  $U/\ln N \sim 10^3$  K. When the last term is negligible, the result for the susceptibility is the same as the one that would be obtained from a local canonical ensemble in the absence of interactions. Indeed  $T \partial_{\mathcal{E}}^2 \ln Z|_{\mathcal{E}=0} = \partial_{\mathcal{E}}^2 E \tanh(\beta E) + (\partial_{\mathcal{E}} E)^2 \beta \operatorname{sech}^2(\beta E)$ .

To summarize, we find that, for both the polarization and the susceptibility, one may consider noninteracting electrons provided the charge neutrality is imposed locally in each unit cell rather than globally over the whole crystal. We also see that there is a slight difference between imposing this local electronic filling per unit cell in the canonical or in the grand-canonical ensemble (the difference in 1 dimension is due to the small number of electrons involved). In the main part of the article, we assumed a local chemical potential and therefore used a local grand-canonical ensemble.

This simple toy model can be extended to the two-dimensional case. Again, we assume a band insulator coming

from a two-band tight-binding model on a lattice. We also assume that the electric field lies along one of the Bravais vectors (we call this direction the parallel direction). In this particular case, the crystal retains its translational invariance in the perpendicular direction without having to change the unit cell, so we still have two bands in the perpendicular direction. As we assumed two bands in the parallel direction without electric field, we now have two WSL whose energies are  $E^{\pm}(k_{\perp}, \mathcal{E}) + \mathcal{E}n_{\parallel}$ . Given a unit cell  $n_{\parallel}$ , all the WS states located in that unit cell are Bloch plane waves in the perpendicular direction and confined in the parallel direction, so we set the interaction cost to  $U(N_{n_{\parallel}} - N_0)^2$ , where  $N_{n_{\parallel}}$  is the number of electrons on the rung and  $N_0$  is the number of electrons needed to realize charge neutrality.

In the analytically tractable case of flat bands, and in the  $N_0 \rightarrow \infty$  (thermodynamic limit in the perpendicular direction), we note the following facts: (i) when the interaction is set to  $U = 0$ , as soon as the chemical potential reaches the upper band energy, the net charge of each rung diverges as expected; (ii) as soon as we consider  $U > 0$ , whatever the value of the chemical potential, the net charge of the rung remains finite even in the thermodynamic limit; that is, each rung remains very close to charge neutrality.

Hence, this (overly simplified) two-dimensional toy model tells us that interactions are likely to enforce local neutrality in the crystal, and supports our approach of neglecting Zener tunneling and enforcing local neutrality at the scale of the unit cell.

#### APPENDIX D: FINITE-TEMPERATURE POLARIZATION AND SUSCEPTIBILITY FROM CHARGE DENSITY

In this appendix, we propose an alternative derivation of the finite-temperature polarization and susceptibility starting from the charge density. We consider a *finite* crystalline chain in the presence of an electric field. The energy spectrum  $\{E_{\gamma}(\mathcal{E})\}$  (with  $\gamma$  representing quantum numbers) is bounded and the eigenstates  $\{|\psi_{\gamma}(\mathcal{E})\rangle\}$  are well localized (in particular their average position is well defined). In such a case, the polarization can be computed from the charge density in the familiar Clausius-Mossotti approach

$$\mathcal{P} = -\frac{1}{N} \int dx x \rho(x) \quad (\text{D1})$$

(with  $a = 1$ ,  $e = 1$ ), where  $\rho(x)$  is the total electric charge density (we get rid of the ionic contribution by taking the average ion position as the spatial origin). At finite temperature—and in a grand-canonical picture with global filling fixed by the chemical potential  $\mu$ —it is given by

$$\rho(x) = \sum_{\gamma} n_F [E_{\gamma}(\mathcal{E}) - \mu(\mathcal{E})] |\psi_{\gamma}(\mathcal{E}, x)|^2 \quad (\text{D2})$$

with  $N_{e-} = \sum_{\gamma} n_F [E_{\gamma}(\mathcal{E}) - \mu(\mathcal{E})]$ , so the finite-field polarization is

$$\mathcal{P}(\mathcal{E}) = -\frac{1}{N} \sum_{\gamma} n_F [E_{\gamma}(\mathcal{E}) - \mu(\mathcal{E})] \langle \psi_{\gamma}(\mathcal{E}) | X | \psi_{\gamma}(\mathcal{E}) \rangle. \quad (\text{D3})$$

According to the Hellmann-Feynman theorem  $\langle \psi_{\gamma}(\mathcal{E}) | X | \psi_{\gamma}(\mathcal{E}) \rangle = \langle \psi_{\gamma}(\mathcal{E}) | \partial_{\mathcal{E}} H | \psi_{\gamma}(\mathcal{E}) \rangle = \partial_{\mathcal{E}} E_{\gamma}(\mathcal{E})$  and the

finite-field polarization becomes

$$\mathcal{P}(\mathcal{E}) = -\frac{1}{N} \sum_{\gamma} n_F[E_{\gamma}(\mathcal{E}) - \mu(\mathcal{E})] \partial_{\mathcal{E}} E_{\gamma}(\mathcal{E}). \quad (\text{D4})$$

For a finite system, the spontaneous polarization is therefore

$$\mathcal{P} = -\frac{1}{N} \sum_{\gamma} n_F(E_{\gamma} - \mu) \partial_{\mathcal{E}} E_{\gamma} \quad (\text{D5})$$

and the susceptibility is

$$\chi = -\frac{1}{N} \sum_{\gamma} [n'_F(E_{\gamma} - \mu) (\partial_{\mathcal{E}} E_{\gamma} - \partial_{\mathcal{E}} \mu) \partial_{\mathcal{E}} E_{\gamma} + n_F(E_{\gamma} - \mu) \partial_{\mathcal{E}}^2 E_{\gamma}] \quad (\text{D6})$$

with  $\partial_{\mathcal{E}} \mu = [\sum_{\gamma} n'_F(E_{\gamma} - \mu)]^{-1} \sum_{\gamma} n'_F(E_{\gamma} - \mu) \partial_{\mathcal{E}} E_{\gamma}$ . We use the convention that  $E_{\gamma} \equiv E_{\gamma}(\mathcal{E} = 0)$  and similarly for  $\partial_{\mathcal{E}} E_{\gamma}$ ,  $\partial_{\mathcal{E}}^2 E_{\gamma}$ , and  $\mu$ . Note also that  $\partial_{\mathcal{E}} E_{\gamma} = \langle \psi_{\gamma} | X | \psi_{\gamma} \rangle$  and  $\partial_{\mathcal{E}}^2 E_{\gamma} = \langle \partial_{\mathcal{E}} \psi_{\gamma} | X | \psi_{\gamma} \rangle + \langle \psi_{\gamma} | X | \partial_{\mathcal{E}} \psi_{\gamma} \rangle$ . If nondegenerate perturbation theory is applicable (which is certainly not the case in the thermodynamic limit and at finite field as there are level crossings), we can further show that  $\partial_{\mathcal{E}}^2 E_{\gamma} = 2 \sum_{\delta \neq \gamma} \frac{|\langle \psi_{\gamma} | X | \psi_{\delta} \rangle|^2}{E_{\gamma} - E_{\delta}}$ .

We now would like to take the limit of an infinite chain using our knowledge of the WSL spectrum, Eq. (31). An important point is that the zero-field limit should be taken after the thermodynamic limit and that there is a discontinuity of the spectrum at zero field. This is due to level crossing when  $\mathcal{E}N$  becomes larger than the band gap, which always occurs in the thermodynamic limit  $N \rightarrow \infty$  at any finite field. Therefore, we cannot use (D5) and (D6) but rather go back to the finite-field polarization (D4) and replace  $\gamma \rightarrow (\alpha, n)$ ,  $E_{\gamma}(\mathcal{E}) \rightarrow E_n^{\alpha}(\mathcal{E}) = n\mathcal{E} + E^{\alpha}(\mathcal{E})$  so that  $\partial_{\mathcal{E}} E_{\gamma} \rightarrow \partial_{\mathcal{E}} E_n^{\alpha} = n + \partial_{\mathcal{E}} E^{\alpha}$  and  $\partial_{\mathcal{E}}^2 E_{\gamma} \rightarrow \partial_{\mathcal{E}}^2 E_n^{\alpha} = \partial_{\mathcal{E}}^2 E^{\alpha}$ , leading to

$$\mathcal{P} = -\sum_{\alpha} n_F(\overline{E}^{\alpha} - \mu) \partial_{\mathcal{E}} E^{\alpha} \quad (\text{D7})$$

and

$$\chi = -\sum_{\alpha} [n'_F(\overline{E}^{\alpha} - \mu) (\partial_{\mathcal{E}} E^{\alpha} - \partial_{\mathcal{E}} \mu) \partial_{\mathcal{E}} E^{\alpha} + n_F(\overline{E}^{\alpha} - \mu) \partial_{\mathcal{E}}^2 E^{\alpha}] - \frac{N^2}{12} \sum_{\alpha} n'_F(\overline{E}^{\alpha} - \mu), \quad (\text{D8})$$

where we used that  $N^{-1} \sum_{n=-(N-1)/2}^{(N-1)/2} = 1$ ,  $N^{-1} \sum_n n = 0$ , and  $N^{-1} \sum_n n^2 \approx N^2/12$ , and where  $\partial_{\mathcal{E}} \mu = [\sum_{\alpha} n'_F(\overline{E}^{\alpha} - \mu)]^{-1} \sum_{\alpha} n'_F(\overline{E}^{\alpha} - \mu) \partial_{\mathcal{E}} E^{\alpha}$ . The last term in (D8) (proportional to  $N^2$ ) is present because we only imposed a global electronic filling and not a local one. It is a signal that if one waits long enough, a band insulator in a finite field does not remain insulating but becomes a conductor due to interband tunneling. This term should therefore be ignored when computing the susceptibility of an insulator. See the corresponding discussion in Appendix C, which shows how this term is killed by electrostatic interactions.

If the above replacements  $\gamma \rightarrow (\alpha, n)$ , etc., are made in (D5) and (D6), the first derivative becomes

$$\partial_{\mathcal{E}} E_{\gamma} \Rightarrow \partial_{\mathcal{E}} E_n^{\alpha} = \langle w_n^{\alpha} | X | w_n^{\alpha} \rangle = n + \frac{Z^{\alpha}}{2\pi}, \quad (\text{D9})$$

which is the correct value, while for the second order

$$\begin{aligned} \frac{1}{2} \partial_{\mathcal{E}}^2 E_{\gamma} &\rightarrow \sum_{\beta \neq \alpha} \frac{|\langle w_n^{\alpha} | X | w_n^{\beta} \rangle|^2}{E^{\alpha} - E^{\beta}} \\ &\neq \frac{1}{2} \partial_{\mathcal{E}}^2 E_n^{\alpha} = \sum_{\beta \neq \alpha} \int_{\text{BZ}} \frac{\mathcal{A}^{\alpha\beta}(k) \mathcal{A}^{\beta\alpha}(k)}{E^{\alpha}(k) - E^{\beta}(k)}. \end{aligned} \quad (\text{D10})$$

The first derivative is correct but not the second. This illustrates the failure of nondegenerate perturbation theory in the case of an infinite crystal. Also we see that if we use the correct expression for the WSL given in Eq. (31), it is possible to compute the polarization and susceptibility in the thermodynamic limit starting from the charge density.

- 
- [1] N. W. Ashcroft and N. D. Mermin, *Solid State Physics* (Saunders, Philadelphia, 1976), Chap. 27.
- [2] R. D. King-Smith and D. Vanderbilt, *Phys. Rev. B* **47**, 1651(R) (1993); **48**, 4442 (1993).
- [3] R. Resta, *Rev. Mod. Phys.* **66**, 899 (1994).
- [4] R. Resta and D. Vanderbilt, in *Physics of Ferroelectrics: A Modern Perspective*, Topics in Applied Physics (Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, 2007), Vol. 105, pp. 21–68.
- [5] N. A. Spaldin, *J. Solid State Chem.* **195**, 2 (2012).
- [6] J. Zak, *Phys. Rev. Lett.* **62**, 2747 (1989).
- [7] A. Raoux, F. Piéchon, J.-N. Fuchs, and G. Montambaux, *Phys. Rev. B* **91**, 085120 (2015).
- [8] G. H. Wannier, *Phys. Rev.* **117**, 432 (1960).
- [9] J. Zak, *Phys. Rev. Lett.* **20**, 1477 (1968).
- [10] R. Resta, *J. Phys.: Condens. Matter* **12**, R107 (2000).
- [11] Di Xiao, Ming-Che Chang, and Qian Niu, *Rev. Mod. Phys.* **82**, 1959 (2010).
- [12] R. W. Nunes and D. Vanderbilt, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 712 (1994).
- [13] R. W. Nunes and X. Gonze, *Phys. Rev. B* **63**, 155107 (2001).
- [14] I. Souza, J. Íñiguez, and D. Vanderbilt, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 117602 (2002).
- [15] P. Umari and A. Pasquarello, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 157602 (2002).
- [16] M. Springborg and B. Kirtman, *Phys. Rev. B* **77**, 045102 (2008).
- [17] B. Kirtman, M. Ferrero, M. Rérat, and M. Springborg, *J. Chem. Phys.* **131**, 044109 (2009).
- [18] R. Nourafkan and G. Kotliar, *Phys. Rev. B* **88**, 155121 (2013).
- [19] S. D. Swiecicki and J. E. Sipe, *Phys. Rev. B* **90**, 125115 (2014).
- [20] We make the hypothesis that the electric field seen by ions and electrons is identical to the macroscopic field present in the crystal. In other words, we neglect the difference between the local field and the macroscopic field.
- [21] The choice of this gauge is motivated by the fact that we want to access the energies of the system through the Hamiltonian. In the time-dependent vector potential gauge  $A = -t\mathcal{E}$ , any static electric field would lead to a time dependence through the Peierls substitution, while in the scalar gauge  $A_0 = -\mathcal{E}X$  the Hamiltonian is time independent and therefore corresponds to the energy.

- [22] It is therefore important to understand that  $\alpha$  is a band index only at  $\mathcal{E} = 0$ . But as soon as  $\mathcal{E} \neq 0$ ,  $\alpha$  becomes a WSL or ladder index.
- [23] K. Leo, *Semicond. Sci. Technol.* **13**, 249 (1998).
- [24] Bloch eigenvectors are defined up to a gauge choice, which is the phase they come with, and two different choices of phases will lead to two different sets of Wannier functions. By suitable choice of phases, we mean choices of phases such that the Berry connection is continuous.
- [25] L. D. Landau and E. M. Lifshitz, *Electrodynamics of Continuous Media*, Vol. 8 of A Course of Theoretical Physics (Pergamon Press, Oxford, London, 1960), Sec. 14.
- [26] M. J. Rice and E. J. Mele, *Phys. Rev. Lett.* **49**, 1455 (1982).
- [27] W. P. Su, J. R. Schrieffer, and A. J. Heeger, *Phys. Rev. Lett.* **42**, 1698 (1979).
- [28] K.-T. Chen and P. A. Lee, *Phys. Rev. B* **84**, 113111 (2011).
- [29] In 1D, the maximally localized Wannier function is also obtained as the eigenstate of the projected position operator onto the occupied band; see [30].
- [30] S. Kivelson, *Phys. Rev. B* **26**, 4269 (1982).
- [31] N. Marzari, A. A. Mostofi, J. R. Yates, I. Souza, and D. Vanderbilt, *Rev. Mod. Phys.* **84**, 1419 (2012).
- [32] K.-T. Chen and P. A. Lee, *Phys. Rev. B* **84**, 205137 (2011).
- [33] F. Piéchon (unpublished).



## Annexe B

# Competition between Spin Echo and Spin Self-Rephasing in a Trapped Atom Interferometer

Publié dans *Phys. Rev. Lett.* **117** 16 (2016)

## Competition between Spin Echo and Spin Self-Rephasing in a Trapped Atom Interferometer

C. Solaro,<sup>1</sup> A. Bonnin,<sup>1</sup> F. Combes,<sup>2</sup> M. Lopez,<sup>1</sup> X. Alauze,<sup>1</sup> J.-N. Fuchs,<sup>2,3</sup> F. Piéchon,<sup>2</sup> and F. Pereira Dos Santos<sup>1,\*</sup>

<sup>1</sup>*SYRTE, Observatoire de Paris, PSL Research University, CNRS, Sorbonne Universités, UPMC Université Paris 06, LNE, 61 Avenue de l'Observatoire, 75014 Paris, France*

<sup>2</sup>*Laboratoire de Physique des Solides, CNRS UMR 8502, Université Paris-Sud, Université Paris-Saclay, F-91405 Orsay Cedex, France*

<sup>3</sup>*Laboratoire de Physique Théorique de la Matière Condensée, CNRS UMR 7600, Université Pierre et Marie Curie, 4 place Jussieu, 75252 Paris Cedex 05, France*

(Received 31 May 2016; published 14 October 2016)

We perform Ramsey interferometry on an ultracold <sup>87</sup>Rb ensemble confined in an optical dipole trap. We use a  $\pi$  pulse set at the middle of the interferometer to restore the coherence of the spin ensemble by canceling out phase inhomogeneities and creating a spin echo in the contrast. However, for high atomic densities, we observe the opposite behavior: the  $\pi$  pulse accelerates the dephasing of the spin ensemble leading to a faster contrast decay of the interferometer. We understand this phenomenon as a competition between the spin-echo technique and an exchange-interaction driven spin self-rephasing mechanism based on the identical spin rotation effect. Our experimental data are well reproduced by a numerical model.

DOI: 10.1103/PhysRevLett.117.163003

A long coherence time is crucial for the coherent manipulation of quantum systems. In quantum information, high-precision spectroscopy as well as in atom interferometry, preventing pure quantum states from decaying into a statistical mixture is challenging. In particular, when manipulating trapped ensembles, particles experience different trapping potentials and their spins precess at different rates creating a deleterious dephasing of coherences. Several techniques have been developed to overcome this limitation and to extend the coherence of the spin ensemble. The use of a magic wavelength for optically trapped atomic clouds [1,2], the addition of a compensating field [3], or the mutual compensation scheme in magnetically trapped Rb ensembles [4] have been demonstrated. All such techniques, however, only reduce the dephasing that is slowed down but never canceled.

A widespread technique that cancels out inhomogeneous dephasing is to create a spin echo via a  $\pi$  pulse as originally thought of for NMR spectroscopy [5] and later on extended to cold gases [6]. The spin-echo technique reverses the inhomogeneous dephasing of a spin ensemble, which significantly increases the coherence time of the quantum system. Especially, inertial atomic sensors highly benefit from spin-echo techniques as, for symmetric interferometers, it cancels out unwanted clock effects [7], enabling unprecedented high sensitivities on the measurement of inertial forces [8–13]. In such configurations, however, dephasing sources originating from atom transverse motion [14,15] can only be tackled by cooling the particles to lower temperatures, suggesting the use of dense ultracold gases. Yet, in such a regime, collisional processes can also lead to inhomogeneous broadening and decoherence of the spin ensemble [16]. The spin-echo technique can in principle

just as well cancel out mean-field shift inhomogeneities which is expected to restore the coherence of a spin ensemble at low temperatures.

However, using Ramsey interferometry and the spin-echo technique on an ultracold <sup>87</sup>Rb ensemble confined in an optical dipole trap, we observe the opposite behavior: applying a  $\pi$  pulse in the middle of the Ramsey sequence increases spin dephasing leading to a faster loss of coherence of the spin ensemble. This unexpected phenomenon results from the interplay between the  $\pi$  pulse and a collective spin self-rephasing (SSR) mechanism [17] due to the cumulative effect of the identical spin rotation effect (ISRE) in a trapped collisionless gas. Originating from atomic interactions and indistinguishability, ISRE is responsible for the exchange mean field [18] and is characterized by the exchange rate  $\omega_{\text{ex}} = 4\pi\hbar a_{12}\bar{n}/m$ , where  $a_{12}$  is the relevant scattering length [19],  $\bar{n}$  the mean atomic density, and  $m$  the atomic mass. In this Letter, we investigate the interplay between the spin-echo technique and SSR, two different rephasing mechanisms that, surprisingly, do not collaborate.

*Experimental setup.*—In our system, we manipulate laser-cooled ultracold <sup>87</sup>Rb atoms trapped in a 3D optical dipole trap red-detuned far from resonance ( $\lambda = 1070$  nm). The trap consists of two intersecting beams of 30 and 176  $\mu\text{m}$  waists with maximum powers of 6 and 45 W, respectively. After loading the trap from a magneto-optical trap, we perform 2 s evaporative cooling to reach a cloud temperature of  $T \sim 500$  nK with trap frequencies  $\{\omega_1, \omega_2, \omega_3\} = 2\pi \times \{27, 279, 269\}$  Hz. With  $\bar{n}$  in the range of  $10^{12}$  at/cm<sup>3</sup>, we explore the nondegenerate and collisionless (Knudsen) regime where the trap frequencies are much larger than the rate  $\gamma_c$  of lateral collisions. These

collisions are velocity changing elastic collisions, also known to be responsible for collisional narrowing [20]. The rate  $\gamma_c$  is given by  $\sim 4\pi a^2 v_T \bar{n}$ , where  $a$  is the scattering length [21] and  $v_T = \sqrt{k_B T/m}$  the thermal velocity of the atoms.  $\gamma_c \sim 2.4\bar{n} \text{ s}^{-1}$  with  $\bar{n}$  in  $10^{12} \text{ at/cm}^3$  which, in our range of densities, remains lower than  $5 \text{ s}^{-1}$ . In order to maximize the contrast of our interferometers, while preserving highest atomic densities, the atoms are carefully polarized into the state  $|5s^2S_{1/2}, F=1, m_F=0\rangle$  to avoid spin relaxation [22] and to minimize their sensitivity to parasitic magnetic fields. During the early stage of evaporation, after switching on our quantification axis, a  $\sigma$ -polarized resonant pulse on the  $|5s^2S_{1/2}, F=1\rangle$  to  $|5s^2P_{3/2}, F'=0\rangle$  transition pumps 70% of the atoms into the dark state  $|F=1, m_F=0\rangle$ . A combination of microwave and optical pulses is then used after the evaporation to purify the atomic sample leading to a highly polarized spin ensemble where  $98 \pm 1\%$  of the atoms are in the  $|F=1, m_F=0\rangle$  state. After this preparation sequence, we use resonant microwave field on the  $|F=1, m_F=0\rangle$  to  $|F=2, m_F=0\rangle$  transition and perform Ramsey interferometry. We can implement a standard Ramsey interferometer ( $\pi/2 - T_R - \pi/2$ ) or add a  $\pi$  pulse in the interferometric sequence ( $\pi/2 - t_\pi - \pi - t_2 - \pi/2$ ) with  $T_R = t_\pi + t_2$ . In particular, we can realize a symmetric Ramsey interferometer when  $t_2 = t_\pi$ . After the interferometer, the atoms are released from the trap and the populations in the two hyperfine states are measured. This state selective detection is based on fluorescence in horizontal light sheets at the bottom of the vacuum chamber [23]. Since this detection system does not resolve the different  $m_F$  states,  $|F=2, m_F=\pm 1\rangle$  states that are created during the interferometer sequence by spin relaxation contribute as a background, which reduces the contrast by about 15% for  $T_R = 1 \text{ s}$  and  $\bar{n} = 2 \times 10^{12} \text{ at/cm}^3$ .

*First experiment.*—To illustrate the effect of the spin-echo technique and SSR onto the coherence of the spin ensemble, we display in Fig. 1 measurements of the Ramsey contrast with and without a  $\pi$  pulse for different atomic densities  $\bar{n}$ . To vary  $\bar{n}$ , we vary the number of atoms by changing the magneto-optical trap loading time, accessing densities from  $0.3$  to  $2.5 \times 10^{12} \text{ at/cm}^3$  which modulate  $\omega_{\text{ex}}/2\pi = 7.5\bar{n} \text{ Hz}$  with  $\bar{n}$  in  $10^{12} \text{ at/cm}^3$ . The cloud temperature was verified to remain constant within 15%. In this regime, inhomogeneous dephasing originates both from differential light shift induced by the trapping lasers and from mean-field interactions, and has for characteristic inhomogeneity  $\Delta_0/2\pi = k_B T/2\hbar \times \delta\alpha/\alpha + 2\sqrt{2}\hbar(a_{11} - a_{22})\bar{n}/m$  using the same definition of  $\Delta_0$  as in [17,24]. Here,  $\delta\alpha$  and  $\alpha$  are the differential and the total light shift per intensity. With  $\delta\alpha/\alpha = 5.93 \times 10^{-5}$  and  $a_{11}, a_{22}$  the relevant scattering lengths [19] we have  $\Delta_0/2\pi \approx 0.3 + 0.7\bar{n} \text{ Hz}$  with  $\bar{n}$  in  $10^{12} \text{ at/cm}^3$ . The Ramsey time is  $T_R = 2t_\pi = 0.4 \text{ s}$  and the Ramsey fringe contrast is

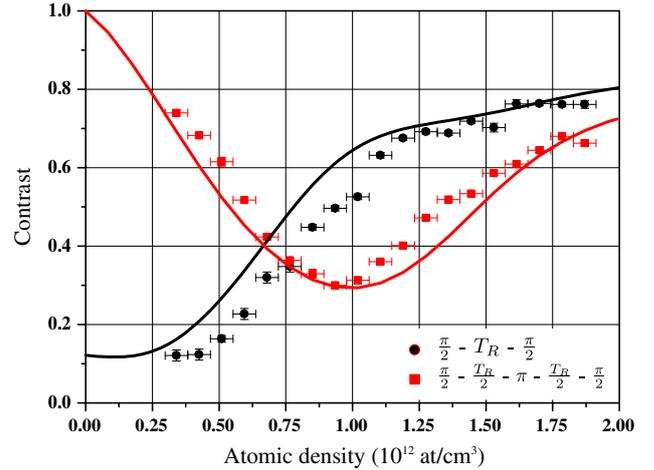


FIG. 1. First experiment: Ramsey fringe contrast as a function of the mean atomic density  $\bar{n}$  at a fixed Ramsey time  $T_R = 0.4 \text{ s}$ . Red squares and black dots correspond to a Ramsey sequence with and without applying a  $\pi$  pulse at  $t_\pi = T_R/2$ , respectively. Lines correspond to our simulation results [25]. Black line and dots: the contrast increases with the atomic density which is characteristic of the spin self-rephasing mechanism [17]. Red dashed line and squares: the  $\pi$  pulse is expected to help with canceling out the inhomogeneous broadening leading to a much higher contrast. Surprisingly, for densities larger than  $0.75 \times 10^{12} \text{ at/cm}^3$ , the  $\pi$  pulse leads to a lower contrast which reaches a minimum at an intermediate density  $1 \times 10^{12} \text{ at/cm}^3$ . This nonmonotonic behavior suggests a competition between spin echo and spin self-rephasing mechanisms.

deduced by scanning the phase of the exciting field. Without any  $\pi$  pulse, the contrast increases with the atomic density (Fig. 1, black dots), revealing the efficiency of the SSR mechanism. Applying a  $\pi$  pulse is expected to help with canceling out the inhomogeneous broadening, thus leading to a much higher contrast. For densities between  $0.3$  and  $0.75 \times 10^{12} \text{ at/cm}^3$  the  $\pi$  pulse indeed increases the contrast with respect to a standard Ramsey interferometer, but its efficiency is diminished as the density increases (Fig. 1, red squares). In fact, for higher densities the  $\pi$  pulse actually accelerates the dephasing, but in a nonmonotonic manner so that the contrast reaches a minimum at an intermediate density  $1 \times 10^{12} \text{ at/cm}^3$  and then substantially recovers at highest densities. This behavior traduces an unexpected competition between the individual spin echo and the collective SSR mechanisms.

*Two macrospins model.*—SSR was first observed in a magnetically trapped  $^{87}\text{Rb}$  ensemble [17] and subsequently employed in an optical trap [24] to extend the coherence time of a spin ensemble. This noteworthy collective mechanism extends the coherence time up to several seconds and leads to revivals of the contrast at periods of the ISRE:  $T_{\text{ex}} = 2\pi/\omega_{\text{ex}}$ . Following the two macrospins model of [26], we divide the atomic population into two groups of equal size, each characterized by a macrospin and

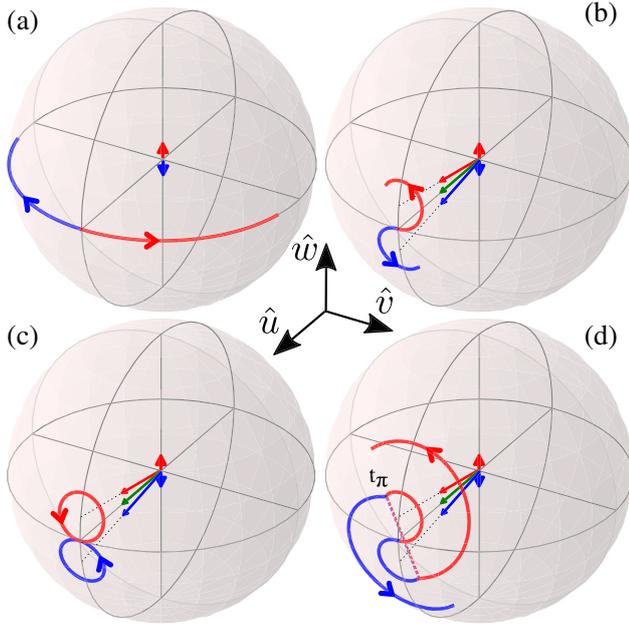


FIG. 2. The atomic population is divided into two equal classes of hot (red) and cold (blue) atoms that are represented by their macrospins trajectories on the Bloch sphere. (a) Inhomogeneous dephasing acts as a torque pointing in the  $\hat{w}$  direction that is of opposite sign for the two classes of atoms (red and blue short arrows). (b) With the ISRE, the effective magnetic field seen by the atoms is the sum of the inhomogeneity and the exchange mean field proportional to the total spin (green arrow). As a consequence, the hot (cold) macrospin precesses around the red (blue) long arrow, so that if no  $\pi$  pulse is applied they rephase at time  $T_{\text{ex}}$ : this is the SSR (c). If one applies a  $\pi$  pulse when the two macrospins are out of the equatorial plane ( $u, v$ ), the rephasing is degraded (d).

represent them by their trajectory on the Bloch sphere [17,27]. The fast (slow) macrospin corresponds to the hot (cold) atoms which occupy higher (lower) transverse states of the 3D harmonic oscillator. For the sake of simplicity, we consider the dynamics in the rotating frame where the total spin always points in the  $\hat{u}$  direction of the Bloch sphere, and the  $\pi$  pulses are rotations of  $\pi$  around this axis. Without

the ISRE, the effective magnetic field seen by the macrospins only consists in the inhomogeneity which points along  $\hat{w}$  and in opposite directions for the two macrospins. Hence, the fast macrospin rotates towards the right while the slow macrospin rotates towards the left [Fig. 2(a)]. Applying a  $\pi$  pulse at time  $t_\pi$  would swap the two macrospins, so that at time  $2 t_\pi$  the macrospins would resynchronize leading to a spin echo (not shown). With the ISRE, the effective magnetic field is now the sum of the inhomogeneity and the exchange mean field which is proportional to the total spin. As a consequence, the fast macrospin rotates around this effective magnetic field displayed as the long red arrow in Fig. 2(b), staying in the upper hemisphere of the Bloch sphere, while the slow macrospin evolves in the lower hemisphere. If no  $\pi$  pulse is applied, the macrospins reach the equatorial plane again in their initial direction  $\hat{u}$  at the exchange period: the synchronization is perfect [Fig. 2(c)]. However, if a  $\pi$  pulse is applied, swapping the two macrospins positions, their trajectories are not confined to the upper (lower) hemisphere anymore [Fig. 2(d)], so that when they reach the equatorial plane again, they are not aligned: synchronization still occurs but is not perfect anymore. The effect of the  $\pi$  pulse on SSR depends on the ratio between  $t_\pi$  and  $T_{\text{ex}}$ : when the macrospins are back in the equatorial plane the  $\pi$  pulse has no effect ( $t_\pi = p T_{\text{ex}}$  with  $p \in \mathbb{N}$ ), while the effect is worst when the macrospins are maximally out of the equatorial plane [ $t_\pi = (p + \frac{1}{2}) T_{\text{ex}}$ ].

*Second experiment.*—To further investigate the competition, we performed standard and symmetric Ramsey interferometers scanning both the phase and the Ramsey time  $T_R$  from 0 to 900 ms. We extract the fringe contrast as a function of time for different atomic densities  $\bar{n} = \{0.4, 0.9, 1.7, 2\} \times 10^{12}$  at/cm<sup>3</sup> (Fig. 3). Black circles correspond to standard Ramsey interferometers and are similar to the ones in [17], whereas the red triangles correspond to symmetric Ramsey interferometers ( $t_2 = t_\pi = T_R/2$ ). For the lowest density, inhomogeneous broadening results in a  $1/e$  dephasing time of  $T_2^* \approx 0.2$  s corresponding to an inhomogeneity of  $\Delta_0 \approx 1/T_2^* \approx 2\pi \times 0.8$  Hz using the same notations as [28], and agrees within

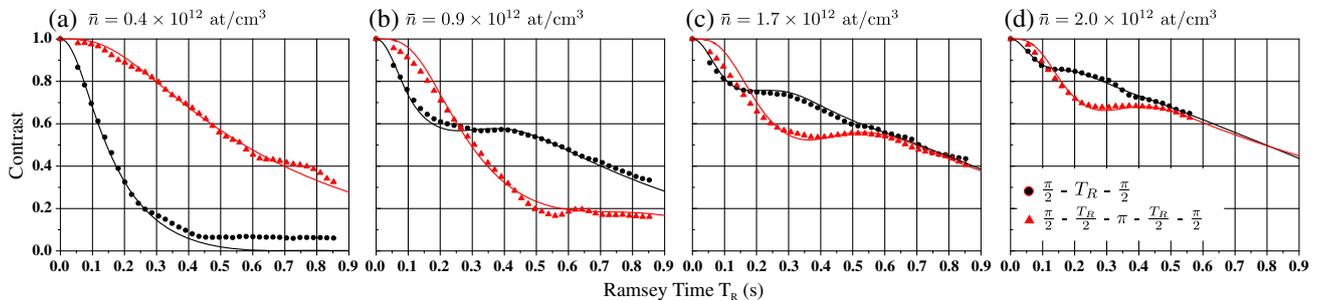


FIG. 3. Second experiment: Ramsey contrast versus Ramsey time  $T_R$  for standard Ramsey interferometers (black dots) and symmetric Ramsey interferometers with  $t_\pi = T_R/2$  (red triangles). The mean density increasing from (a) to (d) is  $\{0.4, 0.9, 1.7, 2.0\} \times 10^{12}$  at/cm<sup>3</sup>. Lines correspond to numerical simulations. For details regarding our model and the values of fit constants, see [25].

15% of our estimated inhomogeneity. In this regime we verify that the spin-echo technique is very efficient resulting in a  $1/e$  coherence time of  $T'_2 = 0.8$  s [Fig. 3(a)]. For the highest density, one observes a revival of the standard Ramsey interferometer's contrast at 0.25 s that also corresponds to a local minimum of the symmetric one [Fig. 3(d)]. Such a behavior is what one would expect from the two macrospins model described above. For the standard Ramsey interferometer the spins are fully resynchronized at the exchange period  $T_{\text{ex}}$  resulting in a revival of the Ramsey contrast at  $T_R = 0.25$  s. For the symmetric Ramsey interferometer, for the same Ramsey time, the atoms were swapped by a  $\pi$  pulse at  $t_\pi = T_R/2 = 0.125$  s (i.e., at half the exchange period), resulting in an acceleration of the dephasing and the lowest contrast of the interferometer. We observe that same phenomenon for different atomic densities  $\bar{n} = \{2, 1.7, 0.9\} \times 10^{12}$  at/cm<sup>3</sup> at different Ramsey time  $T_0 \approx \{0.25, 0.32, 0.5\}$  s with about the same scaling  $\bar{n}T_0 \approx \text{cst.}$  Notice that no such other modulation is clearly observed at multiples  $p \neq 1$  of the exchange period as it is expected from our simple model. This can be explained by our relatively high rate of lateral collisions  $\gamma_c$  that perturb SSR, resulting in a damping of the contrast revivals.

*Third experiment.*—To further understand the spin dynamics and test our numerical model [25], we measured the evolution of the contrast after a fixed  $\pi$  pulse at  $t_\pi = 0.125$  s, for three different atomic densities  $\bar{n} = \{0.4, 1.1, 2.5\} \times 10^{12}$  at/cm<sup>3</sup> (Fig. 4). We scan the Ramsey time  $T_R$  between 0 and 900 ms (with  $t_2$  not necessarily equal to  $t_\pi$ ) in order to observe the formation of a spin echo. For the lowest density, we observe a net revival

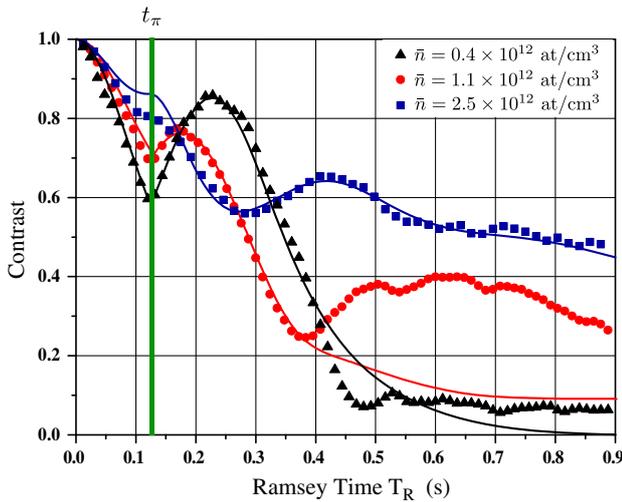


FIG. 4. Third experiment: Ramsey contrast versus Ramsey time  $T_R$  with a fixed  $\pi$  pulse at  $t_\pi = 125$  ms (green vertical line). Black triangles, red dots, and blue squares correspond to the experimental data for different atomic densities. Lines correspond to numerical simulations [25].

of the contrast at  $T_R = 2t_\pi = 0.25$  s. As it is expected when exchange interactions and thus SSR are negligible, the  $\pi$  pulse reverses the inhomogeneous dephasing and leads to a spin echo. For  $\bar{n} = 1.1 \times 10^{12}$  at/cm<sup>3</sup>, a smaller echo occurs at a time  $T_R \approx 0.18$  s  $< 2t_\pi$ . This behavior is well reproduced by our model and is a consequence of SSR which tends to faster resynchronize the spins after the  $\pi$  pulse. Increasing further the density, one cannot see any echo since for such densities the  $\pi$  pulse is now mostly a perturbation of SSR. But, for Ramsey times  $T_R > 2t_\pi$ , SSR (re)occurs at time  $T_R \approx t_\pi + T_{\text{ex}}$  resulting in a net revival of the contrast at  $\approx 0.4$  s. Note that the same behavior is observed for the intermediate atomic density at  $T_R \approx 0.6$  s. It can also be reproduced by the simulation, but with other parameters (in particular, a larger exchange rate), and at the expense of a poorer agreement at short Ramsey times. This behavior remains to be explained.

In summary, we have investigated both experimentally and theoretically the interplay between the spin-echo technique and the spin self-rephasing mechanism in a trapped atom interferometer. In particular, we show that the complex spin dynamics resulting from the competition between these two effects leads to nontrivial evolution of the coherence of the atomic ensemble. We propose a simple two macrospins model to give a qualitative insight into this dynamics. We also find a quantitative agreement between our measurements and the results of a numerical simulation.

Spin echoes have been used in a recent work [29] to observe the effect of the ISRE onto the spin diffusion coefficient of a unitary degenerate gas, allowing for the determination of the Leggett-Rice parameter [30]. Notice that in such a study, by contrast to our situation, SSR is absent as the gas is in the hydrodynamic rather than collisionless regime.

Our results illustrate the crucial role played by atomic interactions, in some cases deleterious, in others beneficial, in the dynamics of quantum sensors based on ultracold atoms. In particular, the spin dynamics and coherence of atom interferometers depend on the geometry of the sensor, through the details of the pulse sequence one uses. Whereas the spin-echo technique is not used in standard Ramsey microwave interferometry for clock spectroscopy and frequency measurements, it is widely used in other interferometer configurations as, for example, for the measurement of inertial forces, where  $\pi$  pulses are used to cancel out all clocks effects. However, in such interferometers, the two partial wave packets associated to the two internal states do not overlap perfectly and ISRE is expected to be weaker. The dependence of SSR with this overlap can be studied in an interferometer using atoms trapped in a lattice, such as [31]. Another interesting perspective would be to investigate if a modified  $\pi$  pulse (e.g., a *mirror* pulse [25]) would allow producing better spin echoes in the presence of ISRE. Similar issues are currently being studied in the context of many-body interacting quantum systems [32].

We thank Peter Rosenbusch, Wilfried Maineult, and Kurt Gibble for useful discussions. We also acknowledge financial support by the IDEX PSL (ANR-10-IDEX-0001-02 PSL) and ANR (ANR-13-BS04-0003-01). A. B. thanks the Labex First-TF for financial support.

\*franck.pereira@obspm.fr

- [1] H. Katori, M. Takamoto, V.G. Palchikov, and V.D. Ovsiannikov, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 173005 (2003).
- [2] H. Katori, K. Hashiguchi, E.Y. Ilinova, and V.D. Ovsiannikov, *Phys. Rev. Lett.* **103**, 153004 (2009).
- [3] A. Kaplan, M.F. Andersen, and N. Davidson, *Phys. Rev. A* **66**, 045401 (2002).
- [4] H.J. Lewandowski, D.M. Harber, D.L. Whitaker, and E.A. Cornell, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 070403 (2002).
- [5] E.L. Hahn, *Phys. Rev.* **80**, 580 (1950).
- [6] M.F. Andersen, A. Kaplan, and N. Davidson, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 023001 (2003).
- [7] M. Kasevich and S. Chu, *Phys. Rev. Lett.* **67**, 181 (1991).
- [8] I. Dutta, D. Savoie, B. Fang, B. Venon, C.L. Garrido Alzar, R. Geiger, and A. Landragin, *Phys. Rev. Lett.* **116**, 183003 (2016).
- [9] C. Freier, M. Hauth, V. Schkolnik, B. Leykauf, M. Schilling, H. Wziontek, H.-G. Scherneck, J. Müller, and A. Peters, *J. Phys. Conf. Ser.* **723** 012050 (2016).
- [10] P. Gillot, O. Francis, A. Landragin, F. Pereira dos Santos, and S. Merlet, *Metrologia* **51**, L15 (2014).
- [11] Z.-K. Hu, B.-L. Sun, X.-C. Duan, M.-K. Zhou, L.-L. Chen, S. Zhan, Q.-Z. Zhang, and J. Luo, *Phys. Rev. A* **88**, 043610 (2013).
- [12] F. Sorrentino, Q. Bodart, L. Cacciapuoti, Y.-H. Lien, M. Prevedelli, G. Rosi, L. Salvi, and G.M. Tino, *Phys. Rev. A* **89**, 023607 (2014).
- [13] G.W. Biedermann, X. Wu, L. Deslauriers, S. Roy, C. Mahadeswaraswamy, and M.A. Kasevich, *Phys. Rev. A* **91**, 033629 (2015).
- [14] A. Clairon, A. Landragin, S. Merlet, and F. Pereira dos Santos, *New J. Phys.* **13**, 065025 (2011).
- [15] A. Hilico, C. Solaro, M.-K. Zhou, M. Lopez, and F. Pereira dos Santos, *Phys. Rev. A* **91**, 053616 (2015).
- [16] D.M. Harber, H.J. Lewandowski, J.M. McGuirk, and E.A. Cornell, *Phys. Rev. A* **66**, 053616 (2002).
- [17] C. Deutsch, F. Ramirez-Martinez, C. Lacroûte, F. Reinhard, T. Schneider, J.N. Fuchs, F. Piéchon, F. Laloë, J. Reichel, and P. Rosenbusch, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 020401 (2010).
- [18] C. Lhuillier and F. Laloë, *J. Phys. (Paris)* **43**, 197 (1982).
- [19] We use  $a_{11} = 101.284a_0$ ,  $a_{22} = 94.946a_0$ , and  $a_{12} = 99.427a_0$  as calculated by C. Williams and found in Y.R.P. Sortais, Ph.D. thesis, Université Pierre et Marie Curie–Paris VI, 2001.
- [20] Y. Sagi, I. Almog, and N. Davidson, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 093001 (2010).
- [21] This expression for  $\gamma_c$  assumes  $a_{11} \approx a_{22} \approx a_{12} \approx 100a_0 \approx a$  as for  $^{87}\text{Rb}$ .
- [22] A. Widera, F. Gerbier, S. Fölling, T. Gericke, O. Mandel, and I. Bloch, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 190405 (2005).
- [23] A. Clairon, P. Laurent, G. Santarelli, S. Ghezali, S. Lea, and M. Bahoura, *IEEE Trans. Instrum. Meas.* **44**, 128 (1995).
- [24] G.K. Büning, J. Will, W. Ertmer, E. Rasel, J. Arlt, C. Klempt, F. Ramirez-Martinez, F. Piéchon, and P. Rosenbusch, *Phys. Rev. Lett.* **106**, 240801 (2011).
- [25] See Supplemental Material at <http://link.aps.org/supplemental/10.1103/PhysRevLett.117.163003> for details regarding our numerical model.
- [26] F. Piéchon, J.N. Fuchs, and F. Laloë, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 215301 (2009).
- [27] K. Gibble, *Physics* **3**, 55 (2010).
- [28] S. Kuhr, W. Alt, D. Schrader, I. Dotsenko, Y. Miroshnychenko, A. Rauschenbeutel, and D. Meschede, *Phys. Rev. A* **72**, 023406 (2005).
- [29] S. Trotzky, S. Beattie, C. Luciuk, S. Smale, A.B. Bardon, T. Enss, E. Taylor, S. Zhang, and J.H. Thywissen, *Phys. Rev. Lett.* **114**, 015301 (2015).
- [30] A.J. Leggett and M.J. Rice, *Phys. Rev. Lett.* **20**, 586 (1968).
- [31] B. Pelle, A. Hilico, G. Tackmann, Q. Beaufils, and F. Pereira dos Santos, *Phys. Rev. A* **87**, 023601 (2013).
- [32] T. Engl, J.D. Urbina, and K. Richter, arXiv:1409.5684v3.

# Supplemental material to: Competition between Spin Echo and Spin Self-Rephasing in a Trapped Atom Interferometer

C. Solaro,<sup>1</sup> A. Bonnin,<sup>1</sup> F. Combes,<sup>2</sup> M. Lopez,<sup>1</sup> X. Alauze,<sup>1</sup> J.-N. Fuchs,<sup>2,3</sup> F. Piéchon,<sup>2</sup> and F. Pereira Dos Santos<sup>1</sup>

<sup>1</sup>*SYRTE, Observatoire de Paris, PSL Research University, CNRS, Sorbonne Universités,  
UPMC Université Paris 06, LNE, 61 Avenue de l'Observatoire, 75014 Paris, France*

<sup>2</sup>*Laboratoire de Physique des Solides, CNRS UMR 8502,*

*Université Paris-Sud, Université Paris-Saclay, F-91405 Orsay Cedex, France*

<sup>3</sup>*Laboratoire de Physique Théorique de la Matière Condensée, CNRS UMR 7600,  
Université Pierre et Marie Curie, 4 place Jussieu, 75252 Paris Cedex 05, France*

(Dated: October 17, 2016)

## MODEL FOR SPIN DYNAMICS SIMULATIONS

### Spin dynamics in energy space and $\pi$ -pulse

For the quantitative understanding of the interplay between spin self-rephasing and the spin-echo technique, we use the same model as described in [1]. We here briefly remind the line of reasoning that leads to this model. The trap is approximated by a 3D harmonic oscillator and the motion of atoms in the trap is treated semiclassically. For the considered atom densities and trap geometry, the rate of lateral collisions is small compared to the trap frequencies  $\gamma_c \ll \omega_{x,y,z}$ . In this situation, the atoms have time to perform many back and forth periodic motion in the trap before any lateral collision takes place. In such a Knudsen regime, averaging over this fast periodic orbital motion enables to regroup the atoms according to their motional energy  $E$ . The effective spin dynamics of the gas can then be described through coupled Bloch equations of motion for energy dependent spin vectors  $\mathbf{S}(E, t)$  [1]:

$$\partial_t \mathbf{S}(E, t) \approx [\Delta_0 E \hat{\omega} + \omega_{ex} \bar{\mathbf{S}}(t)] \times \mathbf{S}(E, t) - \gamma_c [\mathbf{S}(E, t) - \bar{\mathbf{S}}(t)] \quad (1)$$

with  $\bar{\mathbf{S}}$  being the energy-average spin:

$$\bar{\mathbf{S}}(t) = \int_0^\infty dE' \frac{E'^2}{2} e^{-E'} \mathbf{S}(E', t).$$

and  $E \geq 0$  in units of  $k_B T$ . The first term on the righthand side of (1), represents the inhomogeneous precession (dephasing) which originates both from differential light shift induced by the trapping lasers and from mean-field interactions. It is linear in  $E$  for a harmonic oscillator and has for characteristic inhomogeneity  $\Delta_0$ . The second term represents the exchange mean-field that originates from the identical spin rotation effect (ISRE). It is taken here in the infinite-range approximation. This term is non-linear in spin density and is responsible for the collective spin self-rephasing mechanism [1]. The last term is the effective spin relaxation due to lateral collisions. The initial state, immediately after the first  $\pi/2$ -pulse, is taken to be  $\mathbf{S}(E, t=0) = \hat{\mathbf{u}}$ . In absence of the spin relaxation term, the spin vectors  $\mathbf{S}(E, t)$  keep their unit norm at any time. The contrast at time  $t$  is given by  $C(t) = |\bar{\mathbf{S}}(t)|$ .

The  $\pi$ -pulse is implemented by performing the instantaneous transformation  $(S_u, S_v, S_w) \rightarrow (S_u, -S_v, -S_w)$  at time  $t = t_\pi$ , for each  $\mathbf{S}(E, t_\pi)$ . After this transformation, the spin dynamics is still determined from the equation of motion (1). Consider first the case where both exchange mean-field and relaxation terms are absent. In this situation, it is well known that the forward evolution after the  $\pi$ -pulse is equivalent to a backward evolution from the initial state  $\mathbf{S}(E, t = t_\pi)$ , such that at time  $t = 2t_\pi$  one recovers  $\mathbf{S}(E, t = 2t_\pi) = \mathbf{S}(E, t = 0)$  leading to a spin echo. In other words the  $\pi$ -pulse is equivalent to a time reversal operation  $t \rightarrow -t$ . In the presence of exchange mean-field, the  $\pi$ -pulse is no more a simple time reversal operation. In fact, within the infinite range approximation, it appears now to be equivalent to the transformation  $t, \omega_{ex} \rightarrow -t, -\omega_{ex}$ . A further complication is that the exchange mean-field is a non linear spin term. The latter two properties makes it hard to anticipate if and how spin echo and spin self-rephasing mechanisms will cooperate or compete.

Interestingly, we note that in the presence of the exchange mean field it is still possible to find a class of instantaneous transformations equivalent to a pure time reversal operation  $t \rightarrow -t$ . Each of these transformation consists of a *mirror* operation which reverses the effective spin component perpendicular to a mirror plane that contains the  $\hat{\mathbf{u}}$  axis. As

an example, for the mirror plane defined by axes  $\hat{u}, \hat{w}$  the *mirror* transformation consists in reversing the  $v$  spin component:  $(S_u, S_v, S_w) \rightarrow (S_u, -S_v, S_w)$ . Some preliminary simulation results suggest that by performing such a *mirror* transformation at a time  $t = t_m$  for each  $\mathbf{S}(E, t_m)$ , we obtain an almost perfect spin-echo  $\mathbf{S}(E, t = 2t_m) = \mathbf{S}(E, t = 0)$  at time  $t = 2t_m$ , despite the non linearity of the exchange mean field. A more systematic study is needed to confirm and widen these preliminary results. Nevertheless, we stress that these *mirror* transformations are not equivalent to simple rotations and therefore we do not know if it can really be implemented experimentally.

### $\pi$ -pulse effect in the strongly synchronized regime

In order to illustrate how the  $\pi$ -pulse perturbs the spin self-rephasing mechanism we present some typical simulation results obtained in a regime of strong synchronization (i.e. when  $\omega_{ex} \gg \Delta_0$ ) which corresponds to the large density regime of the first experiment (Fig.1 of the main text). To simplify the discussion we take a collision rate  $\gamma_c = 0$  (i.e. no lateral collisions) such that the spin dynamics is now determined by only two time scales: the dephasing time  $T_0 = 2\pi/\Delta_0$  and the exchange period  $T_{ex} = 2\pi/\omega_{ex}$ . In the strongly synchronized regime ( $T_{ex} \ll T_0$ ) and in absence of any  $\pi$ -pulse, the time dependent contrast  $C(t) = |\bar{\mathbf{S}}(t)|$  presents periodic maxima at *integer* times of the exchange period ( $t = pT_{ex}$ ) and minima at *half-integer* times ( $t = (p + 1/2)T_{ex}$ ). We can now introduce a  $\pi$ -pulse at a time  $t_\pi$  and examine how the contrast is changed up to a time  $t = 2t_\pi$  at which we expect a spin-echo in absence of spin self-rephasing. We consider two extreme cases: (i) the  $\pi$ -pulse occurs at a time  $t_\pi = pT_{ex}$  which corresponds to a maximum of the contrast or (ii) the  $\pi$ -pulse occurs at a time  $t_\pi = (p + 1/2)T_{ex}$  which corresponds to a minimum of the contrast. More quantitatively, case (i) is implemented by taking  $\Delta_0/2\pi = 0.8$  Hz,  $\omega_{ex}/2\pi = 4$  Hz and  $t_\pi = 250$  ms such that  $t_\pi = T_{ex}$ . To obtain case (ii), instead of changing the value  $t_\pi$  we choose to change the exchange rate to  $\omega_{ex}/2\pi = 6$  Hz such that now  $t_\pi = \frac{3}{2}T_{ex}$ .

The simulation results for case (i) are shown on figures Fig.1.a (no  $\pi$ -pulse) and Fig.1.b (integer  $\pi$ -pulse). Correspondingly, the results for case (ii) are shown on figures Fig.1.c (no  $\pi$ -pulse) and Fig.1.d (half-integer  $\pi$ -pulse). Let's consider first the black curves which represent the time dependent contrast  $C(t)$ . Comparing Fig.1.a and Fig.1.b, it seems that the integer  $\pi$ -pulse is a small perturbation only that slightly amplifies the variation of the contrast. On the other hand, when comparing Fig.1.c and Fig.1.d, it is immediate to see that the half-integer  $\pi$ -pulse constitutes a much stronger perturbation. More precisely, in this situation, the  $\pi$ -pulse strongly amplifies the contrast variation. For instance the minima become much deeper. Moreover both the positions of minima and maxima are strongly shifted in time.

In order to gain a deeper understanding on the origin of the contrast variation induced by the  $\pi$ -pulse, it appears instructive to look at the time dependent dynamics of the component  $S_w(t)$ , separately for cold (blue curves) and hot (red curves) atoms. More precisely, the blue curves are obtained from defining  $S_w^{\text{cold}}(t) = \int_0^{E_{\text{half}}} dE' \frac{E'^2}{2} e^{-E'} S_w(E', t)$  and the red curves from defining  $S_w^{\text{hot}}(t) = \int_{E_{\text{half}}}^\infty dE' \frac{E'^2}{2} e^{-E'} S_w(E', t)$ , where the energy scale  $E_{\text{half}}$  (obtained from  $\int_0^{E_{\text{half}}} dE' \frac{E'^2}{2} e^{-E'} = 1/2$ ) separates the gas into two equally populated classes of hot and cold atoms. For the considered initial conditions, the hot and cold components verify the identity  $S_w^{\text{cold}}(t) = -S_w^{\text{hot}}(t)$  such that their sum vanishes at any time  $t$ . Looking at figures Fig.1.(a,b,c,d), we observe that before the  $\pi$ -pulse ( $t < t_\pi$ ) the hot component  $S_w^{\text{hot}}(t)$  is positive definite whereas the cold one  $S_w^{\text{cold}}(t)$  is negative definite. In addition, for  $t < t_\pi$  the hot and cold components of  $S_w(t)$  oscillate periodically such that the minima of the contrast  $C(t)$  coincide with the maxima of their modulus whereas the maxima of  $C(t)$  are located at the minima of their modulus  $|S_w^{\text{hot}}(t)| = |S_w^{\text{cold}}(t)| \approx 0$ . Consider now the situation on figures Fig.1.(b,d) after the  $\pi$ -pulse ( $t > t_\pi$ ). Since  $S_w^{\text{cold}}(t) = -S_w^{\text{hot}}(t)$ , it is sufficient to analyze the behavior of the hot component  $S_w^{\text{hot}}(t)$  which corresponds to the red curves. For  $t > t_\pi$ , we observe that  $S_w^{\text{hot}}(t)$  still oscillates periodically but now also exhibits changes of sign. Interestingly, the time averaged value of  $S_w^{\text{hot}}(t)$  stays the same as before the  $\pi$ -pulse so that the variation amplitude of  $S_w^{\text{hot}}(t)$  has necessarily increased. In fact, the minimal (negative) value of  $S_w^{\text{hot}}(t)$  appears to exactly corresponds to minus the value of  $S_w^{\text{hot}}(t = t_\pi)$  just before applying the pulse. As a consequence, for a half-integer  $\pi$ -pulse, the amplitude of variation of  $S_w^{\text{hot}}(t)$  is expected to have been multiplied by a factor three (figure Fig.1.d). Furthermore, we note that the maxima of  $S_w^{\text{hot}}(t)$  still coincide with the minima of the contrast  $C(t)$  whereas the maxima of  $C(t)$  now coincide with the new (negative) minima of  $S_w^{\text{hot}}(t)$ . The latter property constitutes the most surprising feature of the effect of the  $\pi$ -pulse. It also explains the shift in position of the maxima of  $C(t)$  which are now expected to occurs at time  $t \approx t_\pi + pT_{ex}$ . To conclude, we note that the qualitative picture developed in this last paragraph is largely at the origin of the two macrospins schematic model detailed in the main text of the paper.

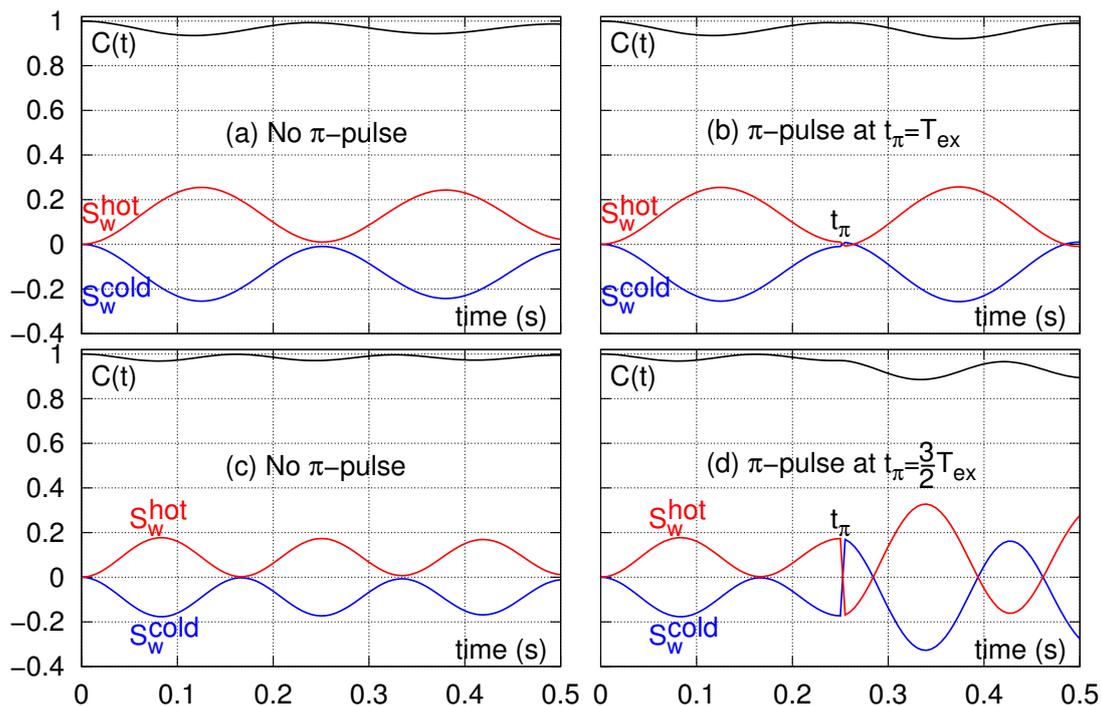


FIG. 1. (Color online). The black curves represent the time dependent contrast  $C(t) = |\bar{S}(t)|$ . The red curves represent the  $w$  component  $S_w^{\text{hot}}(t)$  of the hot atoms. The blue curves represent the  $w$  component  $S_w^{\text{cold}}(t)$  of the cold atoms. The hot and cold components verify the identity  $S_w^{\text{cold}}(t) = -S_w^{\text{hot}}(t)$  such that their sum vanishes at any time  $t$  (green zero line). For all figures  $\Delta_0/2\pi = 0.8$  Hz and  $\gamma_c = 0$ . Figs 1.(a,b)  $\omega_{ex}/2\pi = 4$  Hz. Figs 1.(c,d)  $\omega_{ex}/2\pi = 6$  Hz. (a) No  $\pi$ -pulse. (b)  $\pi$ -pulse at  $t_\pi = 0.25$ . The  $\pi$ -pulse occurs at integer exchange time:  $t_\pi = T_{ex}$ . (c) No- $\pi$ -pulse. (d)  $\pi$ -pulse at  $t_\pi = 0.25$  s. The  $\pi$ -pulse occurs at half-integer exchange time  $t_\pi = \frac{3}{2}T_{ex}$ .

### FITTING PARAMETERS FOR THE SECOND EXPERIMENT

The equations of motion (1) contains three experimentally tunable parameters: the inhomogeneity  $\Delta_0$ , the ISRE rate  $\omega_{ex}$  and the lateral collision rate  $\gamma_c$ . As explained in the main text, within the considered experimental conditions, their predicted values are respectively  $\Delta_0/2\pi \approx (0.3 + 0.7\bar{n})$  Hz,  $\omega_{ex}/2\pi \approx 7.5\bar{n}$  Hz and  $\gamma_c \approx 2.4\bar{n}$  s $^{-1}$  as function of the mean atom density  $\bar{n}$  in unit  $10^{12}$  at/cm $^3$ . In practice, for each density we consider  $\Delta_0, \omega_{ex}$  and  $\gamma_c$  as fitting parameters in order to best fit the experimental data. As typical example, figures Fig.2.a,b,c illustrate the values found for  $\Delta_0, \omega_{ex}$  and  $\gamma_c$  in the case of the second experiment (Fig.3.a,b,c,d of the main text), where data obtained with or without  $\pi$ -pulse are fitted independently. The straight lines on these figures suggest that the best fits are obtained for  $\Delta_0/2\pi \approx (0.8 \pm 0.1)$  Hz,  $\omega_{ex}/2\pi \approx (2.2 \pm .1)\bar{n}$  Hz and  $\gamma_c \approx (.53 \pm .04)\bar{n}$  s $^{-1}$ . The fitted values for  $\Delta_0, \omega_{ex}, \gamma_c$  show the same tendency as in previous experiments [1] and [2]. In particular, we remind that the necessity to take smaller values for  $\omega_{ex}, \gamma_c$  can be attributed to the fact that these two contributions are taken in an infinite range approximation in eq.(1); this has a tendency to overestimate their effects. We note however that, in all experiments, the fitted values for  $\Delta_0$  appear almost density independent in striking contrast to the prediction. The latter feature still remains to be explained.

- 
- [1] C. Deutsch, F. Ramirez-Martinez, C. Lacroûte, F. Reinhard, T. Schneider, J. N. Fuchs, F. Piéchon, F. Laloë, J. Reichel, and P. Rosenbusch, *Physical Review Letters* **105**, 020401 (2010).  
 [2] G. Kleine Büning, J. Will, W. Ertmer, E. Rasel, J. Arlt, C. Klempt, F. Ramirez-Martinez, F. Piéchon, and P. Rosenbusch, *Physical Review Letters* **106**, 240801 (2011).

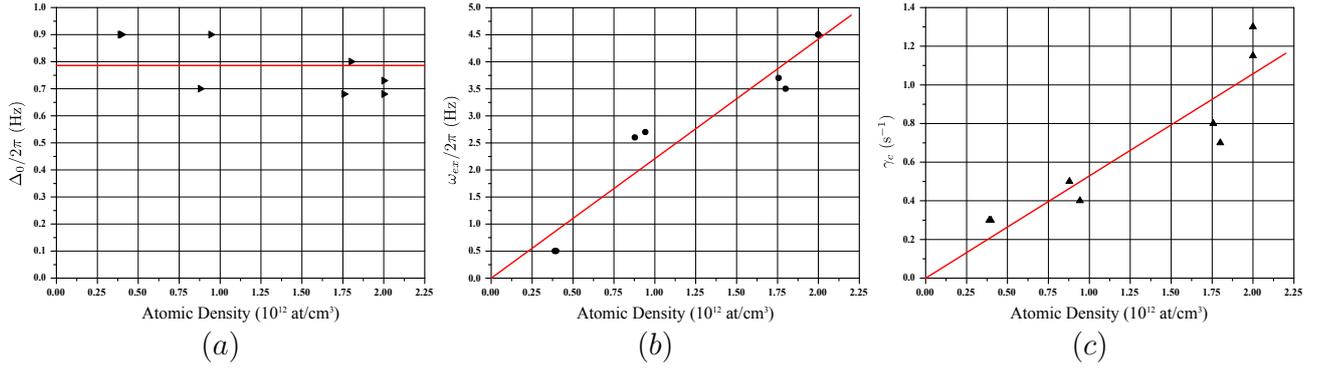


FIG. 2. (Color online). Fitting parameters corresponding to the second set of experiments of the main text: (a) the inhomogeneity  $\Delta_0$ , (b) the ISRE rate  $\omega_{ex}$ , (c) the collision rate  $\gamma_c$ . The straight lines on these figures suggest that the best fits are obtained for  $\Delta_0/2\pi \approx (0.8 \pm 0.1)$  Hz,  $\omega_{ex}/2\pi \approx (2.2 \pm .1)\bar{n}$  Hz and  $\gamma_c \approx (.53 \pm .04)\bar{n}$  s $^{-1}$  which are to be compared with predicted values  $\Delta_0/2\pi \approx (0.3 + 0.7\bar{n})$  Hz,  $\omega_{ex}/2\pi \approx 7.5\bar{n}$  Hz and  $\gamma_c \approx 2.4\bar{n}$  s $^{-1}$ , with  $\bar{n}$  the mean atom density in  $10^{12}$  at/cm $^3$  unit.

# Bibliographie

1. FEYNMAN, R. P. **Feynman lectures on physics. Volume 2: Mainly electromagnetism and matter** chap. 10-11 (1964).
2. ASHCROFT, N. W. & MERMIN, N. D. **Solid state physics** chap. 27 (Saunders, Philadelphia, 1976).
3. KING-SMITH, R. D. & VANDERBILT, D. **Theory of polarization of crystalline solids.** *Phys. Rev. B* **47**, 1651-1654 (1993).
4. VANDERBILT, D. & KING-SMITH, R. D. **Electric polarization as a bulk quantity and its relation to surface charge.** *Phys. Rev. B* **48**, 4442-4455 (1993).
5. RESTA, R. **Macroscopic polarization in crystalline dielectrics: the geometric phase approach.** *Rev. Mod. Phys.* **66**, 899-915 (1994).
6. LANDAU, L. D., BELL, J., KEARSLEY, M., PITAEVSKII, L., LIFSHITZ, E. & SYKES, J. **Electrodynamics of continuous media** chap. 14 (Elsevier, 2013).
7. BLOCH, F. Über die quantenmechanik der elektronen in kristallgittern. *Zeitschrift für physik* **52**, 555-600 (1929).
8. ZAK, J. **Berry's phase for energy bands in solids.** *Phys. Rev. Lett.* **62**, 2747-2750 (1989).
9. SPALDIN, N. A. **A beginner's guide to the modern theory of polarization.** *Journal of Solid State Chemistry* **195**. Polar Inorganic Materials : Design Strategies and Functional Properties, 2-10 (2012).
10. RESTA, R. & VANDERBILT, D. in *Physics of Ferroelectrics : A Modern Perspective* 31-68 (Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 2007). doi :[10.1007/978-3-540-34591-6\\_2](https://doi.org/10.1007/978-3-540-34591-6_2).
11. RABI, I. I., ZACHARIAS, J. R., MILLMAN, S. & KUSCH, P. **A New Method of Measuring Nuclear Magnetic Moment.** *Phys. Rev.* **53**, 318-318 (1938).
12. RAMSEY, N. F. **A Molecular Beam Resonance Method with Separated Oscillating Fields.** *Phys. Rev.* **78**, 695-699 (1950).
13. HAHN, E. L. **Spin Echoes.** *Phys. Rev.* **80**, 580-594 (1950).

14. LHUILLIER, C. & LALOË, F. Transport properties in a spin polarized gas, I. *Journal de Physique* **43**, 197-224 (1982).
15. DEUTSCH, C., RAMIREZ-MARTINEZ, F., LACROÛTE, C., REINHARD, F., SCHNEIDER, T., FUCHS, J. N., PIÉCHON, F., LALOË, F., REICHEL, J. & ROSENBUSCH, P. **Spin Self-Rephasing and Very Long Coherence Times in a Trapped Atomic Ensemble**. *Phys. Rev. Lett.* **105**, 020401 (2010).
16. KOHN, W. **Theory of the Insulating State**. *Phys. Rev.* **133**, A171-A181 (1964).
17. WANNIER, G. H. **Wave Functions and Effective Hamiltonian for Bloch Electrons in an Electric Field**. *Phys. Rev.* **117**, 432-439 (1960).
18. RESTA, R. **Manifestations of Berry's phase in molecules and condensed matter**. *Journal of Physics : Condensed Matter* **12**, R107 (2000).
19. COMBES, F., TRESCHER, M., PIÉCHON, F. & FUCHS, J.-N. **Statistical mechanics approach to the electric polarization and dielectric constant of band insulators**. *Phys. Rev. B* **94**, 155109 (2016).
20. XIAO, D., CHANG, M.-C. & NIU, Q. **Berry phase effects on electronic properties**. *Rev. Mod. Phys.* **82**, 1959-2007 (2010).
21. MARZARI, N., MOSTOFI, A. A., YATES, J. R., SOUZA, I. & VANDERBILT, D. **Maximally localized Wannier functions: Theory and applications**. *Rev. Mod. Phys.* **84**, 1419-1475 (2012).
22. NUNES, R. W. & VANDERBILT, D. **Real-Space Approach to Calculation of Electric Polarization and Dielectric Constants**. *Phys. Rev. Lett.* **73**, 712-715 (1994).
23. NUNES, R. W. & GONZE, X. **Berry-phase treatment of the homogeneous electric field perturbation in insulators**. *Phys. Rev. B* **63**, 155107 (2001).
24. SOUZA, I., ÍÑIGUEZ, J. & VANDERBILT, D. **First-Principles Approach to Insulators in Finite Electric Fields**. *Phys. Rev. Lett.* **89**, 117602 (2002).
25. UMARI, P. & PASQUARELLO, A. **Ab initio Molecular Dynamics in a Finite Homogeneous Electric Field**. *Phys. Rev. Lett.* **89**, 157602 (2002).
26. BERNEVIG, B. A. & HUGHES, T. L. **Topological insulators and topological superconductors** (Princeton university press, 2013).
27. BERRY, M. V. **The quantum phase, five years after**. *Geometric phases in physics* **7** (1989).
28. HALDANE, F. D. M. **Model for a Quantum Hall Effect without Landau Levels: Condensed-Matter Realization of the "Parity Anomaly"**. *Phys. Rev. Lett.* **61**, 2015-2018 (1988).
29. RAOUX, A. **Orbital magnetism and geometrical aspects of band theory** Thèse (Université Paris-Saclay, 2017).

30. FUKUYAMA, H., BARI, R. A. & FOGEDBY, H. C. **Tightly Bound Electrons in a Uniform Electric Field**. *Phys. Rev. B* **8**, 5579-5586 (1973).
31. ZENER, C. **A theory of the electrical breakdown of solid dielectrics**. *Proceedings of the Royal Society of London A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences* **145**, 523-529 (1934).
32. MARZARI, N. & VANDERBILT, D. **Maximally localized generalized Wannier functions for composite energy bands**. *Phys. Rev. B* **56**, 12847-12865 (1997).
33. DOMÍNGUEZ-ADAME, F. Beyond the semiclassical description of Bloch oscillations. *European Journal of Physics* **31**, 639 (2010).
34. SWIECICKI, S. D. & SIPE, J. E. **Linear response of crystals to electromagnetic fields: Microscopic charge-current density, polarization, and magnetization**. *Phys. Rev. B* **90**, 125115 (2014).
35. SIPE, J. E. & SHKREBTII, A. I. **Second-order optical response in semiconductors**. *Phys. Rev. B* **61**, 5337-5352 (2000).
36. EMIN, D. & HART, C. F. **Existence of Wannier-Stark localization**. *Phys. Rev. B* **36**, 7353-7359 (1987).
37. MAKSIMOV, D. N., BULGAKOV, E. N. & KOLOVSKY, A. R. **Wannier-Stark states in double-periodic lattices. I. One-dimensional lattices**. *Phys. Rev. A* **91**, 053631 (2015).
38. KELARDEH, H. K., APALKOV, V. & STOCKMAN, M. I. **Wannier-Stark states of graphene in strong electric field**. *Phys. Rev. B* **90**, 085313 (2014).
39. MAKSIMOV, D. N., BULGAKOV, E. N. & KOLOVSKY, A. R. **Wannier-Stark states in double-periodic lattices. II. Two-dimensional lattices**. *Phys. Rev. A* **91**, 053632 (2015).
40. RICE, M. J. & MELE, E. J. **Elementary Excitations of a Linearly Conjugated Diatomic Polymer**. *Phys. Rev. Lett.* **49**, 1455-1459 (1982).
41. SU, W. P., SCHRIEFFER, J. R. & HEEGER, A. J. **Solitons in Polyacetylene**. *Phys. Rev. Lett.* **42**, 1698-1701 (1979).
42. THOULESS, D. J. **Quantization of particle transport**. *Phys. Rev. B* **27**, 6083-6087 (1983).
43. SWITKES, M., MARCUS, C. M., CAMPMAN, K. & GOSSARD, A. C. **An Adiabatic Quantum Electron Pump**. *Science* **283**, 1905-1908 (1999).
44. RESTA, R. **Quantum-Mechanical Position Operator in Extended Systems**. *Phys. Rev. Lett.* **80**, 1800-1803 (1998).
45. KIVELSON, S. **Wannier functions in one-dimensional disordered systems: Application to fractionally charged solitons**. *Phys. Rev. B* **26**, 4269-4277 (1982).
46. AVRON, J. E. The lifetime of Wannier ladder states. *Annals of Physics* **143**, 33-53 (1982).

47. GLÜCK, M., KOLOVSKY, A. R. & KORSCH, H. J. **Lifetime of Wannier-Stark States.** *Phys. Rev. Lett.* **83**, 891-894 (1999).
48. NIU, Q. & RAIZEN, M. G. **How Landau-Zener Tunneling Takes Time.** *Phys. Rev. Lett.* **80**, 3491-3494 (1998).
49. MAITI, A. & FALICOV, L. M. **Local-chemical-potential approach to small-cluster many-body systems.** *Phys. Rev. B* **43**, 788-795 (1991).
50. THOULESS, D. J., KOHMOTO, M., NIGHTINGALE, M. P. & den NIJS, M. **Quantized Hall Conductance in a Two-Dimensional Periodic Potential.** *Phys. Rev. Lett.* **49**, 405-408 (1982).
51. HATSUGAI, Y. **Chern number and edge states in the integer quantum Hall effect.** *Phys. Rev. Lett.* **71**, 3697-3700 (1993).
52. COH, S. & VANDERBILT, D. **Electric Polarization in a Chern Insulator.** *Phys. Rev. Lett.* **102**, 107603 (2009).
53. SOLUYANOV, A. A. & VANDERBILT, D. **Wannier representation of  $\mathbb{Z}_2$  topological insulators.** *Phys. Rev. B* **83**, 035108 (2011).
54. THONHAUSER, T. & VANDERBILT, D. **Insulator/Chern-insulator transition in the Haldane model.** *Phys. Rev. B* **74**, 235111 (2006).
55. NIIZEKI, K. & MATSUMURA, A. **Stark ladder in a one-dimensional quasiperiodic system.** *Phys. Rev. B* **48**, 4126-4129 (1993).
56. SALAZAR, F. & NAUMIS, G. **Electric fields on quasiperiodic potentials.** *Journal of Physics : Condensed Matter* **22**, 115501 (2010).
57. COHEN-TANNOUDJI, C., DUPONT-ROC, J. & GRYNBERG, G. **Photons and Atoms-Introduction to Quantum Electrodynamics**, 486 (1997).
58. BURT, E. A., GHRIST, R. W., MYATT, C. J., HOLLAND, M. J., CORNELL, E. A. & WIEMAN, C. E. **Coherence, Correlations, and Collisions: What One Learns about Bose-Einstein Condensates from Their Decay.** *Phys. Rev. Lett.* **79**, 337-340 (1997).
59. STAMPER-KURN, D. M. & UEDA, M. **Spinor Bose gases: Symmetries, magnetism, and quantum dynamics.** *Rev. Mod. Phys.* **85**, 1191-1244 (2013).
60. NAYLOR, B., BREWCZYK, M., GAJDA, M., GORCEIX, O., MARÉCHAL, E., VERNAC, L. & LABURTHER-TOLRA, B. **Competition between Bose-Einstein Condensation and Spin Dynamics.** *Phys. Rev. Lett.* **117**, 185302 (2016).
61. KATORI, H., TAKAMOTO, M., PAL'CHIKOV, V. G. & OVSIANNIKOV, V. D. **Ultrastable Optical Clock with Neutral Atoms in an Engineered Light Shift Trap.** *Phys. Rev. Lett.* **91**, 173005 (2003).

62. KATORI, H., HASHIGUCHI, K., IL'INOVA, E. Y. & OVSIANNIKOV, V. D. **Magic Wavelength to Make Optical Lattice Clocks Insensitive to Atomic Motion.** *Phys. Rev. Lett.* **103**, 153004 (2009).
63. KAPLAN, A., FREDSLUND ANDERSEN, M. & DAVIDSON, N. **Suppression of inhomogeneous broadening in rf spectroscopy of optically trapped atoms.** *Phys. Rev. A* **66**, 045401 (2002).
64. LEWANDOWSKI, H. J., HARBER, D. M., WHITAKER, D. L. & CORNELL, E. A. **Observation of Anomalous Spin-State Segregation in a Trapped Ultracold Vapor.** *Phys. Rev. Lett.* **88**, 070403 (2002).
65. ANDERSEN, M. F., KAPLAN, A. & DAVIDSON, N. **Echo Spectroscopy and Quantum Stability of Trapped Atoms.** *Phys. Rev. Lett.* **90**, 023001 (2003).
66. KASEVICH, M. & CHU, S. **Atomic interferometry using stimulated Raman transitions.** *Phys. Rev. Lett.* **67**, 181-184 (1991).
67. HILICO, A., SOLARO, C., ZHOU, M.-K., LOPEZ, M. & PEREIRA DOS SANTOS, F. **Contrast decay in a trapped-atom interferometer.** *Phys. Rev. A* **91**, 053616 (2015).
68. KUHR, S., ALT, W., SCHRADER, D., DOTSENKO, I., MIROSHNYCHENKO, Y., RAUSCHENBEUTEL, A. & MESCHÉDE, D. **Analysis of dephasing mechanisms in a standing-wave dipole trap.** *Phys. Rev. A* **72**, 023406 (2005).
69. SOLARO, C., BONNIN, A., COMBES, F., LOPEZ, M., ALAUZE, X., FUCHS, J.-N., PIÉCHON, F. & PEREIRA DOS SANTOS, F. **Competition between Spin Echo and Spin Self-Rephasing in a Trapped Atom Interferometer.** *Phys. Rev. Lett.* **117**, 163003 (2016).
70. FUCHS, J.-N., PIÉCHON, F., LALOË, F. & ROSENBUSCH, P. Spin kinetic equation in energy space : application to spin synchronisation in a trapped ultracold gas (unpublished).
71. JACKSON, J. D. Electrodynamics. *The Optics Encyclopedia* (1975).
72. FABRE, C. Atomes et Lumière – Interaction matière-rayonnement (2006).
73. SOLARO, C. **Trapped atom interferometers : from low to high density regime** Thèse (Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2016).
74. WOOTERS, W. K. **A Wigner-function formulation of finite-state quantum mechanics.** *Annals of Physics* **176**, 1-21 (1987).
75. POLKOVNIKOV, A. **Phase space representation of quantum dynamics.** *Annals of Physics* **325**, 1790-1852 (2010).
76. FUCHS, J.-N. **Contribution à la mécanique statistique quantique des gaz froids** Theses (Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, juin 2003).
77. COHEN-TANNOUDJI, C., DUPONT-ROC, J. & GRYNBERG, G. Atom-photon interactions : basic processes and applications, 678 (1998).

78. PUCCI, L., ROY, A. & KASTNER, M. **Simulation of quantum spin dynamics by phase space sampling of Bogoliubov-Born-Green-Kirkwood-Yvon trajectories.** *Phys. Rev. B* **93**, 174302 (2016).
79. YVON, J. *Compte-Rendus de l'Académie des Sciences.* **264**, 2858 (1958).
80. SNIDER, R. F. **Quantum-Mechanical Modified Boltzmann Equation for Degenerate Internal States.** *The Journal of Chemical Physics* **32**, 1051-1060 (1960).
81. BAND, Y. B. & JULIENNE, P. S. **Optical-Bloch-equation method for cold-atom collisions: Cs loss from optical traps.** *Phys. Rev. A* **46**, 330-343 (1992).
82. SMITH, H. & JENSEN, H. *Transport Phenomena* chap. 1 (Clarendon Press, 1989).
83. WIDERA, A., GERBIER, F., FÖLLING, S., GERICKE, T., MANDEL, O. & BLOCH, I. **Coherent Collisional Spin Dynamics in Optical Lattices.** *Phys. Rev. Lett.* **95**, 190405 (2005).
84. PIÉCHON, F., FUCHS, J. N. & LALOË, F. **Cumulative Identical Spin Rotation Effects in Collisionless Trapped Atomic Gases.** *Phys. Rev. Lett.* **102**, 215301 (2009).
85. SAGI, Y., ALMOG, I. & DAVIDSON, N. **Universal Scaling of Collisional Spectral Narrowing in an Ensemble of Cold Atoms.** *Phys. Rev. Lett.* **105**, 093001 (2010).
86. PRENTISS, M., CABLE, A., BJORKHOLM, J. E., CHU, S., RAAB, E. L. & PRITCHARD, D. E. **Atomic-density-dependent losses in an optical trap.** *Opt. Lett.* **13**, 452-454 (1988).
87. JULIENNE, P. S. & VIGUÉ, J. **Cold collisions of ground- and excited-state alkali-metal atoms.** *Phys. Rev. A* **44**, 4464-4485 (1991).
88. SESKO, D., WALKER, T., MONROE, C., GALLAGHER, A. & WIEMAN, C. **Collisional losses from a light-force atom trap.** *Phys. Rev. Lett.* **63**, 961-964 (1989).
89. GALLAGHER, A. & PRITCHARD, D. E. **Exoergic collisions of cold Na\*-Na.** *Phys. Rev. Lett.* **63**, 957-960 (1989).
90. DU, X., ZHANG, Y., PETRICKA, J. & THOMAS, J. E. **Controlling Spin Current in a Trapped Fermi Gas.** *Phys. Rev. Lett.* **103**, 010401 (2009).
91. CASIMIR, H. B. G. & POLDER, D. **The Influence of Retardation on the London-van der Waals Forces.** *Phys. Rev.* **73**, 360-372 (1948).
92. WOLF, P., LEMONDE, P., LAMBRECHT, A., BIZE, S., LANDRAGIN, A. & CLAIRON, A. **From optical lattice clocks to the measurement of forces in the Casimir regime.** *Phys. Rev. A* **75**, 063608 (2007).
93. CLAIRON, A., LAURENT, P., SANTARELLI, G., GHEZALI, S., LEA, S. N. & BAHOURA, M. **A cesium fountain frequency standard: preliminary results.** *IEEE Transactions on Instrumentation and Measurement* **44**, 128-131 (1995).

94. KLEINE BÜNING, G., WILL, J., ERTMER, W., RASEL, E., ARLT, J., KLEMPT, C., RAMIREZ-MARTINEZ, F., PIÉCHON, F. & ROSENBUSCH, P. **Extended Coherence Time on the Clock Transition of Optically Trapped Rubidium**. *Phys. Rev. Lett.* **106**, 240801 (2011).
95. BONNIN, A., SOLARO, C., ALAUZE, X. & PEREIRA DOS SANTOS, F. Magic density in a self-rephasing ensemble of trapped ultracold atoms. *ArXiv e-prints* (2018).
96. HUBBARD, J. **Electron correlations in narrow energy bands**. *Proceedings of the Royal Society of London A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences* **276**, 238-257 (1963).
97. KANAMORI, J. **Electron Correlation and Ferromagnetism of Transition Metals**. *Progress of Theoretical Physics* **30**, 275-289 (1963).
98. GUTZWILLER, M. C. **Effect of Correlation on the Ferromagnetism of Transition Metals**. *Phys. Rev. Lett.* **10**, 159-162 (1963).
99. NOURAFKAN, R. & KOTLIAR, G. **Electric polarization in correlated insulators**. *Phys. Rev. B* **88**, 155121 (2013).
100. WIESENFELD, K., COLET, P. & STROGATZ, S. H. **Synchronization Transitions in a Disordered Josephson Series Array**. *Phys. Rev. Lett.* **76**, 404-407 (1996).
101. ACEBRÓN, J. A., BONILLA, L. L., PÉREZ VICENTE, C. J., RITORT, F. & SPIGLER, R. **The Kuramoto model: A simple paradigm for synchronization phenomena**. *Rev. Mod. Phys.* **77**, 137-185 (2005).
102. KWASIGROCH, M. P. & COOPER, N. R. **Synchronization transition in dipole-coupled two-level systems with positional disorder**. *Phys. Rev. A* **96**, 053610 (2017).
103. MAINEULT, W., DEUTSCH, C., GIBBLE, K., REICHEL, J. & ROSENBUSCH, P. **Spin Waves and Collisional Frequency Shifts of a Trapped-Atom Clock**. *Phys. Rev. Lett.* **109**, 020407 (2012).
104. HAYDEN, M. E., BAUDIN, E., TASTEVIN, G. & NACHER, P. J. **NMR Time Reversal as a Probe of Incipient Turbulent Spin Dynamics**. *Phys. Rev. Lett.* **99**, 137602 (2007).
105. SCHMITT, M. & KEHREIN, S. Effective time reversal and echo dynamics in the transverse field Ising model. *EPL (Europhysics Letters)* **115**, 50001 (2016).
106. ENGL, T., URBINA, J. D., RICHTER, K. & SCHLAGHECK, P. **Many-body spin echo**. *Phys. Rev. A* **98**, 013630 (2018).
107. RHIM, W.-K., PINES, A. & WAUGH, J. S. **Time-Reversal Experiments in Dipolar-Coupled Spin Systems**. *Phys. Rev. B* **3**, 684-696 (1971).
108. KOLLER, A. P., MUNDINGER, J., WALL, M. L. & REY, A. M. **Demagnetization dynamics of noninteracting trapped fermions**. *Phys. Rev. A* **92**, 033608 (2015).

109. LEPOUTRE, S., GABARDOS, L., KECHADI, K., PEDRI, P., GORCEIX, O., MARÉCHAL, E., VERNAC, L. & LABURTHE-TOLRA, B. **Collective Spin Modes of a Trapped Quantum Ferrofluid**. *Phys. Rev. Lett.* **121**, 013201 (2018).
110. SOMMER, C., PUPILLO, G., TAKEI, N., TAKEDA, S., TANAKA, A., OHMORI, K. & GENES, C. **Time-domain Ramsey interferometry with interacting Rydberg atoms**. *Phys. Rev. A* **94**, 053607 (2016).
111. BEAUFILS, Q., TACKMANN, G., WANG, X., PELLE, B., PELISSON, S., WOLF, P. & dos SANTOS, F. P. **Laser Controlled Tunneling in a Vertical Optical Lattice**. *Phys. Rev. Lett.* **106**, 213002 (2011).



**Titre :** Thermodynamique de la réponse électrique dans les isolants de bande – Synchronisation et écho de spin dans une horloge atomique

**Mots clés :** diélectriques cristallins, échelle de Wannier-Stark, polarisation électrique, phase de Zak, susceptibilité électrique, atomes froids, écho de spin, auto-synchronisation

**Résumé :** Le travail présenté dans ce manuscrit porte sur deux sujets distincts. Le premier concerne la réponse d'un diélectrique cristallin à un champ électrique uniforme ; il s'ancre sur la théorie moderne de la polarisation développée par King-Smith, Vanderbilt et Resta. En nous restreignant d'abord au cas unidimensionnel, nous décrivons de manière perturbative à faible champ électrique le spectre de Wannier-Stark d'un modèle de bande. Nous utilisons ensuite ce développement dans une approche thermodynamique que nous modifions pour palier aux problèmes posés par le caractère non-borné du spectre de Wannier-Stark : nous introduisons en particulier un potentiel chimique local assurant la neutralité électrique locale au sein du cristal. Cette approche permet d'accéder à la polarisation et à la susceptibilité électrique des cristaux diélectriques. Finalement, nous étendons le travail effectué au cas bidimensionnel où de nou-

velles caractéristiques associé aux isolants topologiques apparaissent.

Le deuxième sujet porte sur la synchronisation de spin dans les gaz d'atomes froids. Nous étudions la compétition entre le mécanisme d'écho de spin et le phénomène d'auto-synchronisation lié à l'effet de rotation des spins identiques (*ISRE*). La méthode de l'écho de spin permet de compenser certains déphasage apparaissant dans une gaz d'atomes ultra-froid piégé, et accroît ainsi le temps de cohérence de l'ensemble. L'*ISRE* apparaît dans les gaz denses via les collisions entre atomes et conduit également à un accroissement du temps de cohérence. Nous montrons que ces deux mécanismes ne sont pas systématiquement compatibles. En particulier, leur compatibilité est lié à la relation entre les échelles de temps propres à chacun des phénomènes.

**Title :** Thermodynamics of the electrical response in band insulators – Synchronisation and spin-echo in cold atom gases

**Keywords :** Crystalline dielectrics, Wannier-Stark ladder, electric polarisation, Zak phase, electric susceptibility, cold atoms, spin-echo, self-synchronisation

**Abstract :** The work exposed in this manuscript covers two distinct topics. The first is about the response of crystalline dielectrics to an external static electric field; it is based on King-Smith, Vanderbilt and Resta modern theory of polarisation. Restricting ourselves to the 1D case, we first describe the Wannier-Stark ladder of a band model with a low-field perturbative approach. We then use this development to derive the thermodynamical response of the band model. We have to modify the usual thermodynamics to account for the unboundedness of the Wannier-Stark spectrum, through the introduction of a local chemical potential which ensures local electric neutrality in the crystal. This approach allows us to access the polarisation and the susceptibility of dielectrics. In a last step, we extend our approach to the 2D case, where new

characteristics related to the topic of topological insulators appear.

The second topic tackles synchronization and spin-echo in cold atom gases. We study the competition between the spin-echo mechanism and the self-synchronization mechanism which emerges from the identical spin rotation effect (*ISRE*). The spin-echo technique was built to compensate for some of the dephasing that appears in trapped ultra-cold gases, leading to an increased coherence time for the ensemble. The *ISRE* appears in dense atomic clouds where collisions also lead to an increased coherence time. We show that these two mechanisms are not always compatible, in particular, their compatibility is based on the relation between the time scales associated to both phenomena.

