

Chapitre III

Interaction entre atomes de Rydberg sphériques et excitation de gaz dense

Les premières expériences que nous avons menées sur les interactions entre atomes de Rydberg ont eu lieu dans un nuage dense d'atomes froids au sein duquel sont excités de nombreux atomes vers l'état de Rydberg 60S. Cela permet de mettre en évidence deux aspects différents de l'interaction au sein d'un nuage de Rydberg froid : l'influence des interactions sur la dynamique d'excitation des atomes de Rydberg et le mouvement des atomes en interaction au sein du nuage.

Après un rappel de la forme de l'interaction dipolaire, nous en expliquerons les effets sur le mouvement des atomes de Rydberg dans le nuage et sur la dynamique d'excitation de ces mêmes atomes. Nous présenterons ensuite une expérience de spectroscopie optique mettant en évidence ces effets.

Le modèle numérique de simulation que nous avons développé nous permettra de confirmer notre compréhension de ces effets et leur importance. Enfin, nous présenterons une expérience de spectroscopie microonde permettant de sonder plus précisément les énergies d'interactions dans un nuage d'atomes de Rydberg, à différents moments de son expansion.

III.1 Les effets de l'interaction dipolaire en nuage dense

III.1.1 Rappels sur l'interaction dipolaire

L'interaction dipolaire entre deux atomes de Rydberg dans le même état $|a\rangle$ et séparés d'une distance r prend la forme suivante, établie en I.3.2 :

$$\hat{V}_{dd}(r) = \frac{hC_6}{r^6} \cdot |aa\rangle \langle aa|. \quad (\text{III.1})$$

Ce potentiel d'interaction agit donc comme un simple déplacement de l'énergie de la paire d'atomes par une quantité $E_{int}(r) = hC_6/r^6$. Nous travaillerons dans l'hypothèse que cette interaction de Van der Waals est additive pour un ensemble de N atomes. Ainsi, l'atome i subira la somme des interactions de paire avec les autres atomes j de

l'ensemble :

$$E_{int}(i) = \sum_{j \neq i} E_{int}(i, j) = \sum_{j \neq i} E_{int}(r_{ij}) = hC_6 \cdot \sum_{j \neq i} \frac{1}{r_{ij}^6}. \quad (\text{III.2})$$

Cette hypothèse d'additivité est valide dès lors que l'on se limite au second ordre du couplage dipôle-dipôle [29, 30]. La figure (III.1) représente un tel ensemble d'atomes en interaction.

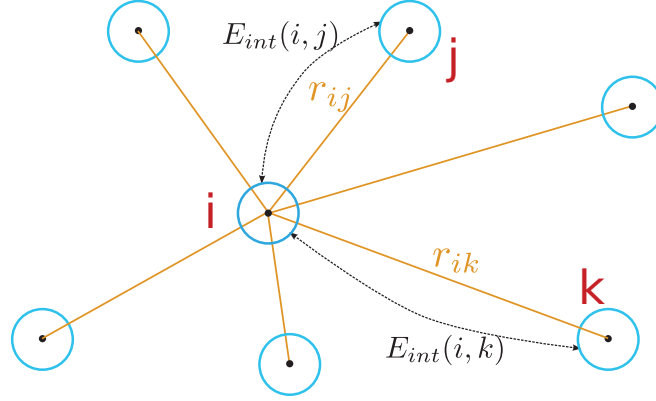


Figure III.1 Ensemble de N atomes de Rydberg en interaction Van der Waals. L'énergie d'interaction de chaque atome est la somme de ses énergies d'interaction de paire avec tous les autres.

III.1.2 Mouvement des atomes au sein d'un gaz dense de Rydberg

Le premier effet des interactions dipolaires au sein d'un nuage d'atomes de Rydberg est un effet mécanique. Comme nous l'avons vu en I.3, l'interaction est répulsive entre atomes de Rydberg dans le même niveau $|nS\rangle$. Ainsi, deux atomes de Rydberg en interaction dipolaire subiront chacun une force répulsive, directement dérivée de leur énergie d'interaction,

$$F = -\frac{dE_{int}}{dr} = +\frac{6hC_6}{r^7}. \quad (\text{III.3})$$

Cela équivaut à un traitement classique de l'effet mécanique de l'interaction dipolaire, bien que le calcul de cette même interaction ne le soit pas. Cela nous est permis par la forme simple de l'interaction dipolaire entre deux atomes dans le même état de Rydberg, donnée par l'équation (III.1), qui consiste en un simple déplacement d'énergie du niveau de paire $|aa\rangle$.

Prenons l'exemple de deux atomes dans le niveau $60S$, séparés d'une distance de $5\mu\text{m}$: leur énergie d'interaction vaut $hC_6/r^6 = h \cdot 137,6 \text{ GHz } \mu\text{m}^6 / (5\mu\text{m})^6 = 8,8 \text{ MHz}$. Ils se repoussent donc avec une force valant $6hC_6/r^7 = 6,97 \times 10^{-21} \text{ N}$. Étant donnée la masse du rubidium, cette force répulsive correspond à une accélération valant $F/m_{Rb87} = 4,83 \times 10^4 \text{ m s}^{-2}$, soit 5000 fois plus que l'accélération de la gravité. Une intégration numérique grossière permet d'extraire un ordre de grandeur du déplacement des atomes : en $20\mu\text{s}$, ils auront presque atteint leur vitesse relative maximale de

$0,284 \text{ ms}^{-1}$ et en $10 \mu\text{s}$ seulement la distance qui les sépare aura augmenté de $1,75 \mu\text{m}$. Leur énergie d'interaction aura par là chuté d'un facteur 5,77, ce qui constitue une modification considérable du système.

La généralisation à N atomes se fait en additionnant vectoriellement les forces répulsives dues à chaque interaction de paire :

$$\mathbf{F}(i) = \sum_{j \neq i} -\nabla E_{int}(i, j) = \sum_{j \neq i} \frac{6hC_6}{r_{ij}^7} \cdot \frac{-\mathbf{r}_{ij}}{r_{ij}} = -6hC_6 \cdot \sum_{j \neq i} \frac{\mathbf{r}_{ij}}{r_{ij}^8}. \quad (\text{III.4})$$

Cette force répulsive décroît très vite avec la distance. On s'attend ainsi à ce que deux atomes de Rydberg en interaction s'accélèrent mutuellement pendant un temps court, se propageant ensuite balistiquement dans des directions opposées. C'est ce que confirme l'exemple de la paire $|60S, 60S\rangle$ précédemment cité. Il est intéressant de noter qu'au sein d'un nuage d'atomes de Rydberg, les atomes du cœur sont repoussés par les interactions dipolaires de tous les côtés. Les atomes du bord du nuage seront alors expulsés en premier, puis petit à petit les atomes plus au centre pourront commencer à se déplacer. Le nuage subit ainsi une expansion hydrodynamique non triviale, que nous mesurerons expérimentalement et simulerons numériquement.

III.1.3 Deux régimes d'excitation en interaction dipolaire forte

Les interactions dipolaires ont également une influence importante sur l'excitation d'un ensemble dense d'atomes de Rydberg. En effet, la présence d'un atome de Rydberg conditionne l'excitation ultérieure d'autres atomes de Rydberg dans son voisinage. Lorsque l'excitation est faite à résonance, cet effet est connu sous le nom de « blocage dipolaire ».

Blocage dipolaire et super-atomes

Le mécanisme du blocage dipolaire est illustré en figure (III.2 a)). Considérons deux atomes dans l'état fondamental $|g\rangle$, séparés d'une distance r . L'état de la paire est alors $|g, g\rangle$. Un laser est accordé à résonance pour exciter l'un quelconque de ces deux atomes vers le niveau de Rydberg $|ry\rangle$. L'état de la paire devient ainsi $|g, ry\rangle$. Si l'on souhaite exciter le second atome vers le niveau $|ry\rangle$, alors il faut considérer l'énergie nécessaire à la transition $|g, ry\rangle \rightarrow |ry, ry\rangle$. Or ce dernier état de paire subit un déplacement d'énergie dû à l'interaction de Van der Waals

$$\Delta E_{|ry, ry\rangle}(r) = E_{|ry, ry\rangle}(r) - E_{|ry, ry\rangle}(\infty) = E_{int}(r). \quad (\text{III.5})$$

Le laser, qui était à résonance avec la transition $|g, g\rangle \rightarrow |g, ry\rangle$, n'est ainsi plus à résonance avec la transition $|g, ry\rangle \rightarrow |ry, ry\rangle$. L'excitation du second atome vers un niveau de Rydberg s'en trouve bloquée.

La transition n'est pas infiniment fine spectralement et l'effet de blocage dipolaire sera limité par sa largeur spectrale, dominée en pratique par la largeur du laser. On peut en effet considérer que le laser est résonant avec la transition dès lors que le désaccord entre eux est inférieur à la demi-largeur spectrale $\gamma/2$ de la raie d'excitation. Nous définirons ainsi le « rayon de blocage » r_b comme étant la distance en-deçà de laquelle

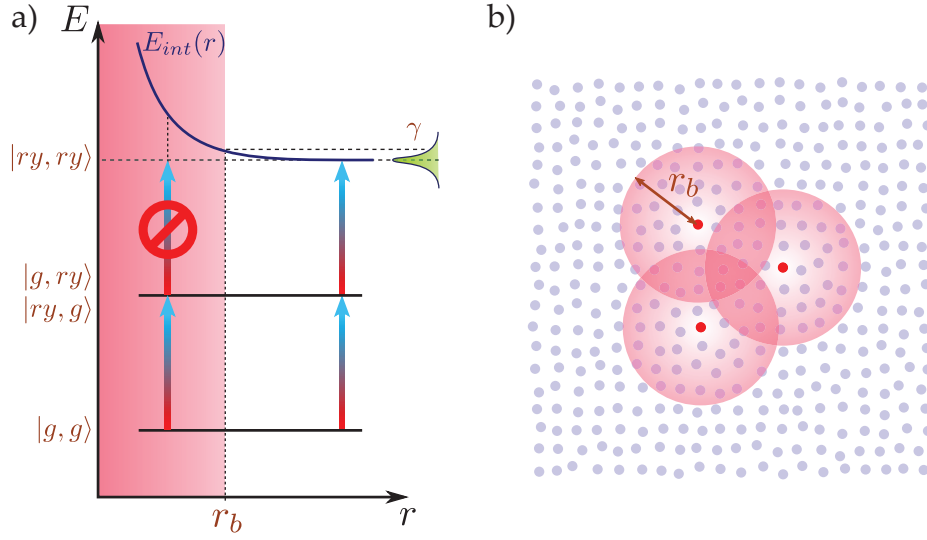


Figure III.2 Illustration du mécanisme de blocage dipolaire. **a)** Diagramme d'énergie des niveaux de paire à zéro, un ou deux atomes excités, en fonction de la distance interatomique r . $|g\rangle$ est le niveau fondamental et $|ry\rangle$ le niveau de Rydberg considéré. Aux courtes distances, l'interaction dipolaire déplace l'excitation du deuxième atome vers le niveau de Rydberg hors de résonance avec le laser ayant excité le premier atome. γ représente la largeur spectrale de la raie d'excitation à un atome, E_{int} l'énergie d'interaction entre deux atomes de Rydberg et r_b le « rayon de blocage ». **b)** Généralisation à un ensemble d'atomes. Les points bleus sont des atomes dans l'état fondamental et les points rouges sont des atomes de Rydberg. Le mécanisme de blocage empêche l'excitation de deux atomes de Rydberg dans un même sphère de rayon r_b , représentée par les disques rouges.

le désaccord est supérieur à la demi-largeur spectrale :

$$\Delta E_{int}(r_b) = \gamma/2 \quad (\text{III.6})$$

Dans le cas qui nous intéresse, l'interaction dipolaire a une forme de Van der Waals en $1/r^6$, permettant de réécrire l'équation (III.6) sous la forme

$$\frac{C_6}{r_b^6} = \gamma/2, \text{ soit } r_b = \sqrt[6]{\frac{C_6}{\gamma/2}} \quad (\text{III.7})$$

Le mécanisme de blocage est donc effectif à l'intérieur d'un « volume de blocage » autour de chaque atome de Rydberg déjà excité. Ce volume de blocage est une sphère de rayon r_b , représentée en figure (III.2 b)).

Revenons au cas de deux atomes : il existe deux états de paire à une excitation, qui sont $|g, ry\rangle$ et $|ry, g\rangle$. Ces deux états sont dégénérés et le laser couple le niveau fondamental $|g, g\rangle$ indifféremment à $|g, ry\rangle$ et à $|ry, g\rangle$, avec même une fréquence de Rabi Ω . La combinaison symétrique $|D\rangle = (|g, ry\rangle + |ry, g\rangle)/\sqrt{2}$, appelée état collectif de Dicke des deux atomes, est alors couplée à l'état fondamental avec une fréquence de Rabi augmentée $\Omega\sqrt{2}$. Ce facteur d'accroissement a été mis en évidence expérimentalement par le groupe de A. Browaeys et P. Grangier [31], en observant deux atomes piégés dans des pinces optiques.

L'idée se généralise au cas à N atomes en utilisant encore une fois le modèle de Dicke. Dans un rayon de blocage contenant N_b atomes, l'état du système oscille entre l'état fondamental et l'état de Dicke à une excitation, toute excitation supplémentaire étant interdite par blocage dipolaire. Cette oscillation se fait cette fois avec une fréquence de Rabi $\Omega\sqrt{N_b}$. Un modèle simple de ce phénomène consiste à voir l'ensemble de ces N_b atomes comme un unique « super-atome » ayant un moment de transition dipolaire $\sqrt{N_b}$ plus grand que celui d'un atome isolé. Ce modèle de super-atome a été exploité avec succès pour expliquer des observations expérimentales par les groupes d'I. Bloch [32] et de H. Ott [33].

Excitation facilitée et agrégats de Rydberg

Dans le régime de blocage dipolaire, l'interaction entre atomes de Rydberg désaccorde toute excitation supplémentaire au voisinage d'un premier atome de Rydberg. On peut alors imaginer décaler la fréquence du laser d'excitation de façon à compenser ce désaccord et ainsi retrouver une condition de résonance.

Reprenons le cas de deux atomes présenté ci-dessus en figure (III.2). Considérons cette fois un laser désaccordé de Δ par rapport à la transition $|g, g\rangle \rightarrow |g, ry\rangle$. Le premier atome pourra toujours être excité hors résonance par le laser désaccordé. Le second atome sera ensuite excité, à résonance, si la condition

$$\Delta = E_{int}(r)/h = \frac{C_6}{r^6} \quad (\text{III.8})$$

est satisfaite. À un désaccord laser Δ fixé correspond ainsi un « rayon de facilitation », défini par

$$r_f = \sqrt[6]{\frac{C_6}{\Delta}}. \quad (\text{III.9})$$

En raison de la largeur spectrale γ du laser, l'excitation du second atome de Rydberg est donc « facilitée » par la présence du premier, dès lors qu'ils sont séparés d'une distance $r_f \pm \delta r_f$, où $\delta r_f = \frac{1}{2} \left(\sqrt[6]{C_6/(\Delta - \gamma/2)} - \sqrt[6]{C_6/(\Delta + \gamma/2)} \right)$, soit $\delta r_f \simeq r_f \gamma / (3\Delta)$ au premier ordre en γ/Δ . La figure (III.3 a) représente ce mécanisme d'« excitation facilitée ».

Au sein d'un ensemble d'atomes, chacun a une probabilité égale d'être le premier atome excité, hors résonance, vers un niveau de Rydberg. Dès lors que ce premier atome de Rydberg est excité, l'excitation est facilitée pour les atomes qui sont à une distance r_f de celui-ci, vérifiant par-là la condition (III.9). L'excitation facilitée continue ainsi de proche en proche, tant qu'il existe un atome i satisfaisant

$$\Delta = \sum_{j \neq i} \frac{C_6}{r_{ij}^6}, \quad (\text{III.10})$$

où la somme est faite sur tous les atomes de Rydberg j déjà excités, situés chacun à distance r_{ij} de l'atome i .

Le phénomène de blocage dipolaire est remplacé ici par la formation rapide d'un « agrégat de Rydberg » fortement corrélé, autour du premier atome de Rydberg, la

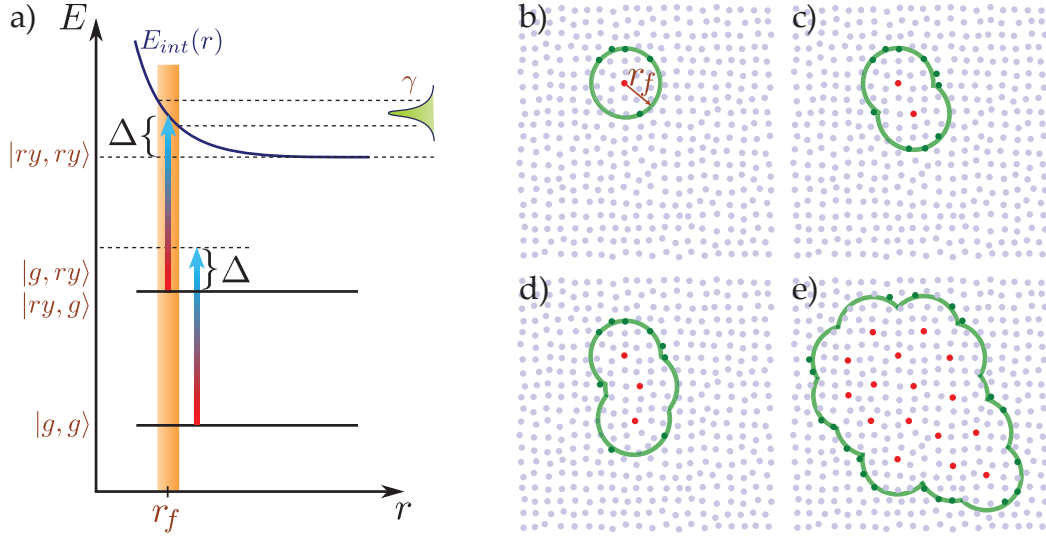


Figure III.3 Mécanisme de d'excitation facilitée. **a)** Diagramme d'énergie des niveaux de paire à zéro, une ou deux atomes excités, en fonction de la distance interatomique r . Le premier atome de Rydberg est excité hors résonance. Le désaccord Δ du laser permet de compenser l'interaction dipolaire à la distance r_f et d'exciter à résonance le second atome. **b) - e)** Évolution dans le temps d'un agrégat de Rydberg. Les points bleus représentent l'ensemble de départ d'atomes dans l'état fondamental et les points rouges représentent les atomes de Rydberg. Les bandes vertes représentent les régions « facilitées » définies par l'équation (III.10) où de nouveaux atomes de Rydberg peuvent être excités à résonance.

« graine » de cet agrégat. Les distances relatives entre atomes de Rydberg sont déterminées par l'équation (III.10) et donc contrôlées par le désaccord Δ du laser d'excitation. La figure (III.3 b-e)) représente cette excitation séquentielle facilitée d'un agrégat de Rydberg.

III.2 Observation expérimentale des interactions

Afin de mettre en évidence les effets des interactions dipolaires, nous avons mené deux expériences complémentaires. En premier lieu, la spectroscopie optique du nuage permet de s'intéresser à l'excitation sous blocage dipolaire fort et à l'excitation facilitée à désaccord positif. Ensuite, la spectroscopie microonde du nuage, à différents délais après l'excitation laser, permet de sonder la distribution des énergies d'interaction au sein du nuage au cours de son expansion. Ces expériences sont discutées en détail dans la thèse de Raul Celistrino Teixeira [21].

III.2.1 Spectroscopie optique du nuage : différents régimes d'excitation

Conditions de l'expérience

L'expérience de spectroscopie optique vise à observer l'excitation des atomes de Rydberg sous l'influence des interactions dipolaires, dans les régimes de blocage et d'excitation facilitée. Cela nécessite, entre autres, un nuage d'atomes dans l'état fondamental

suffisamment dense afin que la condition de facilitation (III.10) puisse être satisfaite. Cependant, une forte densité d'atomes dans l'état fondamental risque d'interférer avec l'excitation de Rydberg, indépendamment des interactions dipolaires. En effet, l'électron de Rydberg, qui est presque libre, est sensible à cette densité atomique. En première approximation, l'interaction entre l'électron de Rydberg et les atomes dans l'état fondamental prend la forme d'un déplacement d'énergie V_e proportionnel à la densité atomique moyenne $\bar{\rho}$ [34] :

$$V_e = \frac{2\pi\hbar^2 a_s}{m_e} \bar{\rho}, \quad (\text{III.11})$$

où a_s est la longueur de diffusion caractérisant la force de l'interaction. Le groupe de T. Pfau a mis en évidence cette interaction et obtenu une longueur de diffusion pour le ^{87}Rb valant $a_s = -16,1 a_0$, indépendante du nombre quantique principal n [34]. Dans un condensat de Bose-Einstein avec une densité atomique typique de 10^{13} cm^{-3} , l'énergie d'interaction est de l'ordre de $V_e/h = -1 \text{ MHz}$. Dans ce cas, nous serions en présence de deux interactions antagonistes de même ordre de grandeur : l'interaction dipôle-dipôle répulsive, qui augmente l'énergie des niveaux de Rydberg et l'interaction de l'électron de Rydberg avec les atomes dans l'état fondamental, qui abaisse l'énergie des niveaux de Rydberg. Cela aurait pour effet de réduire le rayon de blocage, qui dépend directement de la largeur spectrale de l'excitation sans interaction dipolaire.

Il nous a fallu trouver une densité atomique permettant l'observation de l'excitation facilitée et du blocage dipolaire, tout en limitant l'effet d'interaction de l'électron de Rydberg avec les atomes dans l'état fondamental. La spectroscopie optique de l'excitation de Rydberg a été faite dans un nuage thermique froid et non dans un condensat de Bose Einstein. Ce nuage comporte $12\,000 \pm 1000$ atomes, piégés magnétiquement à environ $210 \mu\text{m}$ de la puce atomique. Le piège prend une forme très allongée dans la direction x , et les atomes sont refroidis à une température de $500 \pm 150 \text{ nK}$. Le profil de densité atomique est alors gaussien dans les trois directions, avec des rayons à $e^{-1/2}$ valant respectivement $(\sigma_x; \sigma_y; \sigma_z) = (23, 2; 4, 5; 4, 2) \mu\text{m}$. La densité au centre vaut ici $n_0 = 1,7 \pm 0,15 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$. Cela limite l'interaction de l'électron de Rydberg avec les atomes dans l'état fondamental à une énergie $V_e = -168 \text{ kHz}$, très inférieure à la largeur spectrale d'excitation à un atome, estimée* à $2\gamma = 626 \text{ kHz}$. La contribution de cette interaction pourra ainsi être négligée dans la suite de notre discussion.

Résultats expérimentaux

Les spectres d'excitation du niveau de Rydberg 60S depuis le niveau fondamental 5S, obtenus pour différentes durées d'impulsion laser, sont représentés en figure (III.4). Le graphe représente aussi un spectre d'excitation dans un nuage dilué et à faible taux d'excitation, servant de spectre de référence sans interactions. Un élargissement vers les hautes fréquences apparaît très clairement dès les faibles temps d'excitation. Cet élargissement est caractéristique de l'excitation facilitée par interactions : une fois le premier atome de Rydberg excité, un agrégat se forme rapidement autour et permet

*. Cette valeur est extraite de l'ajustement gaussien d'un spectre d'excitation optique dans un piège dilué et à faible excitation, donc sans interactions dipolaires. Ce spectre est présenté comme référence en figure (III.4).

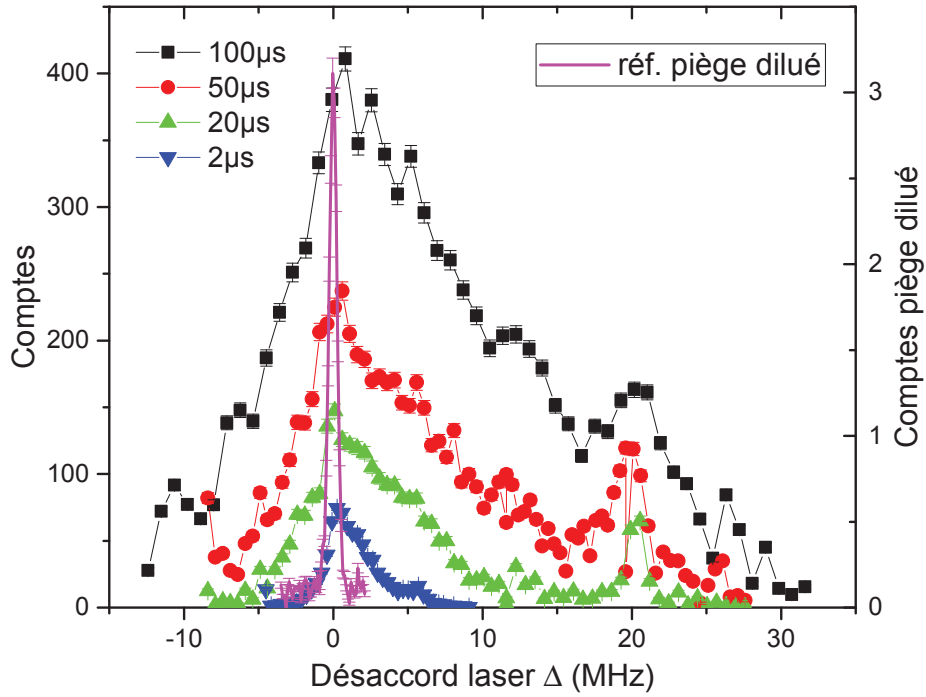


Figure III.4 Spectres optiques d'excitation en régime d'interaction dipolaire forte. L'excitation est réalisée à différentes durées d'impulsion laser : 2, 20, 50 et 100 μs . La courbe magenta est un spectre de référence sans interaction, représenté avec une échelle différente (échelle de droite). Les pics d'excitation autour de $\Delta = 20$ MHz sont dus à la modulation en fréquence du laser, nécessaire à sa stabilisation par un dispositif Pound-Drever-Hall.

d'amplifier largement l'excitation à désaccord positif. Plus le désaccord est élevé cependant, plus longtemps se fera attendre cette première excitation, ce qui explique l'élargissement de plus en plus prononcé aux temps d'impulsion longs.

Cela se voit très bien sur les graphes de la figure (III.5), qui représente l'évolution du nombre d'atomes de Rydberg excité en fonction de la durée d'impulsion laser, pour différents désaccords. On y remarque effectivement qu'à grand désaccord, le nombre d'atome de Rydberg présente un effet de seuil correspondant à l'excitation non résonnante de la « graine ».

Le comportement à résonance montre une croissance rapide du nombre d'atomes excités dans les premiers instants, puis une augmentation plus lente. En effet, le centre nuage est saturé de super-atomes en régime de blocage fort dès les premières microsecondes. Ensuite, de nouveaux atomes de Rydberg sont excités dans les ailes peu denses du nuage. Celles-ci contiennent beaucoup moins d'atomes dans l'état fondamental d'une part, et le laser bleu y est moins intense d'autre part. Ces deux facteurs contribuent à ralentir fortement la dynamique d'excitation dans ces régions-là. Enfin, le mouvement d'expansion du nuage de Rydberg dû aux interactions éloigne les super-atomes les uns des autres au centre du nuage, où de nouvelles excitations deviennent possibles après quelques dizaines de microsecondes. Cela explique pourquoi le nombre d'atomes de Rydberg continue d'augmenter, contrairement aux prédictions de l'approximation du « gaz gelé ».

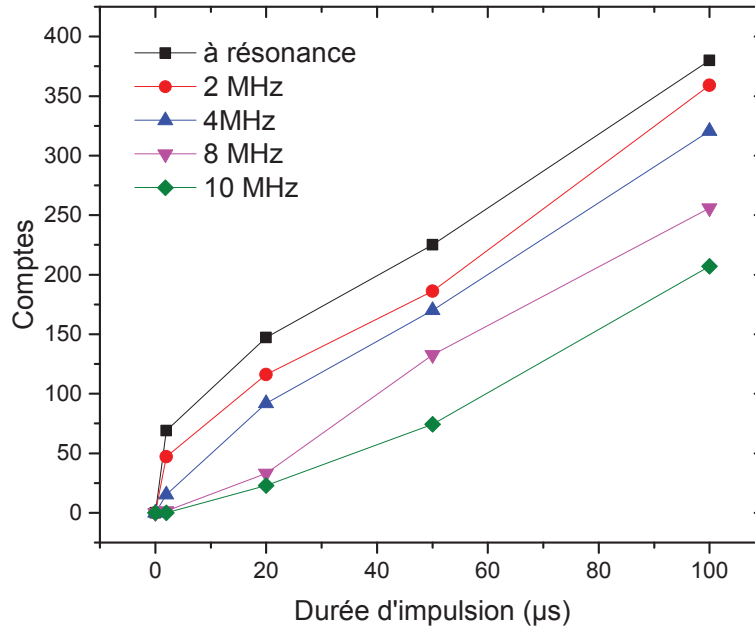


Figure III.5 Saturation de l'excitation optique en régime d'interaction dipolaire forte. Évolution du nombre d'atomes de Rydberg en fonction de la durée d'impulsion laser, pour différents désaccords : 0, 2, 4, 8 et 10 MHz. Les données sont extraites des spectres de la figure (III.4).

III.2.2 Spectroscopie microonde : une sonde pour l'énergie d'interaction

Afin de mieux comprendre le mouvement au sein du nuage de Rydberg, nous avons réalisé la spectroscopie de la transition $60S \rightarrow 57S$ dans différentes conditions. Nous présentons ici le principe de cet outil de spectroscopie microonde comme sonde des énergies d'interaction dans le nuage, et les expériences que nous avons menées.

Principe de la spectroscopie microonde et choix de la transition

Comme nous l'avons vu au chapitre I, les différents niveaux de Rydberg sont affectés différemment par les interactions dipolaires. En particulier, dans le régime de Van der Waals, cela se traduit par des coefficients de Van der Waals C_6 différents. Ainsi, le niveau nS et le niveau $n'S$ verront leur énergie déplacée de quantités différentes pour une même distance inter-atomique. En conséquences, les fréquences de transition entre niveaux de Rydberg seront décalées. Sonder ces décalages de fréquence, c'est-à-dire faire la spectroscopie de telles transitions, nous renseignera sur la distribution des énergies d'interaction au sein du nuage. Idéalement, un seul atome du nuage sera transféré vers un autre niveau de Rydberg, et la fréquence de cette transition nous renseignera sur l'énergie d'interaction de cet atome avec tous ses voisins.

Cela requiert cependant un choix attentif du niveau vers lequel seront transférés les atomes de Rydberg. En premier lieu, les niveaux P sont à éviter. La branche attractive de l'interaction $nS - n'P$ mène à une ionisation de Penning des atomes de Rydberg : l'atome dans le niveau nS et l'atome dans le niveau $n'P$ s'attirent l'un l'autre, et s'ionisent mutuellement lorsqu'ils sont trop proches. Nous restreindrons donc notre

choix aux niveaux $n'S$ voisins du 60S, accessibles par des transitions à deux photons.

Pour une paire d'atomes séparés de r , l'interaction 60S – $n'S$ prend la forme de l'équation (I.33) :

$$V_{eff}/h = \begin{pmatrix} |60S - n'S\rangle & |n'S - 60S\rangle \\ \langle 60S - n'S| & \langle n'S - 60S| \end{pmatrix} \begin{pmatrix} C_{6,60S-n'S} & A_{6,60S-n'S} \\ A_{6,60S-n'S} & C_{6,60S-n'S} \end{pmatrix} \cdot \frac{1}{r^6}, \quad (\text{III.12})$$

où C_6 et A_6 sont les coefficients de Van der Waals pour l'interaction directe et pour l'interaction d'échange respectivement. Les états $|60S - n'S\rangle$ et $|n'S - 60S\rangle$ sont dégénérés et séparés en leurs combinaisons symétrique et antisymétrique, $(|60S - n'S\rangle \pm |n'S - 60S\rangle)/\sqrt{2}$. Ces deux états propres sont déplacés d'une énergie $h \cdot (C_{6,60S-n'S} \pm A_{6,60S-n'S})/r^6$. Cette structure de niveaux est représentée en figure (III.6 a)). La levée

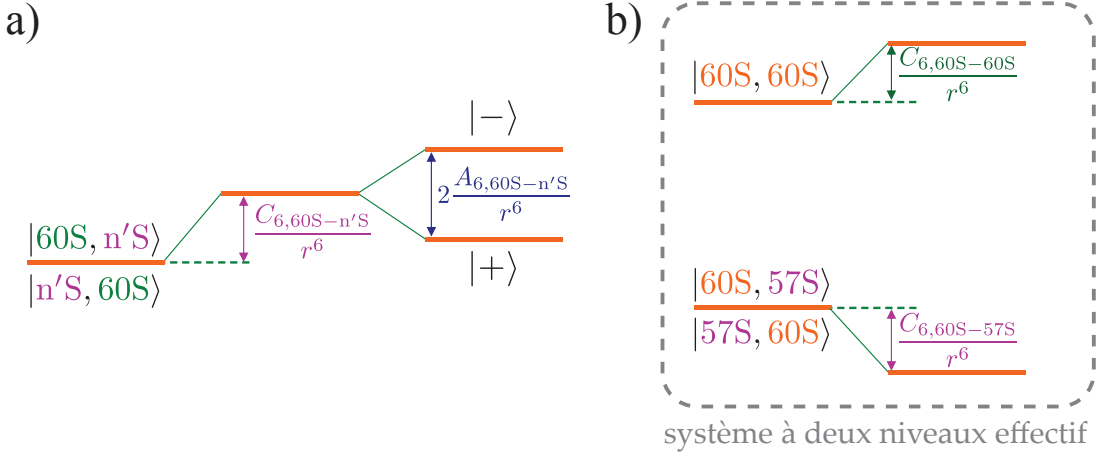


Figure III.6 Structure de niveau 60S-nS sous interaction dipolaire **a)** La paire 60S – nS est déplacée en énergie par le terme d'interaction directe $C_{6,60SnS}/r^6$ et ses deux états dégénérés sont séparés par l'interaction d'échange, avec un écart d'énergie de $2A_{6,60SnS}/r^6$. **b)** Diagramme d'énergie d'une paire dans les niveaux 60S – 60S et 60S – 57S. Le terme d'échange $A_{6,60S-57S}$ étant quasi-nul, la dégénérescence des niveaux de paire $|60S, 57S\rangle$ et $|57S, 60S\rangle$ n'est pas levée et la paire se comporte comme un système à deux niveaux. La transition entre ces deux niveaux est déplacée par les interactions dipolaires.

de dégénérescence des niveaux de paire engendre des spectres à deux raies de transition, séparées en fréquence de $2A_{6,60S-nS}/r^6$. Si l'on y ajoute un troisième atome de Rydberg, il y a alors trois paires en interaction, ce qui complexifie d'autant plus la structure de niveaux et le spectre de la transition. En fin de compte, au sein d'un ensemble de N atomes de Rydberg dans le niveau 60S, une excitation du niveau $n'S$ sera délocalisée sur des états propres à N atomes. Ces états propres sont des combinaisons linéaires de la base séparable $\{|i\rangle = |60S\rangle_1 \otimes \dots \otimes |n'S\rangle_i \otimes \dots \otimes |60S\rangle_N$, très dépendantes de la configuration du nuage. Plus la base des états propres à une excitation est différente de la base des $|i\rangle$, plus le spectre d'excitation devient difficile à relier aux énergies d'interaction.

Le niveau $n'S$ idéal serait donc celui pour lequel les états propres à une excitation sont ceux où l'excitation est localisée sur un atome. Pour cela, le terme d'échange A_6 , responsable de la délocalisation de l'excitation, doit être le plus petit possible,

c'est-à-dire très petit devant C_6 . La table (III.1) répertorie les coefficients de Van der Waals $C_{6,60S-n'S}$ et $A_{6,60S-n'S}$ pour les niveaux $n'S$ proches du 60S. On y trouve les

Table III.1 Coefficients de Van der Waals pour différents niveaux 60S – $n'S$

	$C_{6,60S-n'S}$ (GHz μm^6)	$A_{6,60S-n'S}$ (GHz μm^6)
60S-63S	–89,26	0,61
60S-62S	–411,36	14,96
60S-61S	292,25	248,60
60S-60S	137,62	
60S-59S	245,13	209,55
60S-58S	–209,26	7,77
60S-57S	–43,67	0,30

niveaux 63S et 57S, qui présentent des termes d'échanges avec le 60S petits devant les termes d'interaction directe ($C_6/A_6 \sim 150$). Étant donné le caractère attractif de l'interaction directe pour les paires 60S – 57S et 60S – 63S, il est préférable de choisir la plus petite de ces interactions afin de limiter le processus d'ionisation de Penning que nous décrivions pour les paires $nS - n'P$.

Nous choisirons donc, pour faire la spectroscopie microonde du nuage de Rydberg, la transition 60S – 57. Nous disposerons ainsi d'un diagramme de niveaux simple, représenté pour deux atomes en figure (III.6 b)), fournissant un système effectif à deux niveaux. Lorsque les deux atomes n'interagissent pas, la transition à deux photons du niveau de paire $|60S, 60S\rangle$ vers les niveaux de paire dégénérés $|57S, 60S\rangle$ et $|60S, 57S\rangle$ se fait à une fréquence $\nu_0 = 2 \times 58,229$ GHz. En présence d'interactions, la transition est déplacée d'une quantité

$$\Delta\nu(r) = \frac{C_{6,60S60S} - C_{6,60S-57S}}{r^6} = \eta \frac{C_{6,60S60S}}{r^6}, \quad (\text{III.13})$$

avec $\eta = 1,317$.

La généralisation à un ensemble de N atomes de Rydberg se fait dans l'hypothèse d'additivité des interactions de Van der Waals. Ils sont initialement tous dans l'état 60S, et l'on suppose que l'impulsion microonde de spectroscopie ne crée qu'une seule excitation 57S. Grâce à la faiblesse du terme d'échange $A_{6,60S57S}$, nous pouvons supposer que cette excitation sera localisée sur un atome de l'ensemble, l'atome i , cependant que tous les autres resteront dans l'état 60S. L'énergie d'interaction de l'atome i avant excitation est, comme à l'équation (III.2), de

$$E_{int}(i, 60S) = hC_{6,60S60S} \sum_{j \neq i} \frac{1}{r_{ij}^6}. \quad (\text{III.14})$$

Lorsque l'atome i est transféré dans l'état 57S, son énergie d'interaction devient

$$E_{int}(i, 57S) = hC_{6,60S57S} \sum_{j \neq i} \frac{1}{r_{ij}^6}. \quad (\text{III.15})$$

Le déplacement en fréquence de la transition 60S – 57S de l'atome i , dû aux interactions dipolaires, vaut donc

$$\Delta\nu(i) = \frac{1}{h}(E_{int}(i, 60S) - E_{int}(i, 57S)) = \eta \frac{E_{int}(i, 60S)}{h}. \quad (\text{III.16})$$

Ce système à N atomes est représenté en figure (III.7). On peut ainsi sonder la distri-

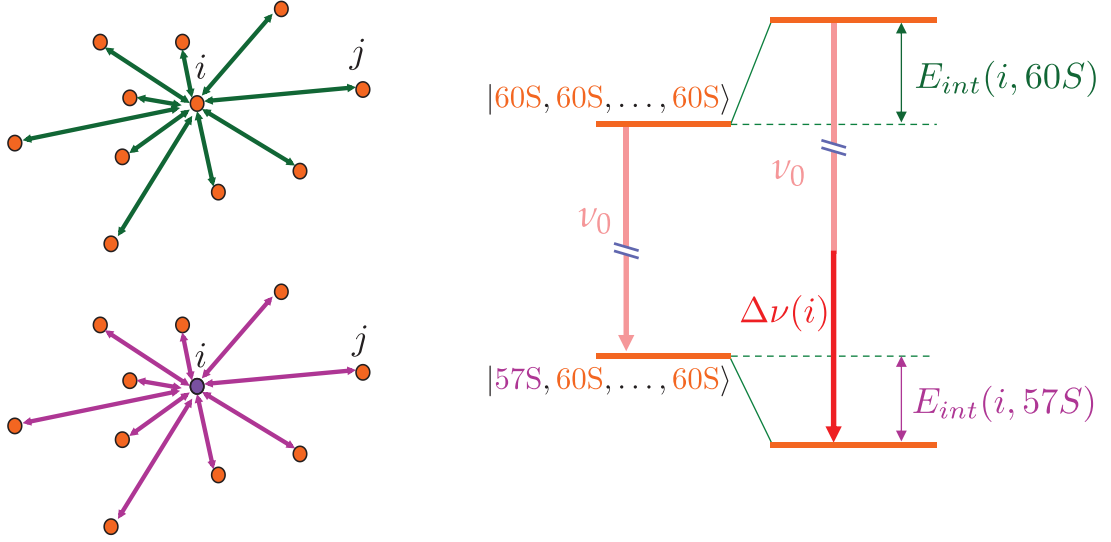


Figure III.7 Structure de niveaux d'un nuage de 60S contenant une excitation 57S. La faiblesse du terme d'échange dans l'interaction 60S – 57S permet que cette excitation soit localisée sur un atome i . La transition microonde permettant de transférer l'atome i est décalée en fréquence d'une quantité $\Delta\nu(i)$ par les interactions dipolaires.

bution des énergies d'interaction au sein du nuage. En effet, la probabilité qu'un atome i voie sa fréquence de transition déplacée de $\Delta\nu(i) = \Delta\nu$ est égale à la probabilité que son énergie d'interaction ait été de $E_{int}(i, 60S) = h\Delta\nu/\eta$:

$$P(\Delta\nu(i) = \Delta\nu) = P\left(\eta \frac{E_{int}(i, 60S)}{h} = \Delta\nu\right) = P\left(E_{int}(i, 60S) = \frac{h\Delta\nu}{\eta} = E_{int}\right). \quad (\text{III.17})$$

Du spectre microonde de la transition, qui représente la distribution $P(\Delta\nu)$, on déduit directement la distribution $P(E_{int})$ des énergies d'interaction dans le nuage par la transformation $\Delta\nu = \eta E_{int}/h$.

Spectres des énergies d'interaction

Cet outil de spectroscopie microonde nous a servi à sonder les énergies d'interaction au sein de différents nuages de Rydberg. À partir d'une excitation laser d'une durée de 2 μ s, telle que décrite en III.2.1, nous sélectionnons différents désaccords. Nous sonde-rons ainsi un nuage excité à résonance, un nuage excité avec un désaccord $\Delta = 1$ MHz et un nuage excité avec un désaccord $\Delta = 2$ MHz. Une impulsion microonde π sur la transition 57S – 60S est envoyée immédiatement après l'impulsion laser d'excita-

tion. La fréquence de cette impulsion est balayée de façon à obtenir la distribution $P(h\Delta\nu/\eta)$ des énergies d'interaction. Nous en obtiendrons la distribution des énergies d'interaction dans trois cas : sous blocage dipolaire fort ($\Delta = 0$), sous excitation facilitée ($\Delta = 2$ MHz), et dans un régime intermédiaire ($\Delta = 1$ MHz). La séquence expérimentale et les spectres obtenus sont représentés en figure (III.8). La fraction

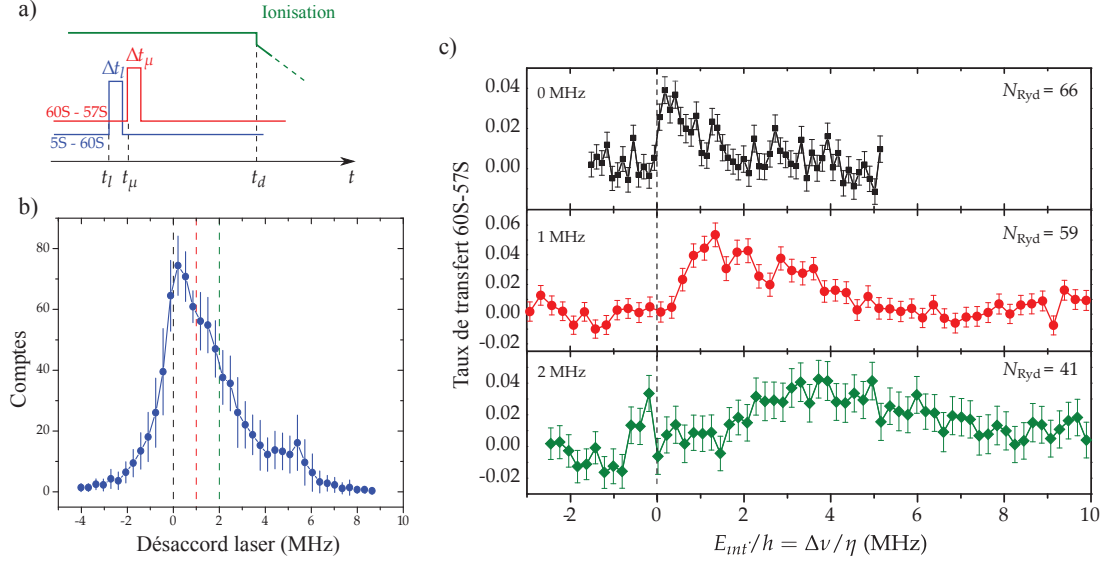


Figure III.8 Spectroscopie microonde du nuage avant expansion. **a)** Séquence expérimentale de la spectroscopie : une impulsion laser envoyée à l’instant t_l et d’une durée de Δt_l est suivie d’une impulsion microonde, envoyée à l’instant t_μ et durant Δt_μ . La détection est effectuée par une rampe d’ionisation déclenchée à l’instant t_d . **b)** Spectre laser de la transition 5S – 60S. Les lignes pointillées marquent les désaccords choisis de 0, 1 et 2 MHz. **c)** Spectres microonde de la transition 60S – 57S pour différents désaccords laser $\Delta = 0, 1, 2$ MHz.

atomique transférée vers le niveau 57S est tracée comme fonction de l’énergie d’interaction, c’est-à-dire du déplacement en fréquence de la transition renormalisé $\Delta\nu/\eta$. Le faible nombre d’excitations vers le 57S (toujours < 3) permet de confirmer l’hypothèse d’atome unique qui justifie la méthode de spectroscopie par l’équation (III.16). On peut redouter une ionisation de Penning entre les atomes dans le niveau 57S et les atomes dans le niveau 60S en raison de l’attractivité de leur interaction. Cependant, cette interaction est suffisamment faible pour estimer que les atomes sont détectés avant que cela ne se produise[†].

En figure (III.8 c)), l’axe des abscisses donne directement l’énergie d’interaction E_{int} des atomes. Or, d’après l’équation (III.14), le plus proche voisin d’un atome ayant une énergie d’interaction E_{int} ne peut être à une distance de celui-ci inférieure à $r_E(E_{int}) = (hC_{6,60S-60S}/E_{int})^{1/6}$. À désaccord laser nul $\Delta = 0$, le spectre microonde est déplacé d’environ la largeur laser $\gamma/2$, ce qui tend à confirmer le fait que le nuage est saturé de super-atomes. En effet dans ce cas, chaque atome de Rydberg a au moins un voisin à une distance d’un rayon de blocage r_b et donc avec une interaction d’énergie $E_{int}(r_b) = \gamma/2$. Chaque voisin supplémentaire augmente l’énergie d’interaction d’au maximum $\gamma/2$,

[†]. Nous pouvons confirmer cela à l’étude des signaux d’ionisation, qui montrent l’absence d’ions préexistants à la rampe de détection.

expliquant la queue du spectre jusqu'à 2 MHz pour les atomes ayant le plus de voisins. Enfin, l'absence de signal au-delà de $E_{int} = 2$ MHz indique l'absence de paires atomique séparées de moins de $r_E(2 \text{ MHz}) = 6,4 \mu\text{m}$, en raison du blocage dipolaire.

Aux désaccords laser positifs $\Delta > 0$, le mécanisme de facilitation excite le nuage de Rydberg avec, pour chaque nouvel atome, une énergie d'interaction égale à Δ . Cela décale le spectre vers les hautes énergies, en excitant des atomes de Rydberg de plus en plus proches les uns des autres à mesure qu'augmente le désaccord Δ . Le désaccord positif du laser produit ainsi un agrégat de Rydberg. Au cœur de cet agrégat, chaque atome de Rydberg a plusieurs voisins, qui contribuent tous à augmenter son énergie d'interaction. De même que dans le cas $\Delta = 0$ du blocage dipolaire fort, les queues à haute fréquence des spectres sont attribuées à ces atomes du centre du nuage. La figure (III.9) représente la formation d'un tel agrégat de Rydberg et l'accumulation de l'énergie d'interaction qui s'en suit.

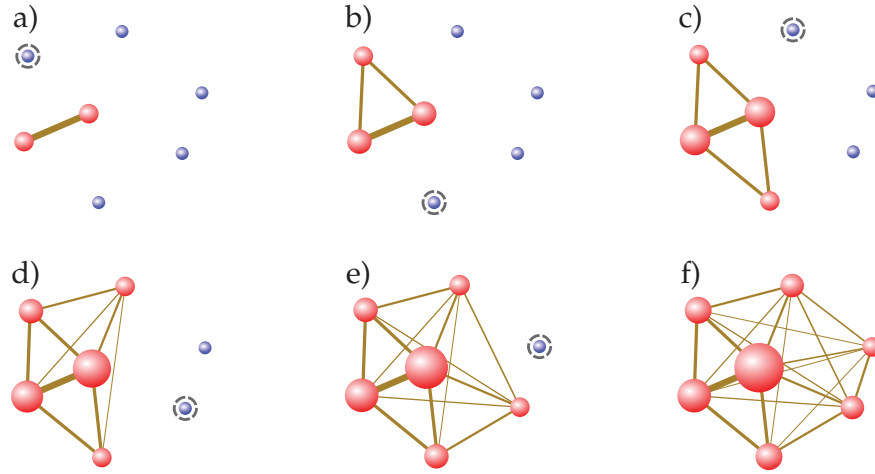


Figure III.9 Formation d'un agrégat de Rydberg et accumulation de l'énergie d'interaction, de a) à e). Les sphères bleues représentent des atomes dans l'état fondamental et les sphères rouges des atomes de Rydberg. Les cercles pointillés autour des sphères bleues signalent quel atome sera excité à l'étape suivante. L'épaisseur de la ligne joignant deux atomes de Rydberg représente la force de l'interaction entre ces deux atomes. La taille de chaque sphère rouge représente l'énergie d'interaction totale de l'atome de Rydberg correspondant.

Évolution au cours du temps : explosion du nuage

Après excitation, le nuage de Rydberg explose sous l'effet des interactions dipolaires répulsives entre atomes de Rydberg dans le niveau 60S. La spectroscopie microonde nous permet, de la même façon que précédemment, de mesurer les énergies d'interaction dans le nuage au cours de cette explosion. Il suffit pour cela d'introduire un délai variable Δt entre l'excitation laser et l'impulsion microonde de sonde.

Les spectres ainsi obtenus sont représentés en figure III.10, pour des désaccords laser de $\Delta = 0, 1$ et 2 MHz. À mesure que le temps avance, les distributions d'énergie d'interaction s'affinent et tendent vers celle d'un nuage dilué sans interaction. Cette énergie d'interaction est convertie en énergie cinétique au cours de l'explosion du nuage de Rydberg. La figure (III.11) représente l'énergie moyenne d'un nuage au cours du

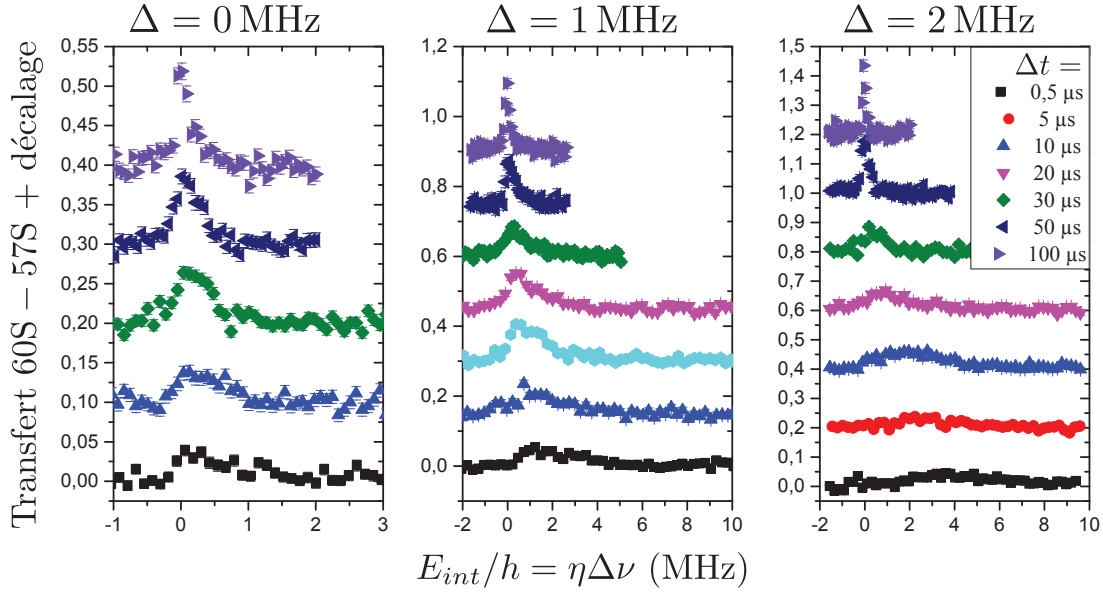


Figure III.10 Spectres microonde de la transition 60S – 57S au cours de l’évolution d’un nuage de Rydberg excité par un laser désaccordé à $\Delta = 0$ (gauche), 1 (centre) et 2 MHz (droite). L’origine des axes verticaux de chacun des spectres est décalée et l’échelle des abscisses et des ordonnées de chacun des graphes est différente, par souci de visibilité.

temps, pour les trois mêmes désaccords laser. L’énergie moyenne initiale est de l’ordre de 1 MHz à 10 MHz dans les trois cas. En comparaison, l’énergie cinétique des atomes dans le niveau fondamental, refroidis à 500 nK est de l’ordre de 10 kHz, donc négligeable. L’évolution des spectres microonde peut être entièrement attribuée à l’explosion du nuage de Rydberg en interaction.

Le mouvement des atomes de Rydberg devient important dès lors qu’il modifie sensiblement la distribution des énergies d’interaction, donc les spectres microonde mesurés. Ainsi nous pouvons affirmer qu’après un délai aussi court que $\Delta t \sim 5$ à $10 \mu\text{s}$, le mouvement a modifié la configuration énergétique du nuage, y compris lorsque celui-ci a été excité à résonance. L’approximation du « gaz gelé » ne peut donc être considérée comme valide au delà de quelques microsecondes dans un nuage dense d’atomes de Rydberg.

III.3 Premier modèle numérique et accord qualitatif

Afin d’affiner notre compréhension de ces phénomènes dûs aux interactions, nous avons développé un modèle numérique de nos expériences. L’intégration numérique de l’équation de Schrödinger dépendante du temps pour un nuage de 12 000 atomes corrélés étant irréaliste, nous avons établi un modèle Monte Carlo.

Le calcul numérique est effectué en deux phases distinctes : la première simule la dynamique d’excitation du nuage de Rydberg à partir des atomes dans l’état fondamental. Une fois l’excitation terminée, l’explosion du nuage de Rydberg est calculée comme un problème classique à N corps, par une routine d’intégration de Runge-Kutta d’ordre 4.

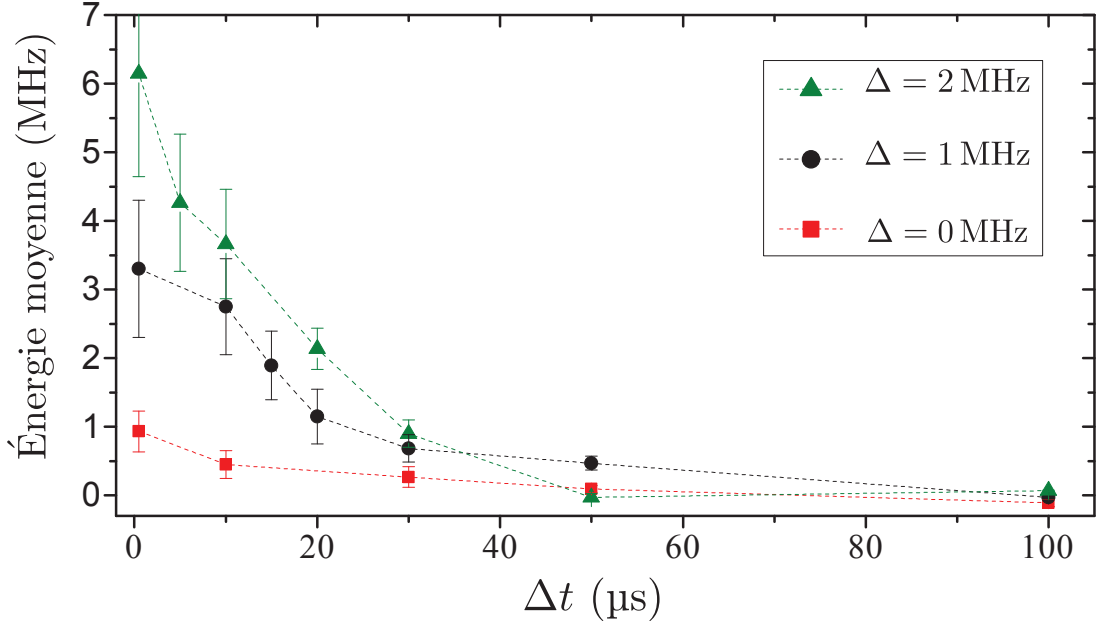


Figure III.11 Énergie moyenne d'interaction (énergie totale rapportée au nombre d'atomes) de nuages de Rydberg excités à différents désaccords laser, en fonction du temps après excitation Δt . Les données sont calculées à partir des spectres de la figure (III.10).

Nous en donnons ici une description fonctionnelle de l'algorithme et comparons ses résultats aux résultats expérimentaux.

III.3.1 Au cœur du modèle numérique

Le modèle initial de l'excitation que nous avons mis en œuvre fonctionne de la manière suivante :

- i. Un nuage de N atomes dans l'état fondamental est tirée au sort selon une distribution gaussienne, dont les paramètres sont l'extension spatiale du piège selon chaque direction, $\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z$.
- ii. Le profil gaussien de l'intensité laser est spécifié, paramétrés par les cols des faisceaux bleus et rouges.
- iii. Le profil de la raie d'excitation à un atome est donné, correspondant au spectre « référence piège dilué » de la figure (III.4).
- iv. À chaque itération, un atome i de l'état fondamental est tiré au sort. Son énergie d'interaction totale $E_{int}(i)$ avec les atomes de Rydberg déjà présents est calculée comme s'il était excité. La probabilité d'excitation $p(i)$ de l'atome est calculée d'après le profil de raie laser, en fonction de l'intensité et du désaccord Δ du laser et de l'énergie d'interaction $E_{int}(i)$.
- v. La probabilité $p(i)$ est comparée à un nombre aléatoire t entre 0 et 1. Si $p(i) > t$, la simulation passe à l'itération suivante. Si $p(i) \leq t$, alors l'atome i est excité au niveau de Rydberg et ajouté à la liste de ceux-ci.

Dans ce modèle, l'excitation d'un atome se fait sous la forme d'un « saut » de l'état fondamental à l'état de Rydberg. Cela exclut de fait tout processus cohérent au cours

duquel une superposition d'état aurait lieu. L'algorithme ici présenté ne peut d'ailleurs rendre compte que d'une excitation séquentielle des atomes de Rydberg les uns après les autres. De plus, le nuage d'atomes de Rydberg est considéré comme gelé lors de l'excitation. Bien que cette hypothèse puisse être raisonnable pour une durée d'impulsion laser de $2\text{ }\mu\text{s}$, les résultats expérimentaux nous apprennent qu'elle ne le sera plus pour des durées d'excitation supérieures à $10\text{ }\mu\text{s}$.

Enfin, notons que ce modèle ne comporte aucune échelle de temps durant l'excitation. Un critère sera donc nécessaire pour déterminer la fin du calcul. Pour simuler les spectres d'énergie d'interaction et leur évolution dans le temps, le désaccord laser Δ et la durée d'impulsion sont fixés. Les spectres laser expérimentaux nous renseignent alors sur le nombre N_{Ryd} d'atomes de Rydberg que contient le nuage au terme de l'excitation. C'est ce nombre N_{Ryd} qui sert de critère à l'arrêt du calcul : une fois celui-ci atteint, l'excitation est terminée et le calcul de l'explosion du nuage commence.

Le calcul de l'expansion du nuage se déroule de la manière suivante :

- i. Les données de départ sont les positions et quantités de mouvement des atomes de Rydberg excités à l'étape précédente de la simulations. À partir de ces positions, les énergies d'interaction sont calculées pour chaque paire d'atomes de Rydberg.
- ii. Ces énergies d'interaction sont dérivées d'après l'équation (III.3), puis sommées pour chaque atome d'après l'équation (III.4). La force mécanique appliquée à chaque atome de Rydberg par le reste du nuage est ainsi obtenue.
- iii. Un routine Runge-Kutta d'ordre 4 permet de calculer les positions et quantités de mouvement des atomes de Rydberg après un pas de temps dt .
- iv. l'algorithme retourne à l'étape i et réitère le calcul avec les positions et quantités de mouvement actualisées.

Lorsque le temps total d'évolution est atteint, les énergies d'interaction totales de chaque atomes sont calculées et compilées sous forme d'un spectre que l'on pourra comparer aux spectres microonde de la figure (III.10). Le temps de vie des atomes de Rydberg est pris en compte au cours de ce calcul, en permettant la désexcitation de chaque atome avec un taux de probabilité $e^{-t/\tau}$, ou t est le temps écoulé depuis l'excitation, et $\tau = 210\text{ }\mu\text{s}$ le temps de vie du niveau $60S$ mesuré expérimentalement (cf II.2.6). Enfin, les spectres expérimentaux sont limités par transformée de Fourier en raison de la durée finie de l'impulsion microonde de sonde. Les spectres simulés seront donc convolués avec la transformée de Fourier de l'impulsion microonde, et pourront être confrontés aux spectres expérimentaux.

III.3.2 Comparaison aux spectres microonde expérimentaux

Étant donnée que le modèle présenté ci-dessus ne tient pas compte du mouvement des atomes de Rydberg durant l'excitation, sa validité est *a priori* restreinte aux durées d'impulsion laser courtes. De même, choisir comme critère d'arrêt le nombre d'atomes de Rydberg final empêche d'utiliser ce modèle pour simuler les spectres d'excitation optique présentés en III.2.1. Nous nous limiterons pour le moment à comparer les simulations aux spectres microonde présentés en III.2.2.

La première étape de cette comparaison consiste à vérifier l'accord entre les spectres simulés et les distributions d'énergie d'interaction immédiatement après excitation, qui sont présentées en figure (III.8). La figure (III.12) présente ces mêmes spectres comparés

aux simulations. Malgré la simplicité du modèle numérique, l'accord avec l'expérience

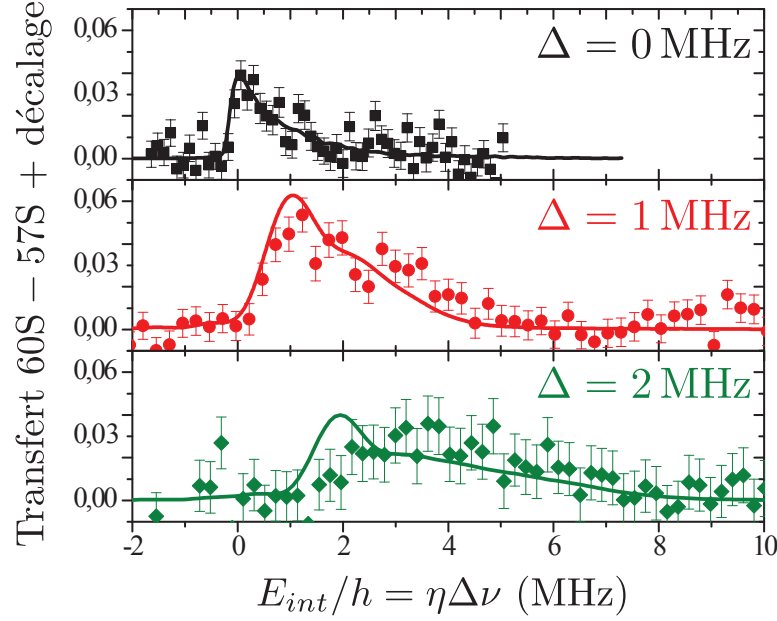


Figure III.12 Comparaison des simulations aux spectres microonde immédiatement après excitation laser. Les spectres expérimentaux sont ceux de la figure III.8. Les lignes pleines sont les résultats de la simulation.

est raisonnable à ce stade. Cela nous encourage à pousser plus loin la comparaison, en confrontant les simulations aux spectres microonde enregistrés au cours de l'explosion du nuage.

La figure (III.13) présente ces spectres, pour trois désaccords laser différents, comparés avec les simulations. L'accord est ici aussi bon, confirmant la pertinence de notre modèle simple pour simuler l'explosion d'un nuage de Rydberg sous interaction.

III.3.3 La limite du modèle : l'absence de temps

Comme nous l'avons évoqué en III.3.1, ce modèle n'incorpore pas d'échelle de temps pour le processus d'excitation. Cela pose la question de comment simuler les spectres d'excitation laser. En effet, on ne peut se permettre de fixer un nombre final d'atomes de Rydberg ici, car la simulation n'aurait plus de sens. Nous avons tenté pour remédier à cela de faire correspondre un nombre d'itérations à la durée d'excitation. Une approche naïve de cette correspondance supposerait une relation linéaire, où le nombre d'atomes dont on teste la probabilité d'excitation serait proportionnel à la durée de l'impulsion laser. Cette hypothèse permet d'intégrer le mouvement des atomes de Rydberg au cours même de l'excitation, ce qui est essentiel pour des durées d'impulsion supérieures à 5 ou 10 μ s. Pour cela, après chaque tirage au sort d'un atome, le mouvement du nuage de Rydberg est calculé sur la durée correspondant à une itération.

Les nombres d'itérations correspondant à chaque durée d'impulsion ont été choisis pour reproduire au mieux la queue à haute énergie des spectres, qui est due à une excitation facilitée à désaccord laser important. La figure III.14 présente les résultats des simulations ainsi menées, superposés aux résultats expérimentaux.

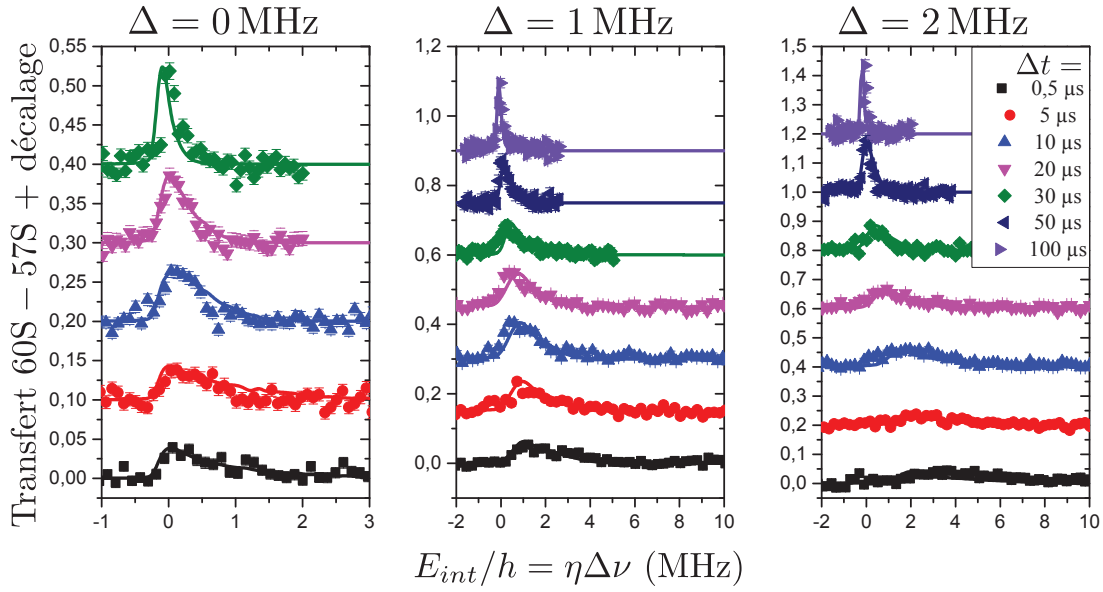


Figure III.13 Comparaison des simulations aux spectres microonde lors de l'explosion du nuage, pour trois désaccords laser d'excitation $\Delta = 0, 1, 2$ MHz. Les spectres expérimentaux sont ceux de la figure III.10. Les lignes pleines sont les résultats de la simulation. L'origine des axes verticaux de chacun des spectres est décalée et l'échelle des abscisses et des ordonnées de chacun des graphes est différente, par souci de visibilité.

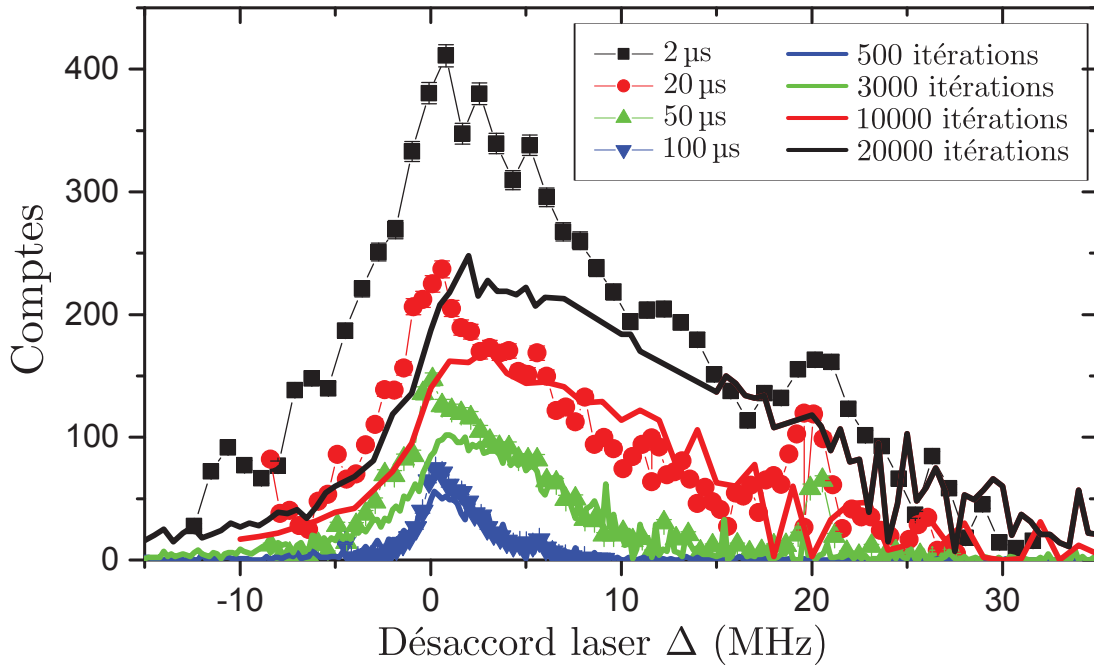


Figure III.14 Comparaison des spectres optiques aux simulations, pour différentes durées d'impulsion laser : 2, 20, 50 et 100 μs . Les spectres expérimentaux sont ceux de la figure III.4. Les lignes pleines sont les résultats de la simulation.