



**HAL**  
open science

# DÉVELOPPEMENT D'UNE HORLOGE A PIÉGEAGE COHÉRENT DE POPULATION. ÉTUDE THÉORIQUE ET EXPÉRIMENTALE DU RÉGIME IMPULSIONNEL ET CONTINU

Thomas Zanon-Willette

► **To cite this version:**

Thomas Zanon-Willette. DÉVELOPPEMENT D'UNE HORLOGE A PIÉGEAGE COHÉRENT DE POPULATION. ÉTUDE THÉORIQUE ET EXPÉRIMENTALE DU RÉGIME IMPULSIONNEL ET CONTINU. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2005. Français. NNT: . tel-00123499

**HAL Id: tel-00123499**

**<https://theses.hal.science/tel-00123499>**

Submitted on 9 Jan 2007

**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.

LABORATOIRE DES SYSTÈMES DE RÉFÉRENCES  
TEMPS-ESPACE

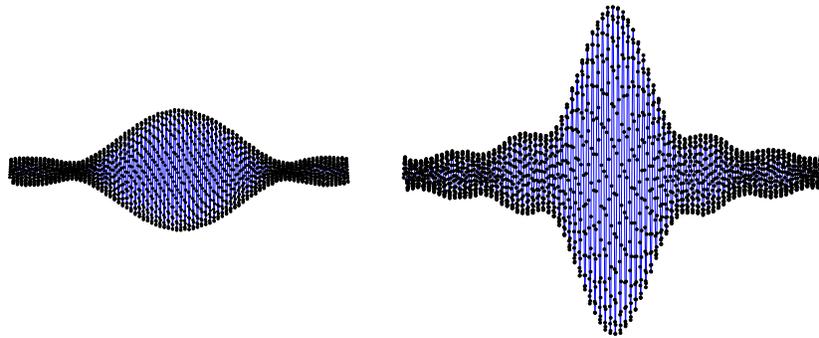


Systèmes de Référence Temps-Espace

THÈSE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ PARIS VI  
spécialité : Physique atomique et optique quantique

présentée par  
Thomas Zanon-Willette

pour obtenir le grade de  
Docteur de l'Université Paris VI



Sujet de la thèse :

*DÉVELOPPEMENT D'UNE HORLOGE A PIÉGEAGE COHÉRENT DE  
POPULATION. ÉTUDE THÉORIQUE ET EXPÉRIMENTALE DU  
RÉGIME IMPULSIONNEL ET CONTINU.*

Soutenue le 17 octobre 2005 devant le jury composé de :

Mme.	L.	Julien	Présidente du jury
M.	J.	Dalibard	Rapporteur
M.	C.	Westbrook	Rapporteur
M.	N.	Dimarcq	Directeur de thèse
M.	A.	Clairon	Directeur de thèse
M.	S.	Guérandel	Examineur
M.	J.	Vanier	Examineur
M.	E.	Arimondo	Membre invité



# Remerciements...

*'The reasonable man adapts himself to the world; the unreasonable one persists in trying to adapt the world to himself. Therefore, all progress depends on the unreasonable man.'*

George Bernard Shaw.

Profitant de la seule initiative de sortir de l'ordinaire, je souhaite au travers de ces quelques lignes remercier l'ensemble du personnel ex LPTF puis BNM-SYRTE et enfin LNE-SYRTE ainsi que Michel Granveaud et Philip Tuckey directeurs successifs pour leur accueil au sein du laboratoire. Je remercie donc *l'Orchestre* du SYRTE pour la symphonie dédiée à la mesure du Temps (pas de mélodie sans métronome...). En cela, commençons par le chef d'Orchestre André Clairon. Il a créé l'instrument de musique le mieux accordé de tous les temps : l'étalon primaire à atomes froids de Cs Fo1. J'ai eu le plaisir de participer avec lui à des discussions scientifiques particulièrement enrichissantes. J'ai appris beaucoup avec André, mais pas assez...

Un *Orchestre a besoin de musiciens*, mais pour être plus percutant, nous dirons de virtuoses : Merci à Sébastien Bize, disciple du maître et maître incontesté des fontaines micro-ondes, merci à Pierre Lemonde qui a pris le temps de m'écouter, souvent pour des élucubrations mais toujours pour des raisons scientifiques. J'ajoute ici que le droit à l'expertise est un long travail d'apprentissage : *'An expert is a man who has made all the mistakes which can be made in a very narrow field.'* Niels Bohr. Merci à Peter Wolf et à Christian J. Bordé (les deux font la paire de séparatrices atomiques) pour les discussions sur le régime Lamb-Dicke et l'effet de recul (effet également négligeable chez moi...). Je remercie une fois de plus Christian Bordé pour son écoute et l'aide qu'il a pu apporter dans la réalisation d'un séjour post-doctoral au JILA-NIST. Je voudrais ici remercier Arnaud Landragin, Franck Pereira Dos Santos et Philippe Laurent pour leur soutien au quotidien. Je remercie Giorgio Santerelli pour son aide inestimable en électronique, accords et désaccords micro-ondes, c'est aussi grâce à son talent.... Je tiens à remercier également toute l'équipe qui accompagne Giorgio et leur mentor Michel Lours pour la technique, le savoir-faire et le faire savoir.... Merci à Ouali Acef pour sa gentillesse, son écoute attentive, et à Daniele Rovera pour ses discussions passionnées sur d'innombrables sujets. Si les *cordes instrumentales vibrent à l'unisson*, il faut pouvoir composer la musique du Temps : Merci à Pierre Ulrich, David Valat, Jean-Yves Richard et à toute l'équipe du temps inverse de l'équipe fréquence pour les trop rares fois que nous avons échangé quelques mots.

Nous avons *l'Orchestre et son compositeur*, il nous faut encore apprendre à manier les



FIG. 1 – *Erwin Schrödinger : séance de travail.*

instruments pour une mélodie harmonieuse. Il n'aurait pas été possible de le faire sans remercier très fortement plusieurs personnes : Emeric De Clercq, Noel Dimarcq, et Stéphane Guérandel qui ont encadré le travail. Noel, Emeric et Stéphane m'ont laissé la liberté d'explorer de nouvelles idées. C'était pour moi un objectif primordial dans une recherche motivée en physique atomique. Merci à Stéphane (in 'tartiflette' we trust...) pour son humour dévastateur, très souvent partagé en de multiples occasions. J'ai eu le privilège de travailler quotidiennement avec Emeric. Je lui suis redevable d'avoir critiqué et écouté, parfois pendant de longs moments, toutes les nouvelles idées que je trouvais. Sans lui, ses objections ou remarques, pas de résolution mathématique possible en moins de 24 heures... Je lui serai éternellement reconnaissant pour tout le savoir qu'il a su me communiquer au cours de mes recherches. C'est un "horloger" de très haut niveau qui remet "*les pendules à l'heure*". Emeric....merci encore. Merci aussi à David Holleville (Vive les free parties...), Luc Chassagne et Virgile Herman maintenant à Thalès. Pendant la dernière année de thèse, j'ai eu l'occasion d'échanger de nombreuses idées avec Peter Rosenbuch. Je souhaite à la nouvelle institution IFRAF (Institut Francilien de Recherche sur les Atomes Froids) et à la future horloge à puce atomique du SYRTE tout le succès scientifique possible.

La présentation synthétique de plusieurs années de travail est un exercice difficile. Je remercie cordialement Lucille Julien d'avoir accepté la présidence du jury. Je suis très reconnaissant envers Jean Dalibard, Chris Westbrook, Jacques Vanier et Ennio Arimondo d'avoir accepté la lourde tâche de participer au jury. Je n'ai pas fini de comprendre l'influence des sauts quantiques dans le formalisme de la fonction d'onde et dans l'interprétation des résultats théoriques et expérimentaux obtenus au cours de mon travail. Je renouvelle donc mes plus chaleureux remerciements à Jean Dalibard pour l'intérêt porté au travail ajouté aux discussions stimulantes et parfois embarrassantes. Durant la période doctorale, L'observatoire de Paris et les laboratoires associés offrent la possibilité de participer à des conférences internationales de haut niveau (workshops, ICAP, EFTF...) et à des activités de communication auprès du grand public. Tout cela est particulièrement formateur et permet de rencontrer les principaux chercheurs des différentes communautés de la Physique. Je remercie en cela Daniel Kleppner pour son invitation au MIT. Ce fut un moment ex-

traordinaire...ponctué de rencontres trop courtes : N. Ramsey, S. Ezekiel, Phil Hemmer, Wolfgang Ketterle, David Pritchard...(Le "Hollywood" de la physique). Pour finir, on ne peut pas oublier les jeunes apprentis sorciers qui découvrent l'univers des horloges et plus généralement de l'interférométrie atomique. Je remercie chaleureusement Stéphane Trémine avec qui j'ai partagé la plus grande partie de mon temps. Incontestablement, il m'a apporté beaucoup tant sur le plan de l'organisation que sur celui de la rigueur scientifique. Je remercie également Audrey Quessada-Vial, Céline Vian pour leur gentillesse, leur bonne humeur et leur présence féminine trop rare dans les établissements à tendance corpusculaire... Merci à Paul Eric Pottier plus souvent appelé Polo (mais pas deuxième effet "kiss cool"). Je remercie Florence Yver-Leduc, Patrick Cheinet, Julien Le Gouët, Alexandre Gauguet, Benjamin Canuel, François Impens, Frédéric Chapelet, Harold Marion et Yvan Sortais. Merci à toute l'équipe des tunique bleus (relire 'Blue Retro' et 'Les bleus tournent cosaques' de Cauvin et Salverius) : Rodolphe Letargat, Xavier Baillard, Mathilde Fouché, Irène Courtillot et Anders Brusck pour leur gentillesse. Je leur souhaite à toutes et à tous la plus belle réussite possible dans leur futur parcours professionnel. Mention spéciale à François Narbonne pour ses soirées très professionnelles et son talent incomparable d'organisateur. L'observatoire de Paris est ainsi devenu un endroit unique. Remercions également l'équipe administrative dont j'ai pu tester, parfois avec énervement et, je l'espère, quelquefois avec humour, la réactivité quotidienne. Je remercie Yertha Baidomni, Catherine Laurent, Anne Thomson pour leur aide de tous les instants. Au cours de mon travail, le succès de la thèse m'a aussi semblé dépendre d'un facteur incontournable : les livres. D'innombrables ouvrages sont consacrés à la physique atomique, à l'interférométrie et à l'optique quantique. Comprendre la physique des atomes passe forcément par les livres parfois récents et plus souvent anciens ("les paroles s'envolent mais les écrits restent"). Je tiens finalement à remercier Annie pour ses points de vue politiques et parce qu'elle trouve que je suis moins sarcastique depuis peu, Pierre Cladé parce qu'il est très normalien et très fort, Jean D'ormesson pour la Douane de Mer et presque rien sur presque tout si si!!, Pascal Blondé pour ses interventions répétées sur ordinateur et ses bonbons aux effets aphrodisiaques, Roland Barillet pour ses cours d'électronique ainsi que tous ceux croisés rapidement dans les couloirs qui me seront à jamais inconnus (revoir ici le défunt Raymond Devos sur le soldat inconnu...hep! vous là bas...)

Je souhaite terminer ces préliminaires en remerciant toute ma famille et mes amis pour leur soutien affectif durant ces années d'acharnement. Je ne remercie évidemment pas les filles avec lesquelles je ne suis pas sorti durant ma thèse (carine, sabrina, éloïse, sophie et marie...). Deux événements familiaux difficiles ont irrémédiablement bouleversé ma conception du Temps et de l'Espace mais n'ont pu en rien contrecarrer l'objectif que je me suis fixé depuis toujours : ne jamais s'arrêter.... sauf peut-être par un atome de  $^{88}\text{Sr}$  tiré à bout portant.....et vive la mécanique des quaternions...ça c'est pour monsieur Dalibard, à messieurs Claude Audoin, Jacques Vanier, Gaspard Orriols et Ennio Arimondo dont les travaux auront beaucoup inspiré cette thèse....

Thomas  
A mes frères et à mon grand-père...

*'La théorie, c'est quand on sait tout et que rien ne fonctionne. La pratique, c'est quand tout fonctionne et que personne ne sait pourquoi. Ici, nous avons réuni théorie et pratique : rien ne fonctionne... et personne ne sait pourquoi !'*

Albert Einstein.

# Table des matières

<b>Introduction</b>	<b>11</b>
<b>1 Interrogation de Ramsey : influence des déplacements lumineux et de la relaxation</b>	<b>17</b>
1.1 Introduction . . . . .	17
1.2 Ramsey (1950) : méthode des champs oscillants séparés . . . . .	18
1.3 Horloges atomiques et interrogation de Ramsey . . . . .	20
1.3.1 Horloge micro-onde à jet thermique . . . . .	20
1.3.2 Horloge micro-onde à atomes froids . . . . .	22
1.4 Impulsions laser incluant relaxation et déplacement lumineux . . . . .	23
1.4.1 Equations de Bloch optiques . . . . .	24
1.4.2 Solutions stationnaires : populations et cohérences . . . . .	26
1.4.3 Régime transitoire et vecteur de Bloch . . . . .	27
1.5 La séquence de Ramsey . . . . .	32
1.5.1 Séquence de Ramsey incluant les déplacements lumineux . . . . .	34
1.5.2 Séquence de Ramsey en présence de relaxation . . . . .	35
1.5.3 Séquence de Ramsey avec des impulsions de piégeage cohérent de population . . . . .	37
<b>2 Piégeage cohérent de population en régime transitoire et stationnaire</b>	<b>43</b>
2.1 Introduction . . . . .	43
2.2 Le piégeage cohérent de population . . . . .	44
2.2.1 L'atome habillé : position en énergie des états propres et introduction de l'émission spontanée . . . . .	44
2.3 Approche adiabatique dans la base $\{ \Psi_+\rangle,  \Psi_{NC}\rangle\}$ incluant les termes sources et les fuites . . . . .	50
2.3.1 Equations d'évolution d'une multiplicité habillée . . . . .	50
2.3.2 Equations d'évolution du système fermé à 2 niveaux . . . . .	52
2.3.3 Correspondance $\{ \Psi_+\rangle,  \Psi_{NC}\rangle\} \leftrightarrow \{ 1\rangle,  2\rangle,  3\rangle\}$ . . . . .	55
2.3.4 Solutions stationnaires . . . . .	55
2.3.5 Le régime transitoire : Solutions temporelles . . . . .	56
2.3.6 Temps caractéristique $\tau_p$ de pompage des atomes dans l'état noir . . . . .	58
2.3.7 Discussion sur la représentation $\{ \Psi_+\rangle,  \Psi_{NC}\rangle\}$ . . . . .	59
2.4 Solutions complètes de Bloch-optique dans la base $\{ 1\rangle,  2\rangle,  3\rangle\}$ . . . . .	60
2.4.1 Introduction des processus de relaxation . . . . .	60

2.4.2	Le modèle adiabatique de spin : temps de relaxation transverse et longitudinal . . . . .	62
2.5	Solution stationnaire de la résonance noire dans la base $\{ 1\rangle,  2\rangle,  3\rangle\}$ . . . . .	65
2.5.1	Largeur effective de la résonance noire . . . . .	67
2.5.2	Déplacement de fréquence $\Delta_f$ associé à la condition de résonance Raman . . . . .	68
2.5.3	Déplacement de fréquence de la résonance noire . . . . .	69
2.5.4	Résonance noire dans l'état fondamental et déplacement de fréquence associé lorsque $\Gamma_{31} \neq \Gamma_{32}$ . . . . .	69
2.6	Conclusion sur les résonances noires . . . . .	70
<b>3</b>	<b>Franges de résonance noire et déphasages optiques associés</b>	<b>75</b>
3.1	Introduction . . . . .	75
3.2	Le modèle fermé : formalisme de la matrice densité . . . . .	76
3.2.1	La séquence d'interrogation avec des impulsions CPT . . . . .	76
3.2.2	Solution exacte pour une impulsion de préparation de durée $\tau$ et une impulsion de détection courte $\tau_m \mapsto 0$ . . . . .	78
3.3	Le modèle ouvert : formalisme de la fonction d'onde complexe . . . . .	82
3.4	Déphasage optique et déplacement de fréquence des observables . . . . .	85
3.4.1	Estimation à partir de la fonction d'onde complexe . . . . .	85
3.4.2	Estimation à partir de la matrice densité . . . . .	86
3.4.3	Comparaison entre le modèle de la fonction d'onde et celui de la matrice densité : cas de la population du niveau excité . . . . .	88
3.5	Conclusion . . . . .	90
<b>4</b>	<b>Observation des franges de résonance noire en cellule de vapeur atomique</b>	<b>93</b>
4.1	Description de l'expérience du LNE-SYRTE sur une vapeur atomique . . . . .	93
4.1.1	Réalisation du banc optique . . . . .	93
4.1.2	La source cohérente d'interrogation à 894 nm : le verrouillage de phase entre 2 lasers LCE . . . . .	95
4.2	Vapeur thermique de Césium en présence de gaz tampon . . . . .	99
4.2.1	Spectre d'absorption . . . . .	99
4.2.2	Largeur de raie et déplacement de fréquence des transitions optiques . . . . .	101
4.3	Observation en régime stationnaire : résonance noire en simple ( $\Lambda$ ) et double lambda ( $\Lambda\Lambda$ ) . . . . .	102
4.3.1	Polarisations circulaires ( $\sigma^\pm$ ) et orthogonales ( $\text{lin}\perp\text{lin}$ ) . . . . .	102
4.3.2	Comparaison du profil de la résonance avec le modèle de la matrice densité . . . . .	106
4.3.3	Largeur de raie des résonances noires en fonction de la saturation . . . . .	107
4.3.4	Schéma de polarisation et contraste des résonances noires . . . . .	108
4.4	Observation du régime impulsionnel . . . . .	111
4.4.1	Transitoire de la transmission optique après une impulsion CPT. . . . .	111
4.4.2	"Méthode des wiggles" : mesure du temps de vie de la cohérence Raman en présence de lumière . . . . .	113
4.4.3	Impulsion CPT . . . . .	114
4.5	Impulsions CPT séparées temporellement . . . . .	115
4.5.1	Impulsions courtes devant le temps de pompage $\tau_p$ : observation des franges Raman-Ramsey . . . . .	116

4.5.2	Impulsions plus longues que le temps de pompage $\tau_p$ : observation des franges de résonance noire . . . . .	118
4.6	Caractérisation de la séquence d'interrogation . . . . .	120
4.6.1	Contraste en fonction de la durée $\tau$ de la première impulsion . . . . .	120
4.6.2	Contraste en fonction de l'instant de lecture $\tau_m$ . . . . .	120
4.6.3	Contraste en fonction du temps d'évolution $T$ . . . . .	121
4.7	La méthode expérimentale du train d'impulsions CPT . . . . .	122
4.8	Discussion des résultats expérimentaux . . . . .	124

**Conclusions et perspectives : Vers un nouveau type d'horloge EIT en régime impulsional** 129

<b>A</b>	<b>Fonction d'onde complexe à 2 niveaux d'énergie</b>	<b>137</b>
A.1	Equations d'évolution : impulsion de Rabi . . . . .	137
A.1.1	Evolution temporelle dans un référentiel tournant. . . . .	137
A.1.2	Solution temporelle à partir de l'opérateur de Pauli . . . . .	139
A.1.3	Expression générale des solutions temporelles de la fonction d'onde à 2 niveaux . . . . .	140
A.2	Coefficients complexes incluant les déplacements lumineux et le phénomène de relaxation par émission spontanée . . . . .	140
A.2.1	Introduction de l'émission spontanée : énergie complexe . . . . .	140
A.2.2	Probabilité de Ramsey avec deux impulsions de durée différente . . . . .	141
A.2.3	Déphasage complexe $\Phi_{ii}(\tau, \tau_m)$ associé aux déplacements lumineux . . . . .	142
<b>B</b>	<b>Méthode des matrices de Jaynes</b>	<b>145</b>
B.1	Représentation matricielle des équations de Bloch-optique à 2 niveaux . . . . .	145
B.2	Expression de l'opérateur matriciel de rotation . . . . .	146
B.3	Correspondance entre l'opérateur matriciel de rotation et la représentation complexe . . . . .	148
<b>C</b>	<b>Solutions stationnaires exactes Bloch-Orriols à 3 niveaux atomiques</b>	<b>151</b>
C.1	Approche par la matrice densité . . . . .	151
C.2	Approche par les équations de taux généralisées . . . . .	154
<b>D</b>	<b>Effet Zeeman pour un alcalin</b>	<b>159</b>
D.1	Effet Zeeman et Formule de Breit-Rabi . . . . .	159
D.1.1	Effet Zeeman en champ faible . . . . .	159
D.1.2	Effet Zeeman en champ intermédiaire . . . . .	160
D.1.3	Formule de Breit-Rabi des niveaux $^2S_{1/2}$ et $^2P_{1/2}$ . . . . .	161
D.1.4	Niveau $^2P_{3/2}$ . . . . .	162
<b>E</b>	<b>Articles publiés et soumis à publication</b>	<b>167</b>
<b>F</b>	<b>Posters ICAP (International Conference on Atomic Physics)</b>	<b>169</b>
<b>G</b>	<b>Brevets déposés</b>	<b>171</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>172</b>



# Introduction

*‘La physique est définitivement constituée dans ses concepts fondamentaux ; tout ce qu’elle peut désormais apporter, c’est la détermination précise de quelques décimales supplémentaires. Il y a bien deux petits problèmes : celui du résultat négatif de l’expérience de Michelson et celui du corps noir, mais ils seront rapidement résolus et n’altèrent en rien notre confiance.’*

Lord Kelvin (1892).

C’est James Clerk Maxwell (1831-1879) qui suggère, dans son traité d’électricité et de magnétisme de 1873, d’utiliser les dimensions et les propriétés oscillatoires des atomes pour déterminer avec exactitude les unités d’espace et de temps. Dans le domaine du temps, cette suggestion a connu sa pleine réalisation par la définition introduite en 1967 de l’unité de la seconde en fonction de la fréquence hyperfine de l’état fondamental du Césium  $^{133}\text{Cs}$ . L’application de deux impulsions de champ électromagnétique de durée  $\tau$  séparées spatialement ou temporellement, par un temps  $T$  de libre évolution, établit un phénomène d’interférences entre les ondes atomiques. Cette méthode permet de mesurer le déphasage entre la fréquence d’excitation laser et la fréquence de la transition atomique. Elle permet en outre de réduire la plupart des déplacements de fréquence d’origine radiative par le facteur  $\tau/T$ .

Par analogie avec l’approche de N. Ramsey, nous avons remplacé l’interrogation monochromatique de la transition d’horloge par un schéma d’excitation à deux ondes lasers accordées sur deux transitions optiques et partageant un même niveau excité. Lorsque la différence de fréquence entre ces deux ondes est égale à la fréquence d’horloge entre les deux niveaux de plus faible énergie, la fluorescence est idéalement annulée. Les atomes sont alors piégés dans une superposition particulière des états propres du système atome-photon que l’on nomme état noir. Cet effet, connu sous le nom de piégeage cohérent de population (Coherent Population Trapping ou CPT en anglais) [1, 2], trouve sa source dans les interférences destructives entre amplitudes de diffusion [3]. Les processus non linéaires, réalisés par les interactions entre ondes lasers, sont responsables d’une modification importante de la réponse du milieu atomique et sont très similaires aux profils de résonance de Fano-Feshbach [4]. Ces milieux préparés de manière cohérente par des interférences entre transitions optiques ont été appelés par M.O. Scully, à la fin des années 1980, ”phaseonium” [5] en raison de leur indice de réfraction très élevé et sont aujourd’hui activement exploités en optique quantique [6, 7]. Par exemple, Harris [8] a proposé en 1990 d’inhiber l’absorption d’un milieu atomique à l’aide d’un faisceau pompe qui contrôle fortement une transition optique tandis qu’un second fais-

ceau, de plus faible intensité, sonde une autre transition partageant un niveau commun avec le faisceau pompe. Le processus d'absorption non linéaire à deux photons provoque alors une diminution brutale de l'absorption à un photon autour de la condition de résonance optique du laser sonde : C'est la transparence induite électromagnétiquement (Electromagnetically Induced Transparency ou EIT en anglais). Ces processus d'interférences à plusieurs quantas sont associés à l'apparition de résonances de largeur beaucoup plus étroites que la largeur naturelle des transitions optiques (appelées aussi couramment résonances noires). Ces résonances sont, par exemple, utilisées pour le développement d'étalons secondaires de fréquence micro-onde [9, 10]. Elles pourraient être aussi de bonnes candidates pour la réalisation d'horloges optiques ultra stables [11, 12]. Habituellement, le schéma d'excitation à 2 ondes lasers sur un système à 3 niveaux est réalisé à l'aide d'un champ magnétique directeur parallèle à l'axe de propagation des faisceaux lasers avec des polarisations circulaires droites ou circulaires gauches (appelé schéma  $\Lambda$ ). Nous avons remplacé ce schéma de couplage par des polarisations lasers orthogonales entres elles, réalisant ce que l'on appelle un schéma en double  $\Lambda$  ( $\Lambda\Lambda$ ). Les interférences constructives entres couplages des transitions optiques produit un spectre de résonances noires de contraste très supérieur au couplage simple  $\Lambda$  en éliminant les niveaux pièges. Nous avons ensuite appliqué la méthode des impulsions d'ondes lasers CPT<sup>1</sup> séparées temporellement sur une vapeur atomique de Césium en régime Lamb-Dicke. L'observation des *franges Raman-Ramsey ou franges de résonance noire* en présence de forte saturation optique à permis d'atteindre le régime stationnaire où la quasi totalité des atomes oscillent entre les états propres du système atome-photon. La méthode d'interrogation en régime impulsif ouvre de nouvelles perspectives en spectroscopie ultra-haute résolution, par exemple, en métrologie des fréquences optiques [13].

La thèse présente l'étude du phénomène de piégeage cohérent de population (CPT) pour la réalisation d'horloges atomiques. La méthode à deux champs lasers appliqués simultanément sur une vapeur atomique de Césium permet d'interroger une transition atomique de longue durée de vie. Elle offre la possibilité de contrôler les déplacements lumineux qui perturbent la fréquence de référence en modifiant la phase relative de l'onde atomique accumulée au cours des deux interactions successives entre les atomes et les champs lasers. Deux méthodes d'estimation de ces déphasages sont présentées à partir des formalismes de la matrice densité et de la fonction d'onde complexe. La matrice densité introduit de manière phénoménologique les relaxations radiatives (émission spontanée) et phénomènes de décohérence (perturbation ou destruction des superpositions d'états quantiques) en assurant la conservation de la population atomique (système fermé). La fonction d'onde complexe introduit l'instabilité radiative des états atomiques en ajoutant un terme imaginaire qui décrit le taux de relaxation par émission spontanée sur la définition des niveaux d'énergie. Cette approche n'assure plus la conservation de la population. Il décrit un système ouvert mais permet de déterminer rapidement les formules de déphasage qui dépendent de la préparation atomique avant interaction avec les lasers. Finalement une comparaison entre ces deux modèles valide l'intégralité des approches sur le déphasage atomique. Le déplacement de fréquence du signal d'horloge dépend du type d'interrogation appliqué aux atomes : une interaction continue caractérisant le régime stationnaire ou deux impulsions séparées temporellement. Dans le premier cas, l'influence du taux de relaxation de la cohérence entres états stables (cohérence Raman) est analysé et la formule de déplacement associée à la détection con-

<sup>1</sup>Dans la suite de notre étude, nous appellerons désormais les impulsions lasers réalisant le piégeage cohérent de population, des impulsions lasers CPT

tinue de la fluorescence est présentée. Dans le second cas, le régime impulsionnel transfère l'influence des déplacements lumineux sous la forme d'un terme de déphasage des franges d'interférences qui retarde ou avance la période des oscillations modifiant la valeur de la fréquence mesurée. On présente en 4 parties l'étude des impulsions laser CPT en régime transitoire et continu.

▷ **Le chapitre 1.** Un premier chapitre introductif rappelle la **méthode des champs oscillants séparés de Ramsey** puis le principe de fonctionnement des horloges atomiques (*horloges micro-onde à jet thermique et à atomes froids*). Dans la seconde partie, une approche matricielle en présence de relaxation et incluant les éventuels déplacements lumineux est appliquée à la séquence de Ramsey. L'approche théorique sous la forme matricielle permet de calculer intégralement le profil de résonance des transitions atomiques.

▷ **Le chapitre 2.** Ce chapitre décrit le principe du **piégeage cohérent de population**. Les cours du collège de France de Claude Cohen-Tannoudji sur la période 1991-1992 introduisent les concepts sur les interférences quantiques entre champs lasers responsables de la résonance noire et du piégeage de la population sur une configuration  $\Lambda$  à trois niveaux atomiques. La représentation de la cascade radiative interrompue dans le modèle de l'atome habillé est également traitée. On développe un modèle dynamique à partir de la matrice densité. À partir de ce modèle, on établit les solutions transitoires d'un système effectif à 2 niveaux dans la base des états couplé  $|\Psi_+\rangle$  et non couplé  $|\Psi_{NC}\rangle$ . La notion du temps de pompage dans l'état noir  $|\Psi_{NC}\rangle$  est présentée. Enfin, l'influence de la relaxation de la cohérence Raman sur le déplacement de fréquence de la résonance noire est étudié en régime stationnaire.

▷ **Le chapitre 3.** Il expose le principe de la séquence d'interrogation reposant sur deux impulsions CPT séparées temporellement par un temps  $T$  d'évolution libre. Le déplacement de fréquence de la frange centrale de chaque observable (population ou cohérence) induit par la présence des déplacements lumineux est modélisé à partir de la fonction d'onde atomique complexe de Schrödinger ou de la matrice densité.

▷ **Le chapitre 4.** Ce chapitre expérimental décrit l'interrogation de la transition d'horloge à partir de la séquence d'interrogation sur une vapeur atomique de Césium en régime Lamb-Dicke. Les caractéristiques principales des **franges de résonance noire** (influence de la durée de chaque impulsion et du temps d'évolution libre  $T$ ) sont présentées. Pour finir, la démonstration expérimentale de l'interrogation de la transition par la méthode d'un train d'impulsions CPT est proposée comme méthode d'asservissement d'un oscillateur local (mode horloge).

▷ **L'annexe A.** établit les solutions analytiques des franges de Ramsey à l'aide des coefficients de la fonction d'onde complexe incluant le phénomène de relaxation.

▷ **L'annexe B.** développe le calcul matriciel en matrice densité qui décrit les interactions entre la lumière et les atomes à 2 niveaux en présence de relaxation.

▷ **L'annexe C.** Cette annexe donne les solutions analytiques en régime stationnaire des équations de Bloch-optiques à 3 niveaux. Elle présente aussi le calcul des solutions stationnaires des populations atomiques à partir de la théorie des équations de taux généralisées. Cette approche permet de mettre en évidence le rôle des taux de transitions à un ou deux photons.

▷ **L'annexe D** introduit l'effet Zeeman. L'application d'un champ électromagnétique (champ électrique ou magnétique) lève la dégénérescence des niveaux hyperfins et permet d'orienter la répartition des atomes en fonction de leur spin.

▷ **Les dernières annexes** regroupent les articles publiés, les posters présentés à ICAP et le dépôt de brevet n°05744396.2–FR2005000754.

Ce travail trouve son origine dans plusieurs ouvrages et articles sur les systèmes à deux et trois niveaux atomiques en présence de relaxation. Notre approche théorique repose sur les concepts d'optique quantique introduits au travers des références suivantes :

En Résonance Magnétique Nucleaire :

- F. Bloch and A. Siegert, 1940, "Magnetic resonance for nonrotating fields", Phys. Rev., Vol 57, 522.
- F. Bloch, 1946, "Nuclear Induction", Phys. Rev., Vol 70, 460.
- N. Bloembergen, E.M. Purcell, and R.V. Pound, 1948, "Relaxation Effects in Nuclear Magnetic Resonance Absorption", Phys.Rev., Vol 73, 679.
- H.C. Torrey, 1949, "Transient nutations in Nuclear Magnetic Resonance", Phys. Rev., Vol 76, 1059.
- E.L. Hahn, 1950, "Spin echoes", Phys. Rev., Vol 80, 580.
- I.I. Rabi, N.F. Ramsey, J. Schwinger, 1954, "Use of rotating coordinates in magnetic resonance problems", Rev.Mod.Phys., Vol 26, 167.
- A. Abragam, 1961, "Principles of Nuclear Magnetism", Ed Clarendon Press, Oxford.
- L.M.K. Vandersypen, I.L. Chuang, 2004, "NMR techniques for quantum control and computation", Rev.Mod.Phys., Vol 76, 1037.

En spectroscopie laser de cohérence :

- P.R. Berman, J.M. Levy and R.G. Brewer, 1975, "Coherent optical transient study of molecular collisions : Theory and observations", Phys.Rev.A., Vol 11, 1668.
- R.G. Brewer, E.L. Hahn, 1975, "Coherent two-photon processes : Transient and steady-state cases", Phys.Rev.A., Vol 11, 1641.
- R. balian, S. Haroche, S. Liberman, 1977, "Frontiers in laser spectroscopy", Noth Holland, Amsterdam.
- J.I. Steinfeld, 1978, "Laser and Coherence Spectroscopy", Ed Plenum, New York.
- M.D. Levenson, S.S Kano, 1988, "Introduction to non linear laser spectroscopy", Ed plenum, New York.

Pour les outils fondamentaux de l'optique quantique :

- L. Allen and J.H. Eberly, 1987, "optical resonance and two-level atoms", Ed Dover, New York
- H. Carmichael, 1991, "An opened systems approach to quantum optics", Lectures notes à l'Université libre de Bruxelles, Ed Springer Verlag.
- M.O. Scully, M.S. Zubairy, 1997, "Quantum Optics", Ed Cambridge univ press., Cambridge.
- R. Boyd, 2003, "Non linear optics", Ed Elsevier Science, Academic press.
- C.C. Tannoudji, J. Dupont-Roc, Gylbert Grynberg, 1988, "Processus d'interaction entre photons et atomes", InterEditions/Editions du CNRS

Nous mentionnons également quelques ouvrages importants sur la transparence induite, le piégeage cohérent de population et la méthode STIRAP (Stimulated Raman adiabatic rapid passage) :

- E. Arimondo, 1996, "**Coherent population trapping in laser spectroscopy**", Progress in Optics, **Vol 35**, Ed by E. Wolf, 259.)

- 
- K. Bergmann, H. Theuer, and B.W. Shore, 1998, "**Coherent population transfer among quantum states of atoms and molecules**", Rev.Mod.Phys., Vol 70, 1003.)
  - M. Lukin, 2003, "**Colloquium : Trapping and manipulating photon states in atomic ensembles**", Rev.Mod.Phys., Vol 75, 457.)
  - M. Fleischhauer, A. Imamoglu, J.P. Marangos, 2005, "**Electromagnetically induced transparency : optics in coherent media**", Rev.Mod.Phys., Vol 77, 633.)

Une théorie complète du piégeage cohérent de population doit contenir les degrés de liberté externes de l'atome comme l'effet Doppler et le recul afin de faire le lien avec l'interférométrie atomique [14]. Malheureusement l'émission spontanée modifie radicalement le comportement d'un atome et la distribution de la quantité de mouvement induit par le recul. Ainsi lorsque le piégeage cohérent de population devient sélectif en vitesse (Velocity Selective Coherent Population Trapping), les atomes sont portés de manière aléatoire dans l'état noir de classe de vitesse nulle par le recul induit sous l'effet de l'émission spontanée. Le traitement quantique d'un tel processus de diffusion conduit à la compression de la distribution de recul et à un mécanisme de refroidissement qui lui est associé :

- A. Aspect, E. Arimondo, R. Kaiser, N. Vansteenkiste and C.Cohen-Tannoudji, 1989, "Laser cooling below the one-photon recoil energy by velocity-selective coherent population trapping : theoretical analysis", JOSA. B., Vol 6, numéro 11.)
- H. Wu, E. Arimondo, C. J. Foot, 1996, "Pulsed sub-recoil laser cooling of atoms", Quantum Semiclass. Opt., Vol 8, 983.)
- E. Korsunsky, D. Kosachiov, B. Matisov, Yu. Rozhdestvensky, 1993, "Quasiclassical analysis of laser cooling by velocity-selective coherent population trapping", Phys. Rev. A., Vol 48, 1419.)
- F. Sanders, T. Devolder, T. Esslinger, T. Hansch, 1996, "Ramsey type sub-recoil cooling", Phys. Rev. Lett., Vol 78, 4023.)
- M. Kasevich et S. Chu, 1992, "Laser cooling below a photon recoil with three-level atoms", Phys. Rev. Lett., Vol 69, 1741.)



# Chapitre 1

## Interrogation de Ramsey : influence des déplacements lumineux et de la relaxation

*‘Le Temps n’épargne pas ce qu’on a fait sans lui.’*

François Fayolle. Discours sur la littérature.

### 1.1 Introduction

De nombreuses horloges atomiques utilisent la méthode des champs oscillants séparés de Ramsey [15] pour asservir un oscillateur sur une fréquence atomique avec une très grande exactitude (égale actuellement à quelques  $10^{-16}$  en valeur relative [16]). Ceci permet à l’unité de fréquence, le Hz, ou de temps, la seconde, d’être aujourd’hui la quantité la plus exacte. La méthode de Ramsey, application particulière de la méthode de Rabi développée en 1937 [17], a permis de réduire considérablement la largeur des résonances atomiques ouvrant la voie à la spectroscopie ultra-haute résolution dans le domaine micro-onde et aux étalons atomiques de fréquence présentant les meilleurs compromis stabilité-exactitude. L’utilisation de la technique des atomes refroidis et piégés par laser sur les fontaines a permis de réaliser des temps d’interrogation de la transition d’horloge permettant d’atteindre le Hz de résolution sur une fréquence de 10 GHz [18]. La méthode de Ramsey reste aujourd’hui encore couramment utilisée pour tous les types d’horloges primaires puisque, pendant la plus grande partie de l’évolution temporelle des états quantiques, les atomes sont très peu perturbés. Toutefois des processus externes (lumière parasite, collisions entre atomes, émission spontanée, etc....) modifient en pratique l’évolution cohérente des états atomiques. Ils induisent des déphasages qui déplacent la transition d’horloge et entraînent une réduction du contraste. Les équations de Bloch-optiques permettent d’introduire de manière phénoménologique mais réaliste ces perturbations parasites et de décrire convenablement le système atomique.

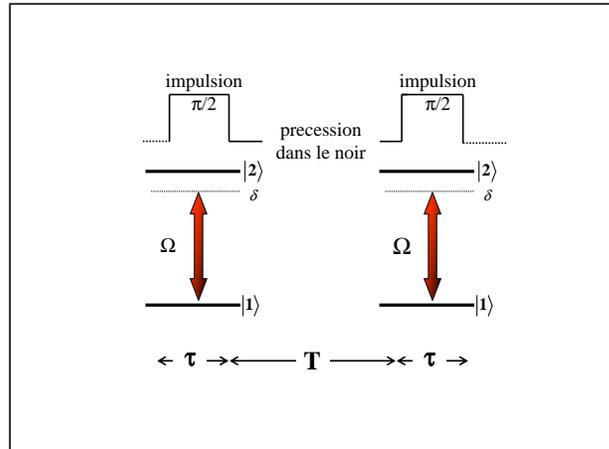


FIG. 1.1 – *Méthode de Ramsey (1950)*. On mesure la probabilité de transition entre les deux états atomiques après la seconde impulsion. Cette probabilité est maximale pour  $2\Omega \cdot \tau = \pi/2$  dans chaque zone d'interaction.

On décrit les différents dispositifs qui reposent sur la mesure de la transition d'horloge à l'aide d'une interrogation de type Ramsey. Le traitement des interactions entre un atome et un champ laser à l'aide des équations de Bloch-optiques et en présence de relaxation permet de modéliser rigoureusement les profils de résonances. Enfin la méthode des impulsions laser CPT est proposée comme alternative à la méthode de Ramsey pour des transitions d'horloges dans les domaines optique et micro-onde.

## 1.2 Ramsey (1950) : méthode des champs oscillants séparés

La méthode des deux impulsions successives a été imaginée initialement par Norman Ramsey en 1950 pour améliorer la précision des mesures de fréquences atomiques dans les expériences où l'on irradiait des jets atomiques avec des rayonnements hyperfréquences [15, 19]. Elle repose sur une double interrogation des atomes par un champ micro-onde. L'atome présente dans ce domaine énergétique une durée de vie très longue qui réalise en pratique le système atomique idéal sans relaxation. La méthode des champs oscillants séparés peut être décrite de multiples façons : à l'aide de la représentation semi-classique de Schrödinger [20] ou plus récemment en introduisant la quantification des états externes des fonctions d'ondes responsables des interférences entre paquets d'ondes atomiques [21].

Cette méthode permet de pointer avec précision les fréquences des transitions atomiques en établissant deux interactions successives  $\Omega$  de durée  $\tau$  séparées par un temps mort  $T$  entre un atome à 2 niveaux d'énergie  $|1\rangle, |2\rangle$  et un champ électromagnétique  $\vec{E}$  (voir Fig. 1.1).

L'évolution de l'état atomique  $|\Psi(t)\rangle = c_1(t)|1\rangle + c_2(t)|2\rangle$ , au cours de chaque interaction, est donnée par la fonction d'onde (**voir annexe A**) :

$$|\Psi(t)\rangle = \left[ c_1(0) \cos\left(\frac{\Omega_R t}{2}\right) + i \left( \frac{-\delta c_1(0) + 2\Omega c_2(0)}{\Omega_R} \right) \sin\left(\frac{\Omega_R t}{2}\right) \right] |1\rangle + \left[ c_2(0) \cos\left(\frac{\Omega_R t}{2}\right) + i \left( \frac{\delta c_2(0) + 2\Omega c_1(0)}{\Omega_R} \right) \sin\left(\frac{\Omega_R t}{2}\right) \right] |2\rangle \quad (1.1)$$

avec les conditions initiales  $c_1(0)$  et  $c_2(0)$  à  $t=0$  et  $\Omega_R = \sqrt{\delta^2 + 4\Omega^2}$ . On appelle  $\delta$  le désaccord non perturbé entre la pulsation de l'onde excitatrice et la pulsation de la transition ( $\delta = \omega_{21} - \omega_L$ ). La pulsation de Rabi  $\Omega$  décrit le couplage entre le moment dipolaire (électrique ou magnétique) de la transition atomique et le champ excitateur. En introduisant un champ électromagnétique, selon un axe  $\hat{z}$  de quantification, et l'opérateur vectoriel à 3 dimensions de Pauli  $\vec{\sigma}$  relatif à la base  $|1\rangle, |2\rangle$  (**voir annexe A**), on obtient la forme compacte de l'évolution de la fonction d'onde au cours du temps  $t$  :

$$|\Psi(t)\rangle = \left[ \cos\left(\frac{\Omega_R t}{2}\right) + i \vec{\sigma} \cdot \left( \frac{-\delta \hat{z} + 2\Omega \hat{x}}{\Omega_R} \right) \sin\left(\frac{\Omega_R t}{2}\right) \right] |\Psi(0)\rangle \quad (1.2)$$

Pendant chaque étape de l'interrogation, on obtient l'évolution temporelle de la fonction d'onde atomique en appliquant les opérateurs suivants :

$$\begin{aligned} \text{impulsion de durée } \tau &\Rightarrow U_\tau = \cos\left(\frac{\Omega_R \tau}{2}\right) + i \vec{\sigma} \cdot \left( \frac{-\delta \hat{z} + 2\Omega \hat{x}}{\Omega_R} \right) \sin\left(\frac{\Omega_R \tau}{2}\right) \\ \text{évolution libre } T \text{ avec } \Omega = 0 &\Rightarrow U_T = \cos\left(\frac{\delta T}{2}\right) - i \vec{\sigma} \cdot \hat{z} \sin\left(\frac{\delta T}{2}\right) \\ \text{impulsion de durée } \tau &\Rightarrow U_\tau = \cos\left(\frac{\Omega_R \tau}{2}\right) + i \vec{\sigma} \cdot \left( \frac{-\delta \hat{z} + 2\Omega \hat{x}}{\Omega_R} \right) \sin\left(\frac{\Omega_R \tau}{2}\right) \end{aligned} \quad (1.3)$$

La probabilité de transition dans un état final  $|f\rangle$  à la fin de la séquence d'interrogation est alors explicitement :

$$P(2\tau + T) = |\langle f | \Psi \rangle|^2 = |\langle f | U_\tau U_T U_\tau | \Psi(0) \rangle|^2 \quad (1.4)$$

En prenant par exemple les atomes initialement dans l'état  $|1\rangle$  soit  $c_1(0) = 1$  et  $c_2(0) = 0$ , on trouve que la probabilité de présence dans l'état  $|2\rangle$  est donnée par la formule :

$$P_2(t) = 16 \frac{\Omega^2}{\Omega_R^2} \sin^2\left(\frac{\Omega_R \tau}{2}\right) \left[ \cos\left(\frac{\Omega_R \tau}{2}\right) \cos\left(\frac{\delta T}{2}\right) - \frac{\delta}{\Omega_R} \sin\left(\frac{\Omega_R \tau}{2}\right) \sin\left(\frac{\delta T}{2}\right) \right]^2 \quad (1.5)$$

A très faible désaccord devant la pulsation excitatrice  $\Omega$ , la probabilité de trouver l'atome dans chaque état se simplifie comme :

$$P_1(t) = \frac{1}{2}(1 - \cos[\delta T]) \quad (1.6)$$

$$P_2(t) = \frac{1}{2}(1 + \cos[\delta T]) \quad (1.7)$$

avec une largeur à mi-hauteur de la frange centrale définie pour  $\tau \ll T$  par  $\Delta\nu = 1/2T$ , où  $T$  est le temps d'évolution libre entre les impulsions. Les probabilités obtenues sont

modulées de façon sinusoïdale en fonction de  $\delta T$  le déphasage entre atomes et champ après le temps  $T$ . La méthode permet de mesurer directement, et avec une résolution en fréquence ( $\propto 1/T$ ), les déphasages induits par d'éventuelles perturbations [22]. Si un processus change de manière cohérente la phase relative de la superposition d'états atomiques (en introduisant par exemple les déplacements lumineux), l'évolution des populations dépendra du déphasage  $\Phi_{coh}$  accumulé au cours du vol libre :

$$P_1(t) = \frac{1}{2}(1 - \cos[\delta T - \Phi_{coh}]) \quad (1.8)$$

$$P_2(t) = \frac{1}{2}(1 + \cos[\delta T - \Phi_{coh}]) \quad (1.9)$$

L'état atomique reste un état pur avec une phase bien définie. Le résultat est en général une fonction oscillante du déphasage  $\delta T$  mais avec un terme de contraste et un déphasage total moyen dépendant de la distribution de tous les déphasages possibles. La présence d'un déphasage quel qu'il soit conduit à un déplacement de la frange centrale par rapport à sa référence non perturbée. Dans le cas de processus incohérents, on peut dire, en général, que le terme de contraste est d'autant plus petit que la distribution des déphasages est grande.

### 1.3 Horloges atomiques et interrogation de Ramsey

Dans un certain nombre de types d'horloges, on applique la méthode des franges de Ramsey sur un système à 2 niveaux d'énergie. Ces appareils utilisent généralement l'atome de Césium choisi en 1967 pour la définition de la seconde. La transition micro-onde ( $\nu_0 = 9192631770$  Hz) a lieu entre les états hyperfins  $|F = 3, m_f = 0\rangle \leftrightarrow |F = 4, m_f = 0\rangle$  dont la dégénérescence est levée à l'aide d'un champ magnétique statique. La fréquence de cette transition dépend de manière quadratique du champ magnétique, ce qui réduit la sensibilité de la fréquence de l'horloge aux fluctuations de ce champ. On définit habituellement deux paramètres qui caractérisent le signal d'horloge : le rapport signal à bruit (noté S/N) et le facteur de qualité de la transition d'horloge ( $Q = \nu_0/\Delta\nu$ ). Deux autres quantités fondamentales de l'horloge permettent une évaluation métrologique des performances de l'appareil : la stabilité relative de fréquence (notée  $\sigma_y(\tau)$ ) qui représente l'écart type des fluctuations de fréquence et l'exactitude qui représente l'incertitude sur la connaissance du déplacement relatif de la fréquence d'horloge par rapport à sa définition non perturbée  $\nu_0$ . Le bilan d'exactitude dresse la liste de l'évaluation quantitative de tous les effets qui perturbent alors le fonctionnement de l'horloge (voir [23]). On présente donc dans ce qui suit un bref aperçu des différents dispositifs qui appliquent cette méthode.

#### 1.3.1 Horloge micro-onde à jet thermique

Dans le cas de transitions micro-ondes entre niveaux de l'état fondamental, la probabilité d'émission spontanée est très faible. L'utilisation d'un jet atomique par exemple à l'intérieur d'une chambre à vide permet de soustraire les atomes aux perturbations habituellement provoquées par les multiples collisions dans une vapeur. Les premiers étalons de fréquence ont mis en oeuvre la méthode de Ramsey sur un **jet thermique**.

Développés à partir de 1955, ils utilisent un jet d'atomes s'échappant d'un four. Celui-ci passe à travers deux guides d'onde séparés par une zone sans interaction et alimentées symétriquement [25]. L'ensemble des deux zones d'interactions séparées spatialement est

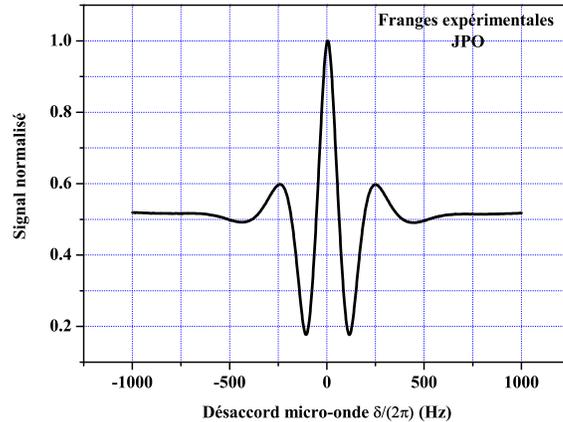


FIG. 1.2 – *Franges de Ramsey du jet thermique à pompage optique JPO [24]. La largeur de la frange centrale à mi-hauteur est de 100 Hz environ. A cause de la dispersion longitudinale des vitesses atomiques, il y a brouillage des franges dès que le désaccord micro-onde devient important.*

appelée cavité de Ramsey. Ces appareils ont utilisé pendant de nombreuses années une déflexion magnétique afin de sélectionner les atomes avant les interactions successives avec le champ micro-onde. Depuis l'avènement des diodes lasers à semi-conducteurs, la préparation est maintenant réalisée à l'aide de faisceaux lasers collimatés et combinés à des champs magnétiques de faible intensité. Le jet atomique est généralement très peu dispersif transversalement et seule la distribution de vitesses longitudinale est responsable du brouillage des franges dès que le désaccord micro-onde est important. Le signal d'horloge, détecté en sortie de cavité, est pondéré par une distribution maxwellienne modifiée de vitesses autour de la vitesse la plus probable<sup>1</sup>. On montre alors que la frange centrale n'est pas affectée tandis que les ailes sont fortement atténuées (Fig.1.2). La détection du signal d'horloge est faite en sortie de cavité par une méthode magnétique ou optique. Le rapport signal à bruit obtenu est alors de l'ordre de 10000 proche de la limite quantique grâce au flux très important des atomes ( $\sim 10^{10} \text{at.cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ) qui traversent la zone de détection. Le facteur de qualité typique est d'environ  $Q = 10^8$ . La stabilité de fréquence atteinte actuellement par ce type d'étalon primaire (Fig.1.2) est de  $3.5 \cdot 10^{-13} \tau^{-1/2}$  avec une exactitude relative de  $6 \cdot 10^{-15}$  [24]. Ce type horloge participe depuis plusieurs années à la réalisation du Temps Atomique International (TAI). Ces dispositifs souffrent toutefois d'une limitation fondamentale due au temps de transit  $T$  (ou vol libre) des atomes entre les deux bras de la cavité de Ramsey. L'allongement de la cavité de Ramsey au delà de 1 mètre n'est pas pratique car elle entraîne des contraintes mécaniques et magnétiques trop sévères accompagnées par une diminution importante du signal d'horloge.

<sup>1</sup>La vitesse la plus probable dépend du type de distribution de vitesses et n'est donc pas identique pour des atomes dans une vapeur atomique et en sortie d'un four [25]

### 1.3.2 Horloge micro-onde à atomes froids

La possibilité d'obtenir des temps de transit de l'ordre de la seconde tire profit du refroidissement et du piégeage par laser appliqué sur les atomes (Prix nobel 1997 de S. Chu, W. Phillips et C. Cohen-Tannoudji). Cette méthode a été utilisée pour réaliser à partir de 1992 les premières **fontaines à atomes froids de Césium** [26] qui atteignent aujourd'hui une stabilité inégalée de  $1.6 \cdot 10^{-14} \tau^{-1/2}$ , limitée uniquement par le bruit de projection quantique<sup>2</sup> [27, 28] avec une exactitude relative de  $7 \cdot 10^{-16}$ . Le rapport signal à bruit de l'ordre de 1000 est plus petit que celui des jets thermiques puisque le refroidissement ne permet l'interrogation que de  $10^6$  atomes froids. Le facteur de qualité  $Q = 10^{10}$  est en revanche remarquable, puisque la largeur de la frange centrale est couramment inférieure au Hz ! Dans son ensemble, la fontaine reprend le schéma de principe des horloges à jet thermique en remplaçant le jet par un nuage d'atomes froids lancé verticalement.

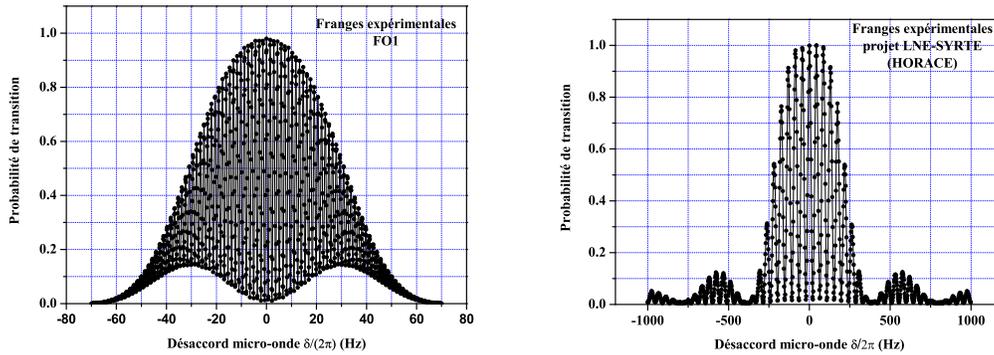


FIG. 1.3 – (a) *Franges de Ramsey d'une fontaine atomique* [26] et du *prototype HORACE (pour horloge à refroidissement d'atomes en cellule)* [29, 30]. (a) *Fontaine* : la largeur à mi-hauteur de la frange centrale est de 1 Hz environ, déterminée par l'intervalle de temps séparant les deux passages du nuage d'atomes dans la cavité d'interrogation. (b) *atomes interrogés en cellule de vapeur* : la largeur est d'environ 25 Hz limitée par la chute du nuage d'atomes sous l'effet de la gravité entre chaque impulsion.

Le nuage d'atomes froids se forme d'abord à l'intersection de 6 faisceaux convenablement polarisés. Les atomes sont ensuite lancés vers le haut avec une vitesse de l'ordre de 4 à 5  $\text{ms}^{-1}$  à l'aide de la technique de la mélasse mouvante<sup>3</sup>. Les atomes subissent alors une préparation atomique et parcourent une trajectoire balistique de 80 cm de hauteur environ. Il s'écoule une 1/2 seconde entre les 2 passages successifs du nuage à travers la cavité d'interrogation micro-onde. On détecte enfin le signal d'horloge produit par le double passage vertical de la boule d'atomes à travers la dite cavité. A cause de la distribution résiduelle de vitesse affectant les

<sup>2</sup>Le bruit de projection quantique est simplement relié au bruit statistique de partition des atomes déterminé par l'écart type  $\sqrt{p(1-p)}$  lorsque l'on mesure la probabilité  $p$  de présence d'un atome par projection de la superposition d'état du type  $p|1\rangle + (1-p)|2\rangle$ . Le rapport signal à bruit varie comme  $\sqrt{N_{at}}$  où  $N_{at}$  est le nombre d'atomes froids.

<sup>3</sup>Pendant cette phase dite de mélasse mouvante, les atomes subissent un refroidissement sub-Doppler à 1  $\mu\text{K}$  dans le référentiel en mouvement

atomes du nuage (nuage en expansion durant le vol balistique), le double passage des atomes à travers la cavité micro-onde tronque non seulement la taille du nuage (10% des atomes sont réellement détectés) mais provoque une petite perte de contraste des franges autour de la fréquence d'horloge à cause de la dispersion de la durée de vol libre des atomes entre les deux impulsions (voir Fig. 1.3(a)). Les franges obtenues peuvent être décrites de la même manière que les jets thermiques en remplaçant la distribution maxwellienne par une distribution de type lorentzienne élevée en puissance [23]. Evidemment, une modélisation rigoureuse des effets perturbant le déphasage accumulé par les atomes pendant l'interrogation micro-onde et le vol libre nécessite des paramètres ajustables plus nombreux et un calcul numérique devient obligatoire [31]. Les fontaines sont devenues, aujourd'hui, les étalons primaires de fréquence les plus stables depuis l'utilisation d'un oscillateur local cryogénique de stabilité court-terme  $4 \cdot 10^{-15}$  jusqu'à 100 secondes [16]. Ces dispositifs possèdent maintenant une exactitude proche de quelques  $10^{-16}$  et permettent des tests de physique fondamentale très précis comme une recherche de la possible variation de la constante de structure fine [32, 33] et l'étude des collisions froides [23, 34] ou encore l'évaluation du déplacement de fréquence de l'horloge dû au rayonnement du corps noir [35, 36]. Les fontaines et les jets thermiques appliquent l'interaction micro-onde sur un système atomique de très longue durée de vie mais le facteur de qualité reste "mécaniquement" limité. Augmenter la hauteur des fontaines n'est pas réaliste car le temps de vol libre entre les deux impulsions ne croit que comme la racine carrée de la hauteur. Il faudrait alors blinder magnétiquement l'appareil sur des hauteurs de plus en plus grandes. La solution qui s'impose consiste à se débarrasser de la gravité. Le projet PHARAO (Projet d'Horloge Atomique à Refroidissement d'Atomes en Orbite) devrait à terme permettre de faire fonctionner une horloge en micro-gravité à bord de la station spatiale internationale (ISS).

Mentionnons pour finir que l'influence de la relaxation des niveaux atomiques n'est pas toujours négligeable<sup>4</sup>. Les interactions entre l'atome et le champ laser en présence de processus de relaxation forcent l'atome vers un état stationnaire et exige donc un formalisme plus rigoureux qui inclut naturellement ces phénomènes. Le formalisme repose sur la représentation matricielle des équations de Bloch optiques analogues des équations de la Résonance Magnétique Nucléaire [37, 38, 39]. Nous développons cette représentation dans la partie qui va suivre.

## 1.4 Impulsions laser incluant relaxation et déplacement lumineux

Dans les jets thermiques, les phénomènes de relaxation sont négligeables et les franges de Ramsey ne sont pas brouillées. Cependant, en général, toute interaction peut, plus ou moins rapidement, détruire les cohérences (superpositions d'états). L'interaction d'une onde avec un ensemble d'atomes, comme une vapeur atomique dans une cellule ou un nuage d'atomes froids, doit alors être reconsidérée en incorporant tous les processus de relaxation. Les sources possibles de relaxation peuvent être collisionnelles (collisions avec un gaz tampon ou les parois de la cellule), radiatives (émission spontanée, lumière parasite, processus d'équilibre thermodynamique, etc...) ou encore instrumentales (gradients de champ magnétique résiduel, largeur spectrale du laser d'interrogation). L'approche par les équations de taux d'évolution des populations est formellement la plus simple. Toutefois, ces équations ne prennent pas en

<sup>4</sup>la probabilité d'émission spontanée augmente comme l'inverse du cube de la longueur d'onde optique

compte l'évolution temporelle des cohérences optiques qui n'ont pas atteint leur valeur stationnaire si leur temps de relaxation est plus long que le temps d'interaction. Les équations de Bloch optiques sont, de ce point de vue, beaucoup plus complètes. Elles introduisent, de manière phénoménologique, les relaxations du milieu atomique. On présente donc maintenant le modèle de la matrice densité qui établit un ensemble d'équations dites de Bloch optiques qui décrit l'interaction d'une onde laser avec un système à 2 niveaux atomiques en présence de relaxation.

### 1.4.1 Equations de Bloch optiques

Cette approche par le formalisme de la matrice densité a été développée par Bloch et Bloembergen en résonance magnétique nucléaire à la fin des années 1940 [37, 38] puis par J.P Barrat et C.Cohen-Tannoudji sur les vapeurs atomiques [40]. Il est souvent nécessaire de décrire non pas un seul atome mais un ensemble d'atomes ayant chacun leur propre fonction d'onde. La matrice densité est parfaitement adaptée pour prendre en compte de telles situations où il convient de moyenniser toutes les fonctions d'onde sur l'ensemble des atomes (mélange statistique d'états). Les expériences de physique atomique mettent en jeu un grand nombre d'atomes qui sont soumis à des effets collectifs (collisions entre atomes ou contre les parois d'une cellule, temps de transit des atomes à travers un faisceau laser, durée de vie limitée des cohérences atomiques, etc...). Le traitement de ces processus de relaxation implique l'utilisation de l'opérateur densité qui décrit le champ électromagnétique extérieur comme un réservoir auquel on ajoute de manière "ad hoc" les processus de relaxation. C'est ce que l'on nomme l'approximation des vitesses de variations indépendantes [41, 42]. Il en résulte que les résonances atomiques présentent une largeur à mi-hauteur fondamentalement limitée par les processus de collisions et non plus par la transformée de Fourier de l'impulsion [43]. Nous présentons ici ce formalisme décrivant un système à 2 niveaux d'énergie en présence de relaxation, puis nous établissons la solution d'une impulsion de Rabi en tenant compte des processus de relaxation qui affectent les cohérences et les populations. Lorsque ces processus sont négligés, on retrouve l'expression des oscillations de Rabi déduites de l'évolution hamiltonienne de la fonction d'onde (**Voir annexe A**).

Les équations de Bloch optiques permettent de traiter la plupart des processus extérieurs qui entraînent une relaxation du dipôle atomique en moyennant toutes les variables physiques sur l'ensemble de la vapeur atomique. On considère pour commencer un système à 2 niveaux d'énergie  $|1\rangle, |2\rangle$  soumis à deux interactions électromagnétiques (optique ou micro-onde) séparées temporellement (Fig. 1.4), situation réalisée en pratique dans un milieu dilué comme une vapeur. La relaxation du niveau excité par émission spontanée se note  $\Gamma$ . On introduit la différence de population  $\rho_{22} - \rho_{11}$  et sa relaxation  $2\xi$ , les cohérences optiques  $\rho_{12}, \rho_{21}$  avec une relaxation  $\gamma_c$ . L'opérateur densité s'écrit :

$$\rho = \sum_{i,j} \rho_{i,j} |i\rangle \langle j| \quad (1.10)$$

Si l'on suppose ici la conservation de la population, on peut toujours écrire pour un système fermé :

$$Trace(\rho) = \sum_i \rho_{i,i} = 1 \quad (1.11)$$

Lorsque il n'y a pas de conservation de la population, on parle alors de système ouvert. D'une manière générale, les populations sont données par  $\langle i|\rho|i\rangle$ . Les éléments  $\langle i|\rho|j\rangle$  sont

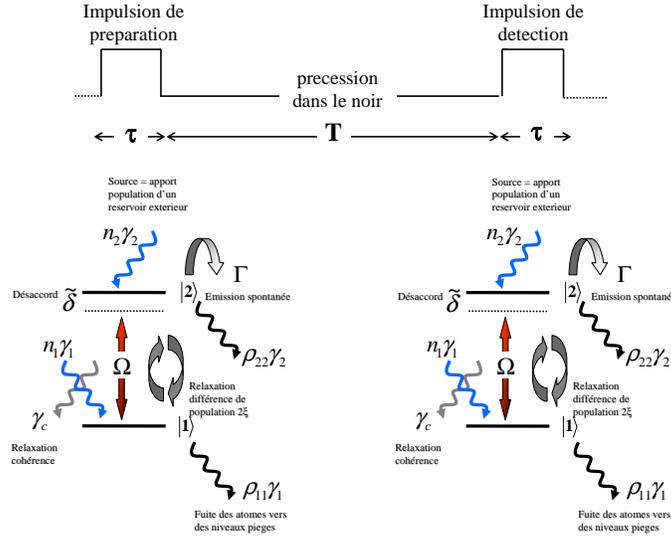


FIG. 1.4 – *Sequence de Ramsey incluant relaxation et déplacement lumineux.*  $\Gamma$  caractérise l'émission spontanée,  $\gamma_c$  la relaxation de la cohérence et  $\tilde{\delta}$  le désaccord entre la fréquence excitatrice et la fréquence de la transition incluant les déplacements lumineux.

appelées les cohérences et représentent les superpositions d'états sous l'effet du couplage  $\Omega$ . L'évolution dynamique de l'opérateur densité est gouvernée par la forme de l'équation pilote [42] :

$$i \frac{d}{dt} \rho_{i,j} = \frac{1}{i\hbar} \sum_k [H_{i,k} \rho_{k,j} - \rho_{i,k} H_{k,j}^\dagger] + R \quad (1.12)$$

L'hamiltonien d'interaction indépendant du temps se note dans la représentation des ondes tournantes (**Voir annexe A**) :

$$H = \hbar \begin{pmatrix} 0 & \Omega \\ \Omega & \tilde{\delta} \end{pmatrix} \quad (1.13)$$

Les déplacements lumineux  $\eta_1, \eta_2$  des niveaux d'énergie  $|1\rangle$  et  $|2\rangle$  sont introduits dans la variable  $\tilde{\delta}$  de telle sorte que :

$$\tilde{\delta} = \delta + \eta_2 - \eta_1 \quad (1.14)$$

La matrice des relaxations  $R$  s'écrit :

$$R = \begin{pmatrix} \Gamma \rho_{22} - \gamma_1 \rho_{11} - \xi(\rho_{11} - \rho_{22}) & -\gamma_c \rho_{12} \\ -\gamma_c \rho_{21} & -\Gamma \rho_{22} - \gamma_2 \rho_{22} - \xi(\rho_{22} - \rho_{11}) \end{pmatrix} \quad (1.15)$$

L'opérateur  $R$  décrit les processus de relaxation de l'atome qui incluent l'émission spontanée  $\Gamma$ , les taux de relaxation de la cohérence  $\gamma_c$  et de la relaxation de la différence de population

2 $\xi$ . Les nombres d'atomes  $n_1$  et  $n_2$  alimentent le système à deux niveaux avec les taux  $\gamma_1$  et  $\gamma_2$ . En absence de champ excitateur, les populations peuvent éventuellement retourner vers un équilibre statistique (termes  $\gamma_i n_i = \gamma_i \rho_{ii}$ ). L'ensemble de tous ces processus est représenté sur la figure Fig. 1.4. Les équations précédentes sont appelées équations de Bloch optiques en raison de leur identité formelle avec les équations introduites par Félix Bloch en résonance magnétique pour décrire l'évolution du moment magnétique de spin 1/2 [37, 44]. Les équations se notent pour le système considéré [42, 45] :

$$\begin{cases} \frac{d\rho_{11}}{dt} = -2\Omega \text{Im}\{\rho_{12}\} + \Gamma\rho_{22} + \xi(\rho_{22} - \rho_{11}) + n_1\gamma_1 - \gamma_1\rho_{11} \\ \frac{d\rho_{22}}{dt} = 2\Omega \text{Im}\{\rho_{12}\} - \Gamma\rho_{22} - \xi(\rho_{22} - \rho_{11}) + n_2\gamma_2 - \gamma_2\rho_{22} \\ \frac{d\rho_{12}}{dt} = -(\gamma_c + i\tilde{\delta})\rho_{12} + i\Omega(\rho_{11} - \rho_{22}) \end{cases} \quad (1.16)$$

On rappelle les relations de conjugaison :

$$\begin{aligned} \rho_{ij} &= \rho_{ji}^* \\ \text{Re}\{\rho_{ij}\} &= \frac{1}{2}(\rho_{ij} + \rho_{ji}) \\ \text{Im}\{\rho_{ij}\} &= \frac{1}{2i}(\rho_{ij} - \rho_{ji}) \end{aligned} \quad (1.17)$$

L'ensemble d'équations Eq. 1.16 décrit l'évolution temporelle des populations  $\rho_{11}, \rho_{22}$  et de la cohérence associée  $\rho_{12}$  vers leur valeur stationnaire<sup>5</sup>. Le système ouvert correspond à une fuite des atomes vers des niveaux extérieurs au système considéré. Cela entraîne en terme la non conservation de la population atomique après plusieurs cycles d'interactions avec le laser. Le système en équilibre correspond à un phénomène d'apport de populations d'un réservoir extérieur et à une fuite de ces mêmes atomes en dehors du système. Enfin, le système fermé est le système que l'on rencontre le plus souvent où l'ensemble de la population atomique est conservée au cours de l'interaction avec le champ laser. Afin de comprendre l'effet perturbateur introduit par les processus de relaxation, on étudie la situation du modèle fermé en régime stationnaire. Ensuite, le régime transitoire est analysé à l'aide du modèle du vecteur de Bloch [46].

### 1.4.2 Solutions stationnaires : populations et cohérences

On commence par déterminer les solutions stationnaires de la différence de population  $\rho_{22}^{stat} - \rho_{11}^{stat}$  et des parties réelle  $\text{Re}\{\rho_{12}\}^{stat}$  et imaginaire  $\text{Im}\{\rho_{12}\}^{stat}$  de la cohérence. On étudie le cas du régime stationnaire des équations 1.16.

- $\triangleright$  **Le système est ouvert** ( $n_1 = n_2 = 0$ ). Il n'y a pas de solution stationnaire autre qu'une perte complète des atomes vers des niveaux extérieurs au système. Les fuites entraînent la non conservation du nombre d'atomes. Le modèle peut être décrit par le formalisme de la fonction d'onde.

<sup>5</sup>En RMN, la quantité  $\xi$  correspond à la relaxation longitudinale et  $\gamma_c$  à la relaxation transverse.

- ▷ **Le système est supposé fermé** ( $\rho_{11} + \rho_{22} = 1$  avec  $\gamma_1 = \gamma_2 = 0$ ). Ce cas est le plus fréquemment rencontré dans une vapeur atomique diluée. Ce système s'applique par exemple aux transitions cyclantes qui assurent un retour rapide des atomes sur le niveau fondamental par émission spontanée. La différence de population ainsi que les parties réelle et imaginaire des cohérences sont données par les expressions suivantes :

$$\begin{aligned}
 W^{stat} = \rho_{22}^{stat} - \rho_{11}^{stat} &= -\frac{\Gamma}{\Gamma + 2\xi} \frac{\gamma_c^2 + \tilde{\delta}^2}{\gamma_c^2 [1 + S_0] + \tilde{\delta}^2} \\
 Re\{\rho_{12}\}^{stat} &= \frac{\Gamma}{\Gamma + 2\xi} \frac{\Omega\delta}{\gamma_c^2 [1 + S_0] + \tilde{\delta}^2} \\
 Im\{\rho_{12}\}^{stat} &= \frac{\Gamma}{\Gamma + 2\xi} \frac{\gamma_c\Omega}{\gamma_c^2 [1 + S_0] + \tilde{\delta}^2}
 \end{aligned} \tag{1.18}$$

avec le paramètre de saturation :

$$S_0 = \frac{4\Omega^2}{(\Gamma + 2\xi)\gamma_c} \tag{1.19}$$

Pour  $\xi = 0$ , on retrouve les résultats de [42]. La largeur à mi-hauteur s'écrit :

$$\Delta\omega = 2\gamma_c \sqrt{1 + \frac{4\Omega^2}{(\Gamma + 2\xi)\gamma_c}} \tag{1.20}$$

Lorsque la fréquence de couplage est telle que  $\Omega^2 \ll \Gamma\gamma_c$ , on obtient dans le régime purement radiatif, en absence de toute autre élargissement collisionnel ( $\xi = 0$ ), la largeur naturelle de la transition soit :

$$\Delta\omega \approx 2\gamma_c = \Gamma \tag{1.21}$$

Lorsque le couplage est élevé  $\Omega^2 \gg \Gamma\gamma_c$ , la largeur à mi-hauteur est déterminée pour  $\xi = 0$  par l'expression :

$$\Delta\omega \approx 4\Omega \sqrt{\frac{\gamma_c}{\Gamma}} \tag{1.22}$$

Cet élargissement est dû au phénomène de saturation de la transition. L'atome ne peut absorber davantage de photons puisque la durée moyenne entre deux émissions induites devient plus petite que le temps de vie naturel  $1/\Gamma$  du niveau excité. Lorsque l'interaction de l'atome avec le champ électromagnétique n'est plus continue mais effectuée en régime impulsif, son évolution dynamique est gouvernée selon la durée de l'impulsion par le temps de vie  $1/\gamma_c$  de la cohérence induite entre les deux états énergétiques et l'instabilité radiative du niveau excité.

### 1.4.3 Régime transitoire et vecteur de Bloch

Pour étudier le régime transitoire, nous préférons maintenant adopter à la fois la théorie des matrices de Jaynes [39] qui permet de traiter un système à 2 niveaux sous l'effet de processus de relaxation et la représentation à l'aide du vecteur de Bloch. On introduit donc pour cela les changements de variables suivants sur la différence de population notée  $W(t)$ , la population totale  $S(t)$  et les parties réelles et imaginaires de la cohérence  $\rho_{12}(t)$  :

$$\rho_{12} = \frac{1}{2}(U(t) - iV(t)) \quad \rho_{22} - \rho_{11} = W(t) \quad \rho_{22} + \rho_{11} = S(t) \tag{1.23}$$

La cohérence, c'est à dire la superposition des états d'horloge après interaction avec le champ électromagnétique est définie par ces parties réelle  $Re\{\rho_{12}(t)\} = U(t)/2$  et imaginaire  $Im\{\rho_{12}(t)\} = -V(t)/2$ . L'évolution temporelle de ces composantes s'écrit dans la nouvelle base :

$$\begin{cases} \frac{dU}{dt} = \tilde{\delta}V - \gamma_c U \\ \frac{dV}{dt} = -\tilde{\delta}U - 2\Omega W - \gamma_c V \\ \frac{dW}{dt} = 2\Omega V - \left( \Gamma + 2\xi + \frac{1}{2}(\gamma_1 + \gamma_2) \right) W + \frac{1}{2}(\gamma_1 - \gamma_2)S + n_2\gamma_2 - n_1\gamma_1 - \Gamma S \\ \frac{dS}{dt} = n_1\gamma_1 + n_2\gamma_2 - \frac{1}{2}(\gamma_1 + \gamma_2)S + \frac{1}{2}(\gamma_1 - \gamma_2)W \end{cases} \quad (1.24)$$

Bien qu'il soit possible de résoudre l'ensemble des équations 1.24, nous nous limiterons dorénavant au cas  $\gamma_1 = \gamma_2 = 0$ . La dernière équation est découplée des 3 autres et entraîne que  $S(t) = \text{constante} = 1$ . Dans ce cas, on se place dans la représentation d'un système fermé qui conserve l'intégralité des populations. La représentation vectorielle (vecteur de Bloch ou spin fictif) [37, 47] est directement adaptée aux développements qui vont suivre. Le vecteur de Bloch  $\vec{M}$  est décrit par les trois composantes :

$$M(t) = U(t)\hat{e}_1 + V(t)\hat{e}_2 + W(t)\hat{e}_3 \quad (1.25)$$

Les éléments  $U^{stat}$ ,  $V^{stat}$ ,  $W^{stat}$  sont les solutions stationnaires du vecteur  $\vec{M}^{stat}$ . En suivant l'approche [39] et [45], les équations de Bloch peuvent alors s'exprimer sous la forme d'un produit d'opérateurs agissant sur une matrice  $\mathbb{M}$  comprenant les composantes du vecteur de Bloch entre les instants  $t$  et  $t_k$  (**voir annexe B**) :

$$M(t) - M^{stat} = \exp[R \cdot (t - t_k)] \cdot (M(t_k) - M^{stat}) \quad (1.26)$$

avec la matrice de rotation  $\mathbb{R}$  donnée par les composantes du système 1.24 :

$$R = \begin{pmatrix} -\gamma_c & \tilde{\delta} & 0 \\ -\tilde{\delta} & -\gamma_c & -2\Omega \\ 0 & 2\Omega & -(\Gamma + 2\xi) \end{pmatrix} \quad (1.27)$$

On détermine maintenant l'ensemble des solutions transitoires du vecteur de Bloch.

### Régime transitoire sans relaxation

Si on élimine les phénomènes de relaxation en imposant  $\Gamma = \gamma_c = \xi = 0$ , l'évolution temporelle du vecteur de Bloch peut se décrire de manière géométrique [48, 45] :

$$\dot{M}(t) = \vec{Q} \times \vec{M}(t) \quad (1.28)$$

avec le vecteur  $\vec{Q} = 2\Omega \cdot \hat{e}_1 - \tilde{\delta} \cdot \hat{e}_3$ . Cette représentation permet de visualiser directement le vecteur de Bloch dans un repère à 3 axes définis par la base  $\hat{e}_1, \hat{e}_2, \hat{e}_3$ . Le vecteur  $\vec{M}(t)$  effectue un mouvement de précession autour de l'axe de rotation  $\vec{Q}$ . Le traitement complet permet de déterminer la matrice de rotation du vecteur de Bloch [48] en fonction des conditions

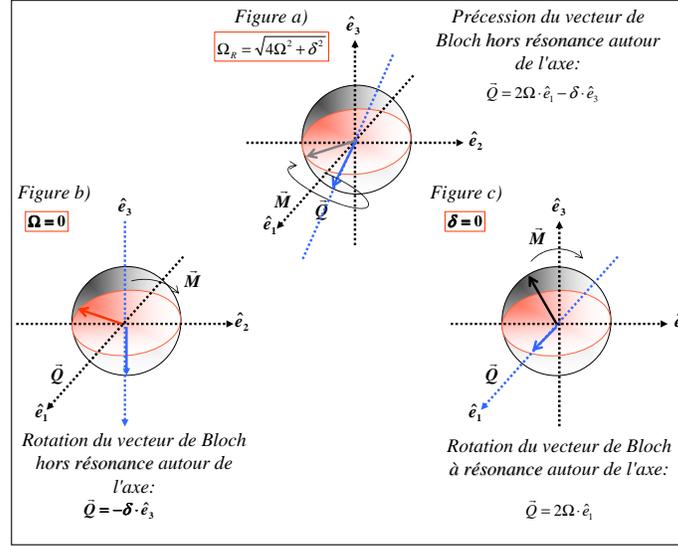


FIG. 1.5 – *Représentation du vecteur de Bloch.* Les différents axes de rotation ( $\hat{e}_1, \hat{e}_2, \hat{e}_3$ ) permettent de visualiser la trajectoire suivie par le vecteur au cours de son évolution temporelle.

initiales du vecteur  $\vec{M}(0) = U(0)\hat{e}_1 + V(0)\hat{e}_2 + W(0)\hat{e}_3$ . Les composantes exactes de ce vecteur ont pour expression [48, 45] lorsque  $t_k = 0$  (**voir annexe B**) :

$$M(t) = \exp[R \cdot t] \cdot M(0) \quad (1.29)$$

$$M(t) = \begin{pmatrix} \frac{4\Omega^2 + \tilde{\delta}^2 \cos(\Omega_R t)}{\Omega_R^2} & \frac{\tilde{\delta}}{\Omega_R} \sin(\Omega_R t) & \frac{2\tilde{\delta}\Omega}{\Omega_R^2} (1 - \cos(\Omega_R t)) \\ -\frac{\tilde{\delta}}{\Omega_R} \sin(\Omega_R t) & \cos(\Omega_R t) & \frac{2\Omega}{\Omega_R} \sin(\Omega_R t) \\ \frac{2\tilde{\delta}\Omega}{\Omega_R^2} (1 - \cos(\Omega_R t)) & -\frac{2\Omega}{\Omega_R} \sin(\Omega_R t) & \frac{\tilde{\delta}^2 + 4\Omega^2 \cos(\Omega_R t)}{\Omega_R^2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} U(0) \\ V(0) \\ W(0) \end{pmatrix} \quad (1.30)$$

avec  $\Omega_R = \sqrt{\tilde{\delta}^2 + 4\Omega^2}$ .

En absence de relaxation, nous avons établi une solution analytique de l'évolution temporelle du vecteur en fonction de la durée des impulsions appliquées sur la vapeur atomique. Cette représentation permet de contrôler la distributions des populations sur les niveaux d'horloge en appliquant des impulsions de champ électromagnétique de durée telle que  $2\Omega \cdot \tau = \frac{\pi}{2}$  ou  $2\Omega \cdot \tau = \pi$ . On peut par exemple réaliser des superpositions d'états, c'est à dire des répartitions cohérentes des populations atomiques entre ces mêmes niveaux ou encore un transfert complet de population d'un niveau à un autre.

On peut déterminer la population du niveau excité, variable habituellement mesurée par fluorescence dans les expériences de spectroscopie atomique. A partir de la conservation et

de la différence des populations, nous avons :

$$\begin{aligned}\rho_{11}(t) + \rho_{22}(t) &= 1 \\ \rho_{22}(t) - \rho_{11}(t) &= W(t)\end{aligned}\quad (1.31)$$

En supposant que les atomes se trouvent initialement dans l'état  $|1\rangle$ , soit  $W(0) = -1$  et  $U(0) = V(0) = 0$ , on obtient à partir de l'équation Eq. 1.30 l'expression de la population excitée :

$$\rho_{22}(t) = \frac{4\Omega^2}{\Omega_R^2} \sin^2(\Omega_R t/2) = \frac{2\Omega^2}{\Omega_R^2} (1 - \cos[\Omega_R t]) \quad (1.32)$$

On remarque bien à résonance  $\delta = \eta_1 - \eta_2$  qu'il existe un transfert complet de population<sup>6</sup> lorsque  $2\Omega \tau = \pi$  et une distribution cohérente entre les niveaux pour  $2\Omega \tau = \pi/2$ . Signalons que nous avons effectué les calculs dans l'approximation séculaire (**Voir annexe A**). Un calcul plus détaillé des effets de la pulsation de l'onde excitatrice sur la position en énergie des niveaux atomiques, comme le déplacement de Bloch-Siegert, peut-être trouvé dans les références [49, 50, 51, 52, 53].

### Régime transitoire avec relaxation : impulsion de Rabi généralisée

Nous reprenons maintenant les résultats précédents pour étudier le cas d'une impulsion appliquée en présence de relaxation. Une rapide étude montre que les phénomènes de relaxation modifient plus ou moins rapidement la distribution atomique réalisée après des impulsions dites  $\pi$  ou  $\pi/2$  et aussi la durée de vie des superpositions d'états. La prise en compte de la relaxation est étudié en détail dans **l'annexe B**. Toutefois, les expressions analytiques bien qu'exactes sont difficiles à manipuler. On peut alors obtenir des expressions formellement plus simples à partir de l'ensemble des équations Eq. 1.24. L'ensemble de ces équations présente, sur la différence de population  $W(t)$ , une forme polynomiale caractéristique de degré 3 :

$$\begin{aligned}\frac{d^3}{dt^3} W(t) + (\Gamma + 2\gamma_c) \frac{d^2}{dt^2} W(t) + (2\gamma_c \Gamma + 4\Omega^2 + \gamma_c^2 + \tilde{\delta}^2) \frac{d}{dt} W(t) \\ + (\gamma_c^2 \Gamma + 4\Omega^2 \gamma_c + \Gamma \tilde{\delta}^2) W(t) + (\Gamma \gamma_c^2 + \Gamma \tilde{\delta}^2) = 0\end{aligned}\quad (1.33)$$

Les conditions initiales sont toujours ici définies par  $W(0) = -1$  et en supposant ici qu'il n'y a pas de cohérence initiale  $U(0) = V(0) = 0$ . La solution complète de  $\rho_{22}(t)$  est alors de la forme [54] :

$$\rho_{22}(t) = \frac{1}{2} \left( 1 + (-1 - W^{stat})(e^{t/\tau_2} [A \cos(\Omega_R t) + B \sin(\Omega_R t)] + (1 - A)e^{t/\tau_1}) + W^{stat} \right) \quad (1.34)$$

Les taux d'amortissement  $\tau_1^{-1}, \tau_2^{-1}$  et la pulsation de Rabi généralisée  $\Omega_R$  sont déduites à partir des équations Eq. B.22 et Eq. B.23 de **l'annexe B**. Les coefficients de la partie

<sup>6</sup>Remarquons que lorsque nous avons  $W(0) = 0$ , les composantes  $U(0), V(0)$  ne sont pas forcément nulles puisqu'il peut exister une cohérence entre les niveaux d'horloge à  $t=0$

oscillante s'écrivent :

$$A = \frac{\frac{-4\Omega^2}{-1-W^{stat}} - \tau_1^{-1}(-\tau_1^{-1} + 2\tau_2^{-1})}{\Omega_R^2 - (\tau_2^{-1})^2 + (\tau_1^{-1})^2 - 2\tau_1^{-1}(\tau_1^{-1} - \tau_2^{-1})} \quad (1.35)$$

$$B = \frac{1}{\Omega_R}(A(\tau_1^{-1} - \tau_2^{-1}) - \tau_1^{-1})$$

La pulsation de Rabi généralisée s'écrit :

$$\Omega_R = \frac{\sqrt{3}(-a_1^2 - 3a_2)}{3 \cdot 2^{1/3} X^{1/3}} + \frac{1}{6 \cdot 2^{1/3}} \sqrt{3} X^{1/3} \quad (1.36)$$

Les taux d'amortissement  $\tau_1^{-1}$  et  $\tau_2^{-1}$  se notent :

$$\tau_1^{-1} = -\frac{1}{3}(a_1) - \frac{2^{1/3}(-a_1^2 - 3a_2)}{3 \cdot 2^{1/3} X^{1/3}} + \frac{1}{3 \cdot 2^{1/3}} X^{1/3} \quad (1.37)$$

$$\tau_2^{-1} = -\frac{1}{3}(a_1) + \frac{(-a_1^2 - 3a_2)}{3 \cdot 2^{1/3} X^{1/3}} - \frac{1}{6 \cdot 2^{1/3}} X^{1/3}$$

avec

$$X = -2a_1^3 - 9a_1a_2 - 27a_3 + (4(-a_1^2 - 3a_2)^3 + (-2a_1^3 - 9a_1a_2 - 27a_3)^2)^{1/2} \quad (1.38)$$

$$a_1 = \Gamma + 2\gamma_c \quad (1.39)$$

$$a_2 = -(\tilde{\delta}^2 + 4\Omega^2 + 2\Gamma\gamma_c + \gamma_c^2) \quad (1.40)$$

$$a_3 = \Gamma\tilde{\delta}^2 + 4\gamma_c\Omega^2 + \Gamma\gamma_c^2 \quad (1.41)$$

On peut déterminer l'influence de la relaxation sur la fréquence effective  $\Omega_R$  de l'impulsion en modifiant l'expression précédente à partir des formules trigonométriques d'Euler. Après calcul, on trouve finalement la forme générale de l'impulsion de Rabi qui inclut désormais les temps caractéristiques d'amortissement de la partie oscillante vers sa valeur stationnaire :

$$\rho_{22}(t) = \left( \frac{1 + W^{stat}}{2} \right) \left( 1 - (1 - A)e^{t/\tau_1} \right) \left[ 1 - \frac{\sqrt{A^2 + B^2}}{2(1 - (1 - A)e^{t/\tau_1})} e^{t/\tau_2} \cos(\Omega_R t - \Phi) \right] \quad (1.42)$$

avec l'expression de la phase :

$$\Phi = \arctan \left[ \frac{B}{A} \right] \quad (1.43)$$

L'équation Eq. 1.42 généralise le calcul des références [43, 54] en introduisant une relaxation de la cohérence  $\gamma_c$  différente de la relaxation  $\Gamma$  du niveau excité. Lorsque nous avons calculé la probabilité pour un atome isolé d'être dans l'état d'énergie supérieur  $|2\rangle$ , nous avons trouvé une fonction sinusoidale du temps (voir Eq. 1.32). Mais le saut quantique par émission spontanée interrompt brusquement cette oscillation en forçant l'atome vers l'état fondamental. D'après le principe de superposition déduit de l'équation de Schrödinger, la mécanique quantique stipule qu'une solution de cette équation peut être composée de n'importe quelle combinaison linéaire des états possibles, formant un ensemble d'évènements

observables, par exemple le fameux "chat de Schrödinger". Pourtant, lors d'une mesure, cette superposition, appelée paquet d'onde, va soudain se réduire pour ne laisser qu'une seule (et unique) solution : ce phénomène est connu sous le nom de réduction du paquet d'onde<sup>7</sup>. La réduction du paquet d'onde rend possible l'observation du photon émis par émission spontanée qui détermine l'état atomique. En admettant que ce processus de désexcitation est instantané devant la fréquence propre du système atomique [42], on peut moyenniser tous ces sauts quantiques par émission spontanée sur l'ensemble des atomes et observer l'amortissement collective des oscillations quantiques. Toutefois, bien que l'on observe les solutions stationnaires Eq. 1.18 après un temps d'amortissement de l'ordre de quelques  $\tau_1$  ou  $\tau_2$ , chaque atome continue de subir individuellement l'oscillation de Rabi [43]. Dans un cas purement radiatif, si l'on calcule la probabilité moyenne d'émission radiative par unité de temps du niveau excité et à résonance, on trouve que la relaxation  $\gamma_c$  de la cohérence vaut la moitié de la relaxation par émission spontanée soit  $\gamma_c = \Gamma/2$ . De manière plus intuitive, la cohérence mélange le taux de relaxation  $\Gamma$  du niveau excité  $|2\rangle$  avec celui du niveau fondamental  $|1\rangle$  supposé de durée de vie infini. Nous poserons désormais que le temps de relaxation  $\tau_1$  caractérise le temps nécessaire pour établir une distribution stationnaire des atomes entre les deux niveaux et que le temps de relaxation  $\tau_2$  est responsable de la durée de vie caractéristique de la superposition d'états quantiques.

## 1.5 La séquence de Ramsey

La séquence imaginée par Norman Ramsey permet d'affiner la largeur des résonances atomiques en séparant l'impulsion de Rabi en deux impulsions de durée  $\tau$  très petites devant le temps  $T$  d'interrogation (ou d'évolution libre) de la cohérence atomique. La méthode laisse évoluer la cohérence en absence de champ électromagnétique le plus longtemps possible afin de réduire la perturbation induite par le couplage entre l'atome et l'onde excitatrice. Enfin, le désaccord  $\tilde{\delta}$  entre la pulsation de cette onde excitatrice et la pulsation de la transition atomique entraîne un déphasage entre les superpositions d'états réalisées à la fin de chaque impulsion. Le phénomène d'interférences se traduit par un ensemble de franges dont l'amplitude dépend du désaccord  $\tilde{\delta}$ . La période des oscillations dépend de la durée d'évolution dans le noir et s'écrit pour des impulsions égales  $t_1 = t_2 = \tau$  et courtes devant le temps  $T$   $\Delta\nu \sim 1/2T$ . Toutefois lorsque ces impulsions deviennent similaires à la durée  $T$ , une meilleure estimation de la largeur de la frange centrale est donnée par la formule  $\Delta\nu \sim 1/2T(1 + \frac{t_1+t_2}{2T})$ . On peut aussi généraliser le calcul lorsque les pulsations des champs électromagnétiques deviennent différentes entre la première et la seconde impulsion. Une telle étude est réalisée dans [55]. Si l'on inclut l'effet de recul et l'effet Doppler, le traitement quantique de la séquence de Ramsey appliquée sur des transitions optiques [56] est faite dans [57, 21].

<sup>7</sup>La physique quantique ne précise pas de quelle façon cette réduction peut être interprétée : certains prétendent que c'est l'observation qui va privilégier une possibilité particulière, d'autres (dont Albert Einstein) prétendent que la particule est, avant toute mesure, déjà dans l'état que l'on observera. Cette dernière hypothèse est en contradiction avec les preuves expérimentales

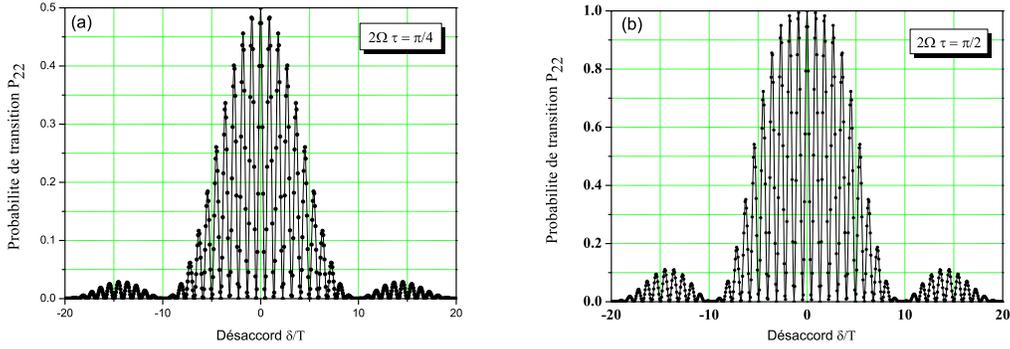


FIG. 1.6 – (a) Probabilité de Ramsey après 2 impulsions  $2\Omega\tau = \pi/4$ . Les atomes sont portés dans une superposition cohérente des états d’horloge. (b) Probabilité de Ramsey après 2 impulsions  $2\Omega\tau = \pi/2$ . Il y a dans ce cas un transfert complet de population. On a choisi ici, en absence de relaxation et de déplacement lumineux, le temps d’évolution  $T$  est fixé par rapport à la durée de l’impulsion telle que  $T = 10 \tau$ . Conditions initiales  $c_1(0) = 1, c_2(0) = 0$  à partir du modèle de la fonction d’onde ou  $\Delta n(0) = -1$  à partir de la matrice densité.

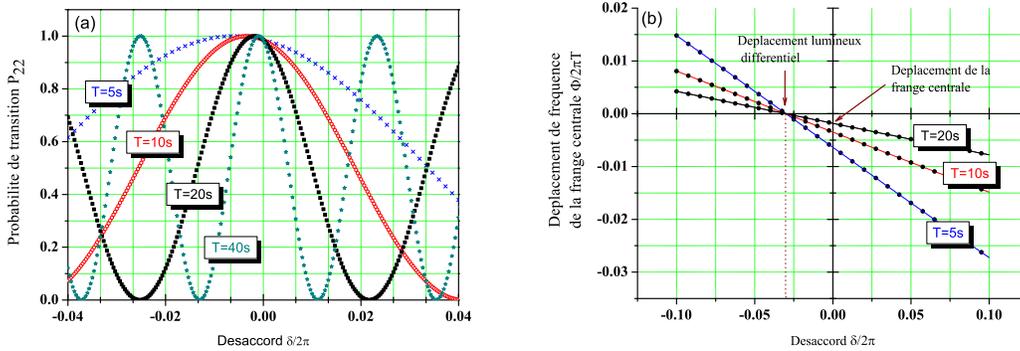


FIG. 1.7 – (a) Mise en évidence du déplacement de fréquence de la frange centrale pour un déplacement lumineux arbitraire différentiel fixé par exemple à  $(\eta_2 - \eta_1)/2\pi = 0.03$  et différentes valeurs du temps d’interrogation  $T$ . (b) Déplacement de fréquence en fonction du désaccord  $\delta/2\pi$  comparé à la formule Eq. 1.48 (points  $\bullet$ ) et avec la formule complexe Eq.A.43 (courbe continue) de l’annexe A. Conditions initiales identiques aux paramètres de la figure Fig. 1.6.

### 1.5.1 Séquence de Ramsey incluant les déplacements lumineux

Le formalisme matriciel présente l'avantage de pouvoir être étendue à des séquences temporelles présentant plus d'une impulsion d'excitation. En absence de relaxation (pas de solution stationnaire), l'application de plusieurs impulsions conduit simplement à un produit matriciel du type :

$$M(t_0 + \sum_{i=1}^n t_i) = \prod_{i=1}^n \exp[R_n \cdot (t_n - t_{n-1})](M(t_0)) \quad (1.44)$$

Le calcul de la séquence de Ramsey (2 impulsions de durée différente  $t_1$  et  $t_2$  séparées par le temps  $T$ ) est directe puisqu'il suffit ici de multiplier, entre elles, les matrices d'interaction entre les instants  $[0, t_1]$  puis  $[t_1, t_1 + T]$  et enfin entre  $[t_1 + T, t_1 + t_2 + T]$ . On définit la matrice  $\exp[-R_n \cdot (t_n - t_{n-1})]$  à partir des composantes de l'équation Eq. 1.30. Au final, il suffit de multiplier les 3 matrices pour obtenir à la fois les cohérences et les populations des niveaux atomiques après l'application de la séquence de Ramsey :

$$M(t_1 + t_2 + T) = \exp[R \cdot t_2] \exp[R(\Omega = 0) \cdot T] \exp[R \cdot t_1] \cdot M(0) \quad (1.45)$$

avec  $\exp[R(\Omega = 0) \cdot T]$  la matrice d'évolution libre de la cohérence en absence de champ excitateur :

$$\exp[R(\Omega = 0) \cdot T] = e^{-\gamma_c T} \begin{pmatrix} \cos(\delta T) & \sin(\delta T) & 0 \\ -\sin(\delta T) & \cos(\delta T) & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (1.46)$$

Dans le cas ordinaire, la séquence d'interrogation de Ramsey [15] est réalisée avec des durées d'impulsions égales  $t_1 = t_2 = \tau$ . Cela conduit à une solution de la population  $\rho_{22}(2\tau, T)$  déterminée en imposant par exemple par des conditions initiales telles que  $W(0) = -1, U(0) = V(0) = 0$  :

$$\rho_{22}(2\tau, T) = 8 \frac{\Omega^2}{\Omega_R^2} \sin^2(\Omega_R \tau / 2) \left[ \cos^2(\Omega_R T / 2) + \frac{\tilde{\delta}^2}{\Omega_R^2} \sin^2(\Omega_R T / 2) \right] [1 + \cos(\delta T + 2\Phi(\tau))] \quad (1.47)$$

On peut remarquer que cette expression décrit une enveloppe modulée par un terme oscillant corrigé d'un terme de phase incluant maintenant les déplacements lumineux :

$$\Phi(\tau) = \arctan \left[ \frac{\tilde{\delta} \sin(\Omega_R \tau / 2)}{\Omega_R \cos(\Omega_R \tau / 2)} \right] \quad (1.48)$$

Ce résultat est identique à la formule de l'annexe A, paragraphe A.3 obtenue à l'aide du formalisme de la fonction d'onde complexe. La figure Fig. 1.6 reproduit le profil de résonance de Ramsey pour des impulsions de durée  $2\Omega\tau = \frac{\pi}{2}$  et  $2\Omega\tau = \pi$ . Lorsque la durée de l'impulsion est choisie pour porter les atomes dans une superposition d'états à résonance, la probabilité de transition est égale à 1/2 (voir Fig. 1.6(a)). Lorsque la durée est choisie pour optimiser le transfert, les populations sont inversées à résonance comme le montre la Fig. 1.6(b).

### 1.5.2 Séquence de Ramsey en présence de relaxation

Lorsque on tient compte des processus de relaxation, les solutions stationnaires doivent être incorporées dans la calcul des populations ou des cohérences. La séquence de Ramsey est définie par les 3 interactions successives de durée  $t_1 \equiv \tau$  et  $t_2 \equiv \tau_m$  séparée par un temps d'évolution libre  $T$  :

$$\begin{aligned} M(\tau) &= \exp[R \cdot \tau] \cdot (M(0) - M_\tau^{stat}) + M_\tau^{stat} \\ M(\tau, T) &= \exp[R(\Omega = 0) \cdot T] \cdot (M(\tau) - M_T^{stat}) + M_T^{stat} \\ M(\tau, T, \tau_m) &= \exp[R \cdot \tau_m] \cdot (M(\tau, T) - M_{\tau, T, \tau_m}^{stat}) + M_{\tau, T, \tau_m}^{stat} \end{aligned} \quad (1.49)$$

La matrice de rotation  $\exp[-R \cdot t]$  est définie maintenant dans l'**annexe B** par l'équation Eq. B.26. En recombinaison solutions stationnaires et conditions initiales  $M(0)$  en sachant que  $M_T^{stat} = 0$ , on obtient l'expression générale :

$$M(\tau, t_m, T) = \exp[R \cdot \tau_m] \left[ e^{-\gamma_c T} \begin{pmatrix} U(\tau)\cos(\delta T) + V(\tau)\sin(\delta T) \\ -U(\tau)\sin(\delta T) + V(\tau)\cos(\delta T) \\ W(\tau) \end{pmatrix} - M_{\tau, T, \tau_m}^{stat} \right] + M_{\tau, T, \tau_m}^{stat} \quad (1.50)$$

Cette expression est assez complexe à étudier. On peut toutefois déterminer, par exemple, l'expression des franges de Ramsey en présence de la seule relaxation  $\gamma_c$  de la cohérence. On suppose alors que l'on applique des impulsions de durée  $\tau$  très petites devant la constante de relaxation  $\gamma_c^{-1}$ . Les franges de Ramsey subissent une diminution de l'amplitude uniquement au cours du temps de libre évolution  $T$ . Le calcul est effectué dans la référence [43]. Il n'est pas intéressant d'augmenter le temps de libre évolution au delà de l'amortissement  $\gamma_c^{-1}$  car la perte de contraste fait perdre d'avantage la précision sur la mesure que le gain obtenu sur la largeur de la frange centrale. C'est la raison pour laquelle la plupart des horloges à ion unique appliquent de préférence une impulsion de Rabi et non la séquence de Ramsey. Le formalisme matriciel permet d'effectuer tous les calculs analytiques même en présence de relaxation si la fréquence de Rabi  $\Omega$ , où le désaccord  $\delta$  sont constants au cours du temps. Si cela n'est plus le cas, il faut avoir recours aux méthodes des références [58, 59, 60, 61]. Sur les figures Fig. 1.8(a)(b) et Fig. 1.9(a)(b), on compare les franges de Ramsey obtenues avec un taux de relaxation tel que  $\gamma_c = \Gamma/2$ . On constate que la conservation de la population n'est plus réalisée. Bien que le contraste des franges diminue en  $e^{-\gamma_c T}$ , le profil des franges n'est pas bien décrit par la fonction d'onde complexe de l'**annexe A**. La matrice densité reste l'outil le mieux adapté pour la description des profils de résonance en régime impulsionnel et continu.

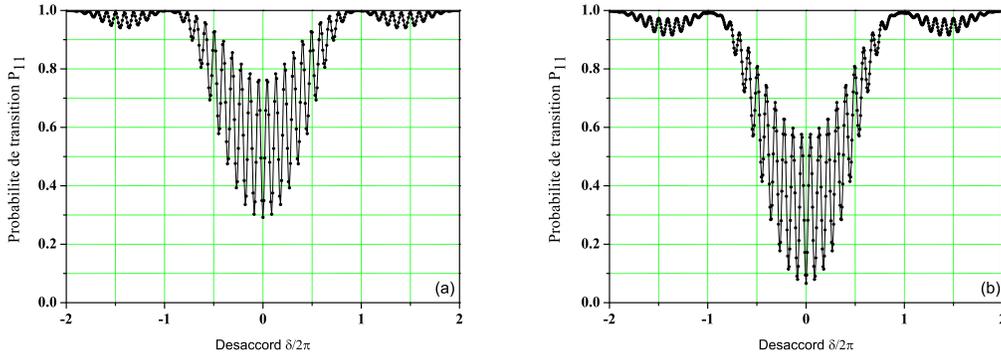


FIG. 1.8 – (a) *Probabilité de Ramsey  $\rho_{11}$  calculée à l'aide de la matrice densité.* (b) *Probabilité de Ramsey  $P_{11}$  calculée à l'aide de la fonction d'onde complexe.* On a choisi le taux de relaxation tel que  $\gamma_c = \Gamma/2$ . Les impulsions sont toujours supposées remplir la condition  $2\Omega\tau = \pi/2$  mais on néglige les déplacements lumineux. Conditions initiales identiques aux paramètres de la figure Fig. 1.6.

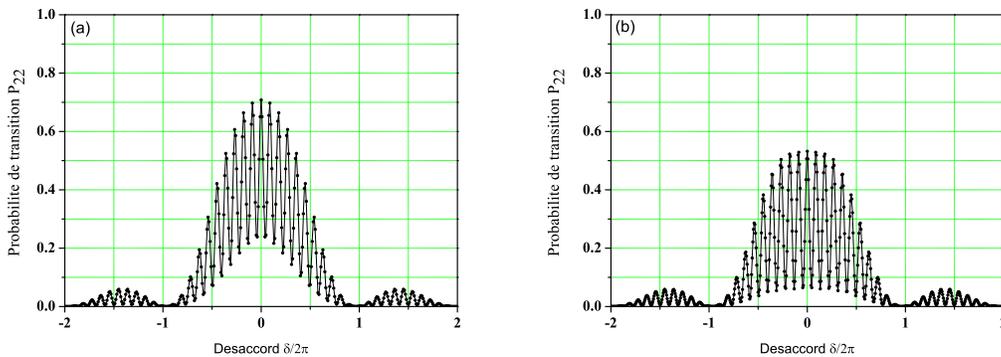


FIG. 1.9 – (a) *Probabilité de Ramsey  $\rho_{22}$  calculée à l'aide de la matrice densité.* (b) *Probabilité de Ramsey  $P_{22}$  calculée à l'aide de la fonction d'onde complexe.* On a choisi le taux de relaxation tel que  $\gamma_c = \Gamma/2$ . Les impulsions sont toujours supposées remplir la condition  $2\Omega\tau = \pi/2$  mais on néglige les déplacements lumineux. Conditions initiales identiques aux paramètres de la figure Fig. 1.6..

### 1.5.3 Séquence de Ramsey avec des impulsions de piégeage cohérent de population

La détection d'une transition d'horloge à l'aide de processus multiphotoniques n'est pas nouvelle [62, 63]. Bien que très sensible à l'alignement des vecteurs d'onde laser, la géométrie contra-propageante à deux fréquences optiques dans un schéma en cascade permet de s'affranchir de l'effet Doppler du premier ordre et de réaliser une configuration de type fontaine [64]. En revanche, lorsque deux faisceaux laser excitent un ensemble de 3 niveaux d'énergie disposés en  $\Lambda$ , un processus d'interférences quantiques se produit qui annihile toute fluorescence lorsque les fréquences optiques des lasers sont parfaitement accordées sur les transitions optiques<sup>8</sup>. Cette étroite fenêtre de variation rapide de l'absorption permet de réaliser un discriminateur de fréquence afin de pointer avec précision la référence de la transition d'horloge entre les deux niveaux de plus basse énergie [65, 66, 67]. La transparence induite trouve son origine dans un processus quantique appelée superposition d'états atomiques. La présence simultanée des deux champs laser réalisent en quelque sorte un mélange cohérent des états d'horloge pondérés par le rapport des intensités ou pulsations de Rabi qui excitent les transitions atomiques. Cette superposition d'état  $|\Psi_{NC}\rangle$  appelée couramment état noir est un état piège que les atomes atteignent par un effet de pompage optique crée par l'émission spontanée du niveau relais [68, 69] : le piégeage cohérent de population ou CPT en anglais. Après quelques cycles d'absorption émission, les atomes s'accumulent dans cet état découplé de l'interaction avec la lumière laser rendant l'atome transparent à la lumière excitatrice. Ce phénomène découvert en 1976 en Italie est maintenant activement appliquée dans plusieurs branches de la physique atomique comme l'information quantique, le refroidissement laser, le transfert cohérent de population par passage adiabatique rapide ou encore la spectroscopie de haute résolution. L'observation de cette résonance sub-naturelle (ou résonance noire) ne nécessite qu'une faible puissance laser et est accompagnée d'une cohérence à 2 photons ou cohérence Raman entre les deux états de la transition d'horloge. Le CPT permet de réaliser après un temps d'interaction suffisamment long, une répartition cohérente des atomes, c'est à dire une superposition d'états analogue à celle réalisée après une impulsion " $\pi/2$ ". Bien que cette technique soit habituellement appliquée en régime d'interaction continu entre les atomes et la lumière laser, on propose de remplacer les impulsions à un laser par des impulsions CPT séparées temporellement selon une technique analogue à celle de N. Ramsey. En fonction du désaccord entre les pulsations lasers excitatrices et la pulsation de la transition d'horloge, les atomes subissent périodiquement un transfert de population entre les deux états propres du système atome-photon que sont l'état noir  $|\Psi_{NC}\rangle$  et l'état radiatif  $|\Psi_+\rangle$  couplé au champ laser CPT. Les oscillations présentent une largeur à mi-hauteur de la frange centrale de l'ordre de  $1/2T$  indépendant des effets de saturation laser qui peuvent être observés lors d'une interrogation continue.

**Expérience du MIT (1982) :** La première observation expérimentale de franges Raman-Ramsey à l'aide de impulsions CPT remonte à 1982 et avait été réalisée au MIT sur un jet d'atomes de Sodium [70, 71]. Le jet, préparé par un processus de pompage optique dans l'un des deux niveaux d'horloges de l'état fondamental ( $|F = 1, m_f = 0\rangle$  ou  $|F = 2, m_f = 0\rangle$ ), passait successivement à travers deux zones d'interaction avec le CPT (sur la raie D1 du Sodium). Les franges étaient finalement détectées en intégrant la fluorescence du jet sur la

<sup>8</sup>lorsque les niveaux sont fortement non dégénérés, la configuration laser devient sélective en vitesse même en géométrie co-propageante

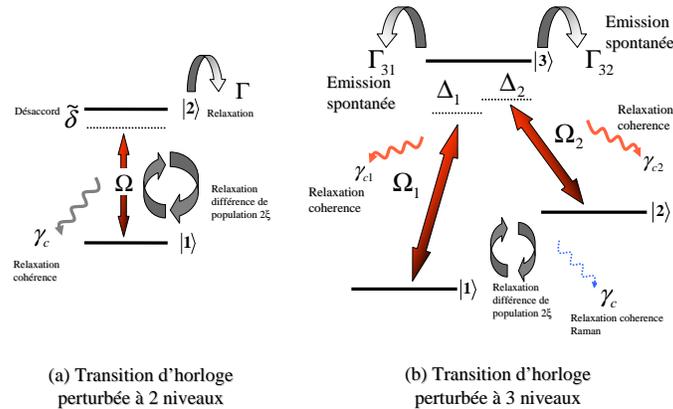


FIG. 1.10 – *Interrogation d'une transition d'horloge dans un système à 2 et 3 niveaux d'énergie.* Dans le premier cas (a), le processus de relaxation par émission spontanée détruit rapidement la cohérence entre états d'horloge. Dans le second cas de figure (b), cette cohérence est préservée à cause des interférences destructives produites entre chaque onde laser appliquée simultanément sur le système à 3 niveaux.

totalité de la seconde zone [70]. La lumière cohérente nécessaire à la création de la cohérence hyperfine entre les deux niveaux d'horloges était produite à partir d'un modulateur acousto-optique afin de générer deux bandes latérales et réaliser la paire de faisceaux CPT séparés de 1.772 GHz. Ces deux paires de faisceaux CPT excitaient le jet d'atomes en deux endroits séparés par une distance  $L$  et équipés de bobines de compensation du champ magnétique terrestre. Les transitions CPT étaient ensuite détectées par un tube photo multiplicateur tandis que la différence de fréquence Raman était balayée par un modulateur acousto-optique (Fig.1.11). L'efficacité de collection était estimée à 1 %. Les deux interactions CPT comprenaient chacune de  $16 \mu W$  à  $40 \mu W$  de puissance laser pour un diamètre de l'ordre de  $2.5 \text{ mm}$ . Le champ magnétique directeur appliqué était de  $300 \text{ mG}$  (environ  $30 \mu T$ ). Les franges Raman-Ramsey étaient détectées par fluorescence et la largeur à mi-hauteur de la frange centrale était en accord avec la loi  $1/2T$  à mi-hauteur comme le montre la figure Fig.1.11. Malheureusement, le temps de vol libre des atomes entre les deux impulsions limitait la stabilité de l'horloge [72] à environ  $10^{-11} \tau^{-1/2}$ . Les travaux réalisés par P.R. Hemmer et S. Shahriar [73, 74] contiennent la plupart des résultats décrivant le mode horloge.

Rappelons, par exemple, que la transparence induite électromagnétiquement (EIT) [65, 67] est une alternative intéressante pour l'interrogation d'une transition atomique interdite et le développement de nouveaux étalons de fréquence atomique [13]. Les alcalino-terreux présentent des transitions optiques de facteur de qualité  $Q = \nu_0/\Delta\nu$  jusqu'à  $10^5$  fois plus élevés que les étalons primaires micro-onde à  $9192631770 \text{ Hz}$ . Ces transitions atomiques

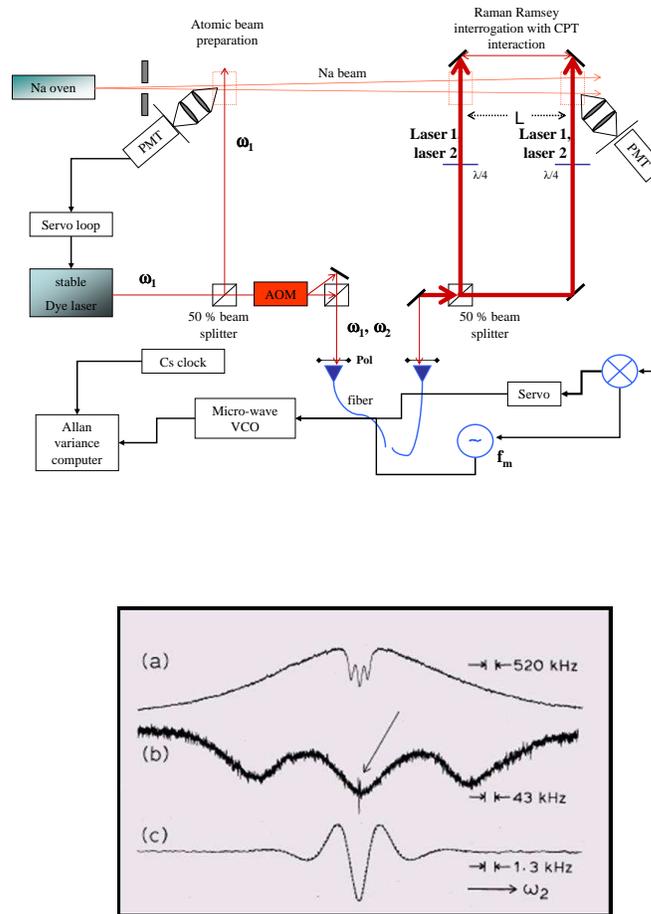


FIG. 1.11 – Schéma de l'horloge Raman du MIT à jet thermique de Sodium [71]. La longueur  $L$  entre les deux zones d'interaction CPT était comprise entre 15 et 30 cm. La frange centrale de la transition Zeeman quadratique avec le champ magnétique a une largeur de l'ordre de  $2\pi * 600$  Hz environ.

sont alors d'excellentes candidates pour améliorer la stabilité des horloges et les mesures de précision pour des tests de physique fondamentale et devraient dans un proche avenir surpasser les meilleures étalons de fréquence que sont les fontaines atomiques. Si la transition du fermion peut-être directement sondée à l'aide d'un laser ultra stable à 698 nm, elle est toutefois sensible aux effets de fluctuation de polarisation du laser réalisant le piège optique et peut donc constituer une limite à l'exactitude relative de l'horloge. Le boson  $^{88}\text{Sr}$  ne possède pas de spin nucléaire  $I=0$  et évite cette sensibilité à la fluctuation de la polarisa-

tion. Malheureusement, la transition atomique est elle-même inaccessible car complètement interdite du fait de l'absence de couplage hyperfin. Le groupe de Jun Ye au JILA a proposé la réalisation d'une horloge EIT comme sur la figure Fig. 1.12(a) dans un piège dipolaire éliminant l'effet Doppler et l'effet de recul [75] à partir de la transition d'horloge à 698 nm [11]. Au même moment, d'autres groupes (NIST et Washington) proposaient des schémas

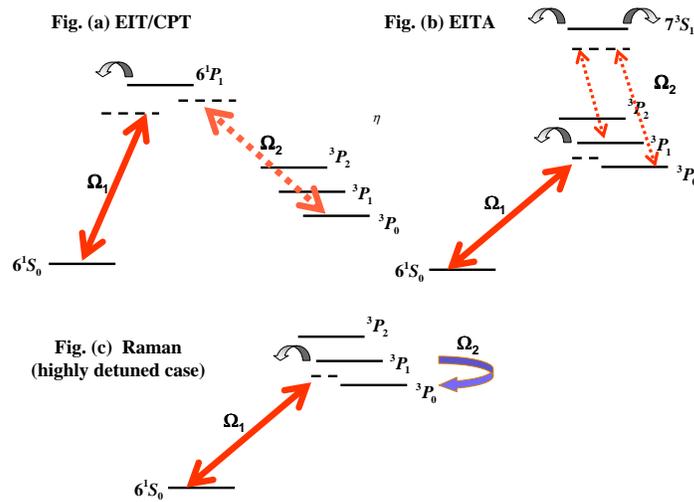


FIG. 1.12 – *Différentes configurations de couplage par laser pour réaliser l'excitation de la transition interdite  $^1S_0 \leftrightarrow ^3P_0$  du  $^{88}\text{Sr}$ . La configuration EIT du JILA [11] est présentée par la figure (a). La configuration de type EITA (Electromagnetically Induced Transparency and Absorption) du groupe de Washington à 4 niveaux atomiques [12] est donnée par la figure (b). La figure (c) est la configuration choisie par le NIST-Boulder [76] pour induire des transitions Raman à l'aide d'un laser et d'un champ magnétique statique.*

de couplage similaires à plusieurs niveaux atomiques dans l'Ytterbium [12, 76] et le NIST parvenait rapidement à la réalisation expérimentale d'une horloge Raman combinant un champ laser avec un champ magnétique statique [76, 77] (voir Fig. 1.12(c)). La configuration EIT/Raman retenue pour le boson  $^{88}\text{Sr}$  de la figure Fig. 1.12(a) nécessite des couplages de faible intensité afin de minimiser les déplacements lumineux induits par les niveaux d'énergie non résonants avec la transition atomique de référence. L'impossibilité d'utiliser des intensités de valeur suffisamment élevée afin d'exciter rapidement la transition  $^1S_0 \leftrightarrow ^3P_0$  sans déplacer fortement celle-ci est une sérieuse limitation vers la réalisation d'un tel prototype. En revanche, il faut ajouter que la configuration radiative des alcalino-terreux (Ca, Sr, Mg) et des terres rares (Yb) permet d'avoir une forte asymétrie par émission spontanée entre les 2 transitions optiques de couplage laser. Un important flux de population entre les états d'horloge peut alors être mesuré par la technique de renormalisation par projection quantique appliquée aux fontaines atomiques [23]. Un schéma d'impulsions EIT/Raman séparées temporellement combinant la détection des états d'horloge et la renormalisation dans un réseau

optique pourrait permettre d'établir rapidement la cohérence tout mesurant le transfert de population atomique et la phase imprimée par les couplages lasers au niveau d'exactitude de quelques  $10^{-17}$  [78]. Afin de démontrer l'efficacité du régime impulsif par rapport à une interrogation continue, nous avons remplacé le jet thermique par une vapeur atomique en confinant celle-ci dans un régime Lamb-Dicke à l'aide d'un gaz tampon [79, 80]. L'effet Doppler du premier ordre et l'effet de recul de l'atome sont pratiquement éliminés et le confinement permet une interrogation de durée  $T$  des atomes de plusieurs millisecondes. Toutefois l'ajout d'un gaz tampon élargit la transition optique à cause des multiples collisions que les atomes subissent avec le gaz rare et la durée de vie de la cohérence hyperfine est alors limitée [81, 82]. Dans le chapitre suivant, on montre qu'il est possible d'établir, sous certaines conditions, une étroite analogie entre un système à 2 niveaux avec relaxation et le système à 3 niveaux en schéma  $\Lambda$ . On présente donc dans les sections suivantes, le rôle fondamental du processus de pompage optique responsable du piégeage des atomes dans l'état noir. Les temps caractéristiques d'évolution de la différence de population (analogue à la relaxation longitudinale  $\tau_1^{-1}$ ) et d'amortissement de la cohérence Raman (analogue à la relaxation transverse  $\tau_2^{-1}$ ) déterminent l'évolution dynamique et le choix des durées d'optimisation de la séquence d'interrogation. Pour finir, en régime stationnaire et transitoire, le champ laser CPT a imprimé une phase sur les fonctions d'onde atomiques des niveaux d'horloge. Cette phase contient l'effet des déplacements lumineux induits par un éventuel désaccord avec le niveau intermédiaire mais aussi l'effet des niveaux externes non résonnants sur l'évolution temporelle et donc sur la transformée de Fourier du signal d'horloge.



## Chapitre 2

# Piégeage cohérent de population en régime transitoire et stationnaire

*‘-Slotnick, j’ai fait le calcul hier soir et je voudrais voir si j’ai les mêmes résultats que vous[...] -Hier soir, dites vous ? Mais il m’a fallu six mois !’*

*Anecdote sur Richard Feynman.*

### 2.1 Introduction

En 1976, un groupe de recherche en Italie à Pise dirigé par A. Gozzini étudiait les résonances Zeeman dans un gaz de Sodium à l’aide d’un laser multimode [1]. Les résonances étaient observées par l’augmentation de la fluorescence ou la diminution de la transmission optique à l’aide d’un gradient de champ magnétique appliqué le long d’une cellule de vapeur de Sodium. Ils détectèrent de brusques disparitions de la fluorescence par intervalle régulier qui apparaissaient comme des raies noires dans une zone de fluorescence brillante. Ils constatèrent ainsi que ces *résonances noires* ne se produisaient qu’aux endroits où la fréquence entre deux modes du laser était égale à l’écart hyperfin dans l’état fondamental du Sodium. Depuis sa découverte, le phénomène de résonance noire (ou de piégeage cohérent de population) est à l’origine de nombreuses expériences en optique quantique notamment pour le refroidissement laser par VSCPT (Velocity selective Coherent Population Trapping) [83, 84, 85] et le laser sans inversion de population [86, 87], la transparence induite électromagnétiquement [5] et le stockage de la lumière dans un condensat de Bose-Einstein [88] ou une vapeur atomique [89, 90], pour la réalisation de magnétomètres très sensibles [91] et les étalons atomiques de fréquence [92, 13, 9, 66], enfin pour la méthode du transfert adiabatique de population (STIRAP) [93, 94, 95] (Voir pour toutes ces expériences l’excellente revue de Ennio Arimondo [7] et les références [10, 96, 97]).

Nous montrons, dans ce chapitre, que le système à trois niveaux atomiques couplés par deux lasers peut se décrire comme un système à seulement 2 niveaux excité par un champ laser effectif. Ce chapitre se décompose en 3 grandes parties : 1- décrire le phénomène de piégeage cohérent de population dans la base des atomes habillés  $\{|\Psi_+\rangle, |\Psi_{NC}\rangle\}$ , 2- étudier le régime stationnaire et transitoire de la résonance CPT à partir d'un modèle adiabatique de la matrice densité à 2 niveaux effectif. 3- appliquer cette même approche adiabatique dans la base atomique  $\{|1\rangle, |2\rangle, |3\rangle\}$  pour définir un système effectif à 2 niveaux et d'en étudier les solutions stationnaires incluant les relaxations de toutes les cohérences. Rappelons que les résonances noires ont fait l'objet de nombreuses études théoriques depuis leur découverte en 1976 [1]. Les travaux de Brewer [98] repris par Orriols [68] établissent plus particulièrement les solutions exactes d'un système à 3 niveaux couplés à 2 champs électromagnétiques. Ces configurations résonnantes d'excitation à 2 photons sur un système à 3 niveaux peuvent être en étagère  $\Xi$  [99, 100], en  $\lambda$  [68, 98, 101] ou en  $V$ . De nombreux travaux traitent ces différentes configurations de manière globale [102, 103]. Devant la variété des solutions analytiques proposées, nous avons choisi de reprendre les calculs des références [98, 68] sur le système  $\lambda$ . Les solutions analytiques exactes présentées dans ce chapitre mettent en évidence le déplacement de fréquence provoqué par la présence du terme de relaxation de la cohérence Raman.

## 2.2 Le piégeage cohérent de population

Le piégeage cohérent de population est réalisé à l'aide de faisceaux lasers qui couplent deux transitions atomiques partageant un même niveau relais comme le montre la figure Fig. 2.1. Lorsque les lasers sont accordés sur ces transitions, les atomes sont piégés dans une superposition d'états des deux niveaux de plus faible énergie. Cette superposition est analogue à celle réalisée après une impulsion " $\pi/2$ " lors d'une excitation directe d'un système à 2 niveaux d'énergie. Le piégeage de la population atomique repose sur l'existence d'un état cohérent stationnaire qui se trouve parfaitement découplé de l'émission stimulée induite par les lasers excitateurs [69]. Ce processus peut-être encore appelé transparence induite électromagnétiquement en configuration pompe-sonde à cause de la disparition de toute absorption de photon lorsque la vapeur atomique est irradiée simultanément par les deux lasers [8]. Cette disparition de la fluorescence est provoquée par les interférences destructives entre amplitudes de transition de chaque résonance optique. Un traitement approché à partir des seules valeurs propres de l'hamiltonien d'interaction entre l'atome et les photons des champs lasers est alors suffisant pour déterminer les contaminations radiatives et les positions en énergie des niveaux atomiques lors de l'excitation électromagnétique. Lorsque l'émission spontanée force les atomes vers les niveaux de plus faible énergie, un traitement reposant sur la matrice densité ou l'on ajoute de manière "ad hoc" le saut quantique afin d'assurer la conservation de la population est obligatoire.

### 2.2.1 L'atome habillé : position en énergie des états propres et introduction de l'émission spontanée

L'interprétation la plus adaptée du processus de piégeage cohérent de population repose sur un traitement semi-classique de l'interaction atome-photon [69]. Le système atomique considéré est décrit par un niveau excité  $|3\rangle$  couplé à 2 niveaux inférieurs  $|1\rangle$  et  $|2\rangle$  de durée de vie supposée ici infinie (voir figure Fig. 2.1). Deux faisceaux lasers, de fréquence de Rabi  $\Omega_1$  et

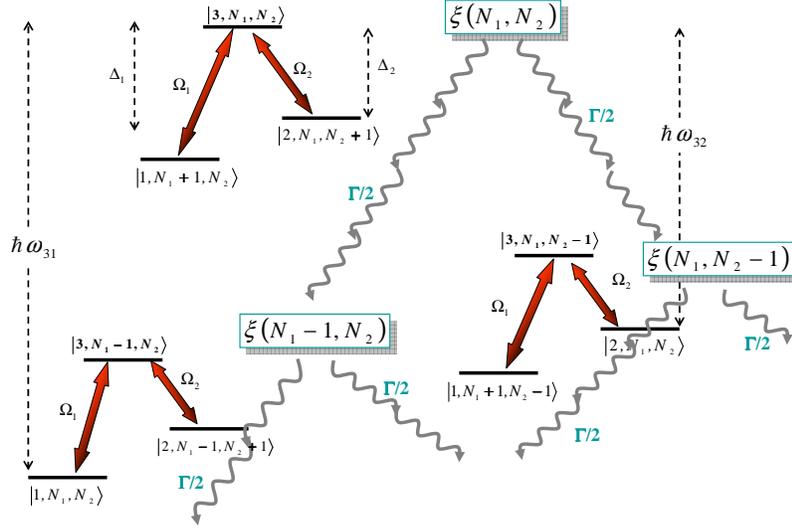


FIG. 2.1 – *Cascade radiative de l'atome habillé entre plusieurs multiplicités sous l'effet de l'émission spontanée.*

$\Omega_2$  excitent les transitions  $|3\rangle \leftrightarrow |1\rangle$  et  $|3\rangle \leftrightarrow |2\rangle$ . Les désaccords optiques entre la fréquence des lasers et la transition atomique se notent respectivement  $\Delta_1$  et  $\Delta_2$ . Ces définitions permettent en outre d'introduire d'éventuels corrections de fréquence comme les déplacements lumineux induits par des couplages non résonnants. Enfin, les différentes méthodes de détection associées aux observables (taux de fluorescence ou section efficace d'absorption reliés aux cohérences optiques) permettent de mesurer les flux de population atomique à l'aide de la lumière de fluorescence par émission spontanée de l'état  $|3\rangle$ .

Une propriété remarquable de cette configuration est la disparition de la fluorescence lorsque la différence de fréquence des lasers correspond à l'écart entre les états  $|1\rangle$  et  $|2\rangle$ . Dans le domaine micro-onde ou optique, la condition de résonance Raman notée  $\Delta_1 - \Delta_2$  dépend rigoureusement de la différence des vecteurs d'onde de chaque laser. En micro-onde, pour des ondes laser co-propageantes, la condition de résonance n'est sensible en pratique qu'à l'énergie de l'atome [92]. Pour des ondes contra-propageantes, la distribution de vitesses intervient et on parle souvent de transitions Raman sélectives en vitesse [84, 104]. Le piégeage des atomes dans un état qui n'interagit plus avec la lumière correspondant en réalité à une interruption de la cascade radiative de l'atome habillé (figure Fig. 2.1). L'hamiltonien d'interaction atome-photon de la base habillée  $\{|1, N_1 + 1, N_2\rangle, |2, N_1, N_2 + 1\rangle, |3, N_1, N_2\rangle\}$  associé à la multiplicité non perturbée  $\xi(N_1, N_2)$  s'écrit [105] :

$$H = \hbar \begin{pmatrix} \Delta_1 & 0 & \Omega_1 \\ 0 & \Delta_2 & \Omega_2 \\ \Omega_1 & \Omega_2 & -i\frac{\Gamma}{2} \end{pmatrix} \quad (2.1)$$

où  $-i\Gamma/2$  décrit l'instabilité de la multiplicité  $\xi(N_1, N_2)$  par émission spontanée du niveau

excité  $|3, N_1, N_2\rangle$ . Une description naturelle à l'aide des deux états propres  $|\Psi_C\rangle$  et  $|\Psi_{NC}\rangle$  [105, 69] permet d'introduire la notion d'interruption de la cascade radiative lorsque les atomes sont piégés. Les deux états propres sont définis par les superpositions :

$$\begin{aligned} |\Psi_{NC}\rangle &= \frac{\Omega_2}{\sqrt{\Omega_2^2 + \Omega_1^2}} |1, N_1 + 1, N_2\rangle - \frac{\Omega_1}{\sqrt{\Omega_2^2 + \Omega_1^2}} |2, N_1, N_2 + 1\rangle \\ |\Psi_C\rangle &= \frac{\Omega_2}{\sqrt{\Omega_2^2 + \Omega_1^2}} |2, N_1 + 1, N_2\rangle + \frac{\Omega_1}{\sqrt{\Omega_2^2 + \Omega_1^2}} |1, N_1, N_2 + 1\rangle \end{aligned} \quad (2.2)$$

On peut définir l'hamiltonien  $\tilde{H}$  dans la nouvelle base  $\{|\Psi_C\rangle, |\Psi_{NC}\rangle, |3, N_1, N_2\rangle\}$  :

$$\tilde{H} = \hbar \begin{pmatrix} \frac{\Delta_1 \Omega_1^2 + \Delta_2 \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} & (\Delta_1 - \Delta_2) \frac{\Omega_1 \Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} & \sqrt{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \\ (\Delta_1 - \Delta_2) \frac{\Omega_1 \Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} & \frac{\Delta_1 \Omega_2^2 + \Delta_2 \Omega_1^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} & 0 \\ \sqrt{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} & 0 & -i\frac{\Gamma}{2} \end{pmatrix} \quad (2.3)$$

Les éléments de matrice non diagonaux sont :

$$\begin{aligned} \langle \Psi_C | \tilde{H} | \Psi_{NC} \rangle &= \hbar (\Delta_1 - \Delta_2) \frac{\Omega_1 \Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \\ \langle \Psi_{NC} | \tilde{H} | 3, N_1, N_2 \rangle &= 0 \\ \langle \Psi_C | \tilde{H} | 3, N_1, N_2 \rangle &= \hbar \sqrt{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \end{aligned} \quad (2.4)$$

Quand la condition de résonance Raman est vérifiée  $\Delta_1 - \Delta_2 = 0$ , l'état  $|\Psi_{NC}\rangle$  est découplée de l'interaction avec l'état  $|\Psi_C\rangle$  (voir Fig. 2.2(a) et (b)). Cet état est un piège parfait pour les atomes qui est alimenté uniquement par émission spontanée. Mais lorsque cette condition n'est plus respectée  $\Delta_1 - \Delta_2 \neq 0$ , l'état  $|\Psi_{NC}\rangle$  redevient couplé à l'état  $|\Psi_C\rangle$  par un couplage non diagonal, lequel est lui même couplé à l'état instable  $|3, N_1, N_2\rangle$  (voir Fig. 2.2(b) et (c)). L'état  $|\Psi_{NC}\rangle$  n'est alors plus un piège parfait pour les atomes. Il acquiert une certaine instabilité radiative dont l'ordre de grandeur peut-être déterminée par  $|\langle \Psi_C | H | 3, N_1, N_2 \rangle|^2 / \hbar^2 \Gamma$ . D'après les valeurs propres des énergies, lorsque  $\Delta_1 = \Delta_2$ , l'état piège et l'état couplé sont dégénérés. Sous l'effet du couplage  $\sqrt{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}$ , l'état excité  $|3, N_1, N_2\rangle$  et l'état couplé  $|\Psi_C\rangle$  se repoussent. Ce faible déplacement a pour origine le déplacement lumineux des niveaux  $|1, N_1 + 1, N_2\rangle$  et  $|2, N_1, N_2 + 1\rangle$  sous l'effet des lasers [40]. Comme l'état  $|\Psi_{NC}\rangle$  n'a pas de couplage avec l'état  $|3, N_1, N_2\rangle$ , il ne subit pas de déplacement lumineux à résonance Raman  $\Delta_1 = \Delta_2$ . La perturbation introduite par les déplacements lumineux correspond à l'écart énergétique entre les états non perturbés et les états propres du système atome-photon déterminés après diagonalisation complète de l'hamiltonien de l'équation Eq. 2.3. Notons toutefois que si l'introduction d'un terme complexe  $-i\frac{\Gamma}{2}$  sur la position en énergie du niveau excité traduit bien l'instabilité radiative causée par l'émission spontanée, la population atomique n'est pas conservée au cours du temps. L'évolution temporelle de la fonction d'onde est ainsi associée à un hamiltonien d'interaction pour un système ouvert. Après quelques cycles d'absorption et d'émission de photons des lasers excitateurs, la fraction d'atomes est piégé dans l'état  $|\Psi_{NC}\rangle$  pour un temps caractéristique d'interaction que l'on peut estimer à partir de la largeur radiative du niveau  $|\Psi_C\rangle$  contaminé par l'état  $|3, N_1, N_2\rangle$ .

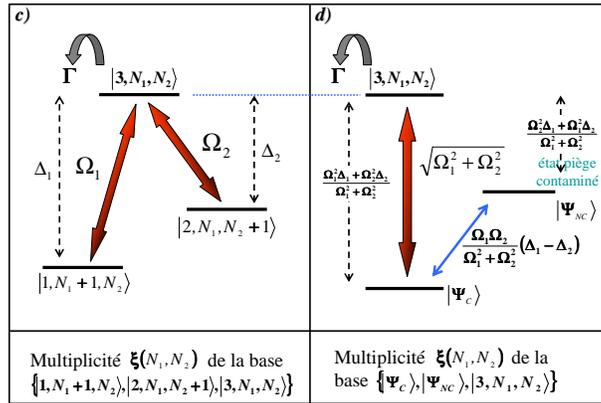
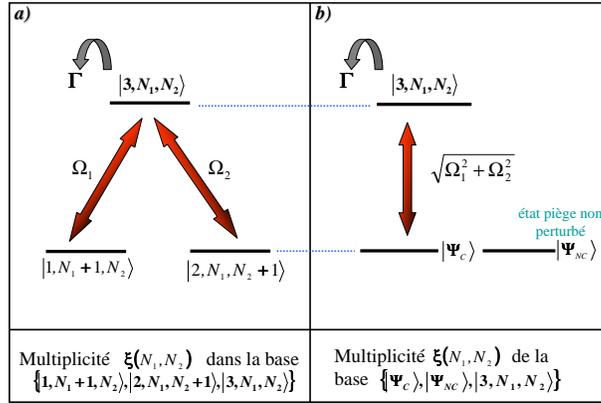


FIG. 2.2 – Multiplicité  $\xi(N_1, N_2)$  de l'atome habillé de la base  $\{|3, N_1, N_2\rangle, |1, N_1 + 1, N_2\rangle, |2, N_1, N_2 + 1\rangle\}$  et  $\{|\Psi_c\rangle, |\Psi_{NC}\rangle, |3, N_1, N_2\rangle\}$ . Représentation à résonance Raman (figures a,b) et hors résonance (figures c,d). A résonance, les états  $|1, N_1 + 1, N_2\rangle$  et  $|2, N_1, N_2 + 1\rangle$  sont dégénérés. Lorsque ce n'est plus le cas, la superposition d'état  $|\Psi_{NC}\rangle$  est couplée à la superposition  $|\Psi_c\rangle$ .

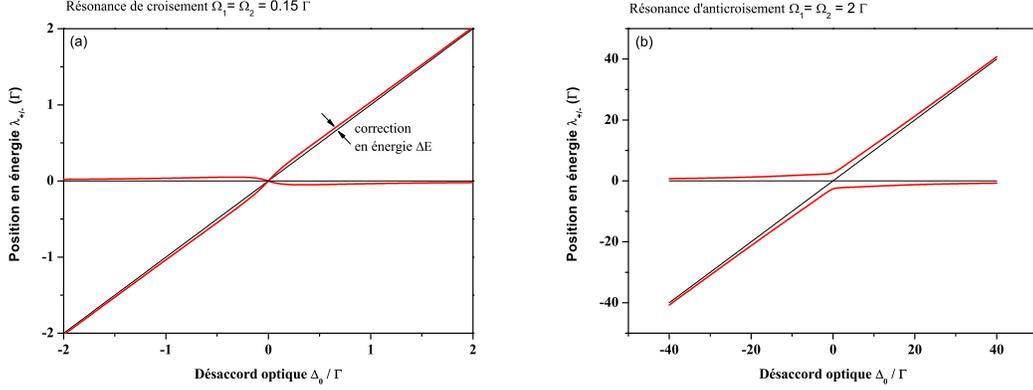


FIG. 2.3 – *Position en énergie des niveaux habillés à résonance Raman  $\Delta_1 = \Delta_2 = \Delta_0$ . (a) Résonance de croisement pour une valeur du couplage atome-champ laser  $< \Gamma$ . (b) Résonance d'anticroisement pour une valeur de couplage atome-champ laser  $> \Gamma$ .*

Il est possible d'évaluer simplement les positions en énergies et les largeurs radiatives associées aux états propres lorsque la condition de résonance Raman est respectée  $\Delta_1 = \Delta_2 = \Delta_0$ . En effet, l'hamiltonien Eq. 2.3 devient :

$$\tilde{H} = \begin{pmatrix} \Delta_0 & 0 & \sqrt{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \\ 0 & \Delta_0 & 0 \\ \sqrt{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} & 0 & -i\frac{\Gamma}{2} \end{pmatrix} \quad (2.5)$$

Les valeurs propres  $\lambda_+$ ,  $\lambda_-$ ,  $\lambda_{NC}$  des états propres  $|\Psi_+\rangle$ ,  $|\Psi_-\rangle$ ,  $|\Psi_{NC}\rangle$  s'écrivent après diagonalisation de l'hamiltonien Eq. 2.5 :

$$\begin{aligned} \lambda_{NC} &= \Delta_0 \\ \lambda_+ &= \frac{1}{2} \left( \Delta_0 - i\frac{\Gamma}{2} + \frac{1}{2} \sqrt{4\Delta_0^2 + 4i\Gamma\Delta_0 - \Gamma^2 + 16(\Omega_1^2 + \Omega_2^2)} \right) \\ \lambda_- &= \frac{1}{2} \left( \Delta_0 - i\frac{\Gamma}{2} - \frac{1}{2} \sqrt{4\Delta_0^2 + 4i\Gamma\Delta_0 - \Gamma^2 + 16(\Omega_1^2 + \Omega_2^2)} \right) \end{aligned} \quad (2.6)$$

On développe en théorie des perturbations les racines  $\lambda_+$  et  $\lambda_-$  lorsque  $\Omega_1^2 + \Omega_2^2 \lesssim 2\Delta_0 + i\frac{\Gamma}{2}$ . On obtient [42, 3] :

$$\begin{aligned} \lambda_+ &\simeq \Delta_0 + \frac{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}{\Delta_0^2 + \Gamma^2/4} \Delta_0 - i \frac{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}{\Delta_0^2 + \Gamma^2/4} \frac{\Gamma}{2} \\ \lambda_- &\simeq - \frac{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}{\Delta_0^2 + \Gamma^2/4} \Delta_0 - i \frac{\Gamma}{2} \left( 1 - \frac{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}{\Delta_0^2 + \Gamma^2/4} \right) \end{aligned} \quad (2.7)$$

On détermine maintenant l'écart en énergie  $\Delta E^\pm$  des états  $|\Psi_+\rangle$  et  $|\Psi_-\rangle$  à partir des

parties réelles des valeurs propres  $\lambda_+, \lambda_-$ . on trouve

$$\begin{aligned}\Delta E^+ &= \text{Re}\{\lambda_+\} = \Delta_0 + \frac{(\Omega_1^2 + \Omega_2^2)}{\Delta_0^2 + \Gamma^2/4} \Delta_0 \\ \Delta E^- &= \text{Re}\{\lambda_-\} = -\frac{(\Omega_1^2 + \Omega_2^2)}{\Delta_0^2 + \Gamma^2/4} \Delta_0\end{aligned}\quad (2.8)$$

On établit ensuite la largeur  $\Delta\omega$  de l'état  $|\Psi_+\rangle$  provenant de la contamination de  $|\Psi_C\rangle$  par l'instabilité radiative de  $|3, N_1, N_2\rangle$  à l'aide de la partie imaginaire des valeurs propres. On obtient :

$$\text{Im}\{\lambda_+\} = \Delta\omega = \frac{(\Omega_1^2 + \Omega_2^2) \Gamma}{\Delta_0^2 + \Gamma^2/4} \quad (2.9)$$

Les états propres habillés à résonance du système atome-photon s'écrivent, à résonance Raman, dans la théorie des perturbations au premier ordre<sup>1</sup> :

$$\begin{aligned}|\Psi_+\rangle &\simeq |\Psi_C\rangle - \frac{\sqrt{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}}{\Delta_0 + i\frac{\Gamma}{2}} |3, N_1, N_2\rangle \\ |\Psi_-\rangle &\simeq |3, N_1, N_2\rangle + \frac{\sqrt{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}}{\Delta_0 + i\frac{\Gamma}{2}} |\Psi_C\rangle\end{aligned}\quad (2.10)$$

A faible intensité laser  $\Omega_1, \Omega_2 < \Gamma$ , on observe une résonance de croisement [42]. Cette résonance induite par les interférences destructives entre amplitudes de transition correspond à une résonance de cohérence [42] dont la position en énergie est représentée par la figure Fig. 2.3(a). On parle de transparence induite électromagnétiquement (EIT en anglais) [88]. La largeur radiative de cette résonance est simplement déterminée par l'équation Eq. 2.9. A forte intensité laser, les niveaux d'énergie de l'atome subissent une levée de dégénérescence et le spectre de fluorescence se dédouble [106] : C'est l'effet Autler-Townes bien connu en résonance magnétique nucléaire [51] qui correspond à des positions en énergie qui se repoussent. La figure Fig. 2.3(b) représente les positions en énergie des niveaux atomiques perturbés sous l'effet de l'interaction entre l'atome et les champs lasers pour un couplage fort. Lorsque le désaccord est nul  $\Delta_0 = 0$ , deux résonances sont séparées de la valeur  $\pm\hbar\sqrt{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}$ . Lorsque le désaccord est grand devant le taux de relaxation du niveau excité  $\Delta_0 \gg \Gamma$ , la résonance de fluorescence de l'état  $|\Psi_+\rangle$ , légèrement décalé par effet de déplacement lumineux, se confond de plus en plus avec la position non perturbée de l'état  $\Psi_C$ . Ce spectre de fluorescence correspondant au profil de Fano est analysé en détail dans la référence [3]. Bien que l'étude des valeurs propres permet rapidement d'établir l'effet de la contamination radiative des niveaux atomiques par couplage laser, les termes de fuite et les termes sources entre différentes multiplicités ne sont pas pris en compte. Le formalisme de la matrice densité permet d'introduire ces processus et de condenser la cascade radiative en une représentation simplifiée ne comprenant plus que deux états notés  $|\Psi_+\rangle$  et  $|\Psi_{NC}\rangle$  qui décrivent entièrement la dynamique d'évolution des populations atomiques.

<sup>1</sup>Notons que les deux états ne sont pas orthogonaux car l'hamiltonien 2.3 est non hermitique

## 2.3 Approche adiabatique dans la base $\{|\Psi_+\rangle, |\Psi_{NC}\rangle\}$ incluant les termes sources et les fuites

La position en énergie des états propres montre que le système se comporte autour de la condition Raman  $\Delta_1 - \Delta_2$  comme un système à 2 niveaux d'énergies avec des résonances de croisement ou d'anticroisement. La description complète de l'évolution dynamique sous l'effet des couplages lasers doit prendre en compte la contamination par émission spontanée depuis les multiplicités  $\xi(N_1 + 1, N_2)$  et  $\xi(N_1, N_2 + 1)$ . L'évolution de la matrice densité est donnée par :

$$\frac{d}{dt}\rho_{ij} = \frac{1}{i\hbar} \left[ \sum_k H_{i,k} \rho_{k,j} - \rho_{i,k} H_{k,j}^\dagger \right] + R_{eff} \quad (2.11)$$

où  $R_{eff}$  inclut les termes sources et les fuites alimentant les niveaux atomiques. Lorsque les pulsations de Rabi associées à chaque champ laser sont petites devant le taux de relaxation par émission spontanée ( $\Omega_1, \Omega_2 \lesssim \Gamma$ ), on peut décrire la dynamique temporelle des populations et des cohérences par une approche adiabatique. Le niveau excité est asservi sur l'évolution plus lente des niveaux  $|1\rangle$  et  $|2\rangle$  à cause de la relaxation rapide par émission spontanée. En supposant que l'évolution temporelle de l'amplitude de transition de l'état excité est déterminée par la condition :

$$c_{33}(t) \ll \left| -i\frac{\Gamma}{2} c_{33}(t) \right| \quad (2.12)$$

et en imposant un changement de variable sur la définition en fréquence des désaccords optiques par rapport au niveau excité tel que :

$$\begin{aligned} \Delta_1 &= \Delta_0 \\ \Delta_2 &= \Delta_0 - \delta_r \end{aligned} \quad (2.13)$$

La condition d'adiabaticité entraîne que l'amplitude de l'état  $|3, N_1, N_2\rangle$  évolue avec la même vitesse que l'état  $|\Psi_C\rangle$  au sein de cette même multiplicité. On obtient alors la relation suivante :

$$c_{|3, N_1, N_2\rangle} = \frac{\sqrt{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}}{\Delta_0 + i\frac{\Gamma}{2}} c_{|\Psi_C\rangle} \quad (2.14)$$

La population du niveau excité  $|3, N_1, N_2\rangle$  reproduit l'évolution temporelle de la population du niveau couplé  $|\Psi_C\rangle$  à un facteur d'amplitude près. L'état se note dorénavant  $|\Psi_+\rangle$ .

### 2.3.1 Equations d'évolution d'une multiplicité habillée

Il faut maintenant définir l'hamiltonien d'interaction entre l'atome et la lumière au sein de chaque multiplicité habillée lorsque l'état  $|\Psi_+\rangle$  est considéré comme un vecteur de base. On détermine un hamiltonien effectif  $H_{eff}$  dans la base  $\{|\Psi_+\rangle, |\Psi_{NC}\rangle\}$  qui conduit à une représentation à 2 niveaux d'énergie tel que :

$$H_{eff} = \hbar \begin{pmatrix} -\delta_r \frac{\Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} - \frac{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}{\Delta_0 + i(\frac{\Gamma}{2})} & \delta_r \frac{\Omega_1 \Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \\ \delta_r \frac{\Omega_1 \Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} & -\delta_r \frac{\Omega_1^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \end{pmatrix} \quad (2.15)$$

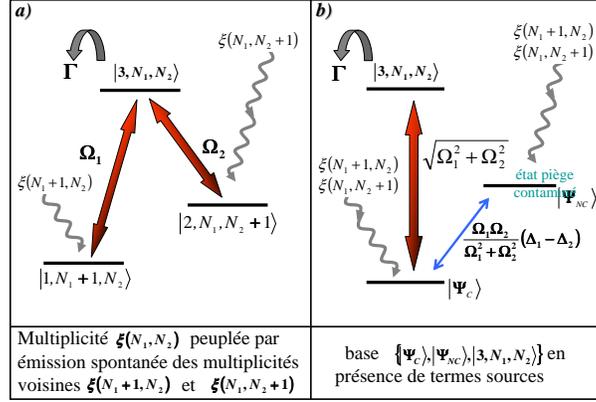


FIG. 2.4 – Multiplicité  $\xi(N_1, N_2)$  contaminée par émission spontanée depuis les multiplicités  $\xi(N_1+1, N_2)$  et  $\xi(N_1, N_2+1)$ .

Introduisons alors les termes sources responsables de la cascade radiative d'une multiplicité d'ordre supérieur vers la multiplicité  $\xi(N_1, N_2)$  (voir figure Fig. 2.4). Dans la base  $\{|\Psi_+\rangle, |\Psi_{NC}\rangle\}$ , la matrice source se transforme en une matrice de la forme :

$$R_{eff} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} (\Gamma_{31}\rho_{3, N_1+1, N_2} + \Gamma_{32}\rho_{3, N_1, N_2+1}) & -2\frac{\Omega_1\Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \begin{pmatrix} \Gamma_{31}\rho_{3, N_1+1, N_2} \\ -\Gamma_{32}\rho_{3, N_1, N_2+1} \end{pmatrix} \\ -\left(\frac{\Omega_1^2 - \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}\right) \begin{pmatrix} \Gamma_{31}\rho_{3, N_1+1, N_2} \\ -\Gamma_{32}\rho_{3, N_1, N_2+1} \end{pmatrix} & (\Gamma_{31}\rho_{3, N_1+1, N_2} + \Gamma_{32}\rho_{3, N_1, N_2+1}) \\ -2\frac{\Omega_1\Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \begin{pmatrix} \Gamma_{31}\rho_{3, N_1+1, N_2} \\ -\Gamma_{32}\rho_{3, N_1, N_2+1} \end{pmatrix} & +\left(\frac{\Omega_1^2 - \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}\right) \begin{pmatrix} \Gamma_{31}\rho_{3, N_1+1, N_2} \\ -\Gamma_{32}\rho_{3, N_1, N_2+1} \end{pmatrix} \end{pmatrix} \quad (2.16)$$

On peut simplifier cette matrice en condensant les multiplicités sources deux à deux et en appliquant une approche adiabatique sur les états excités. On obtient alors la relation unique :

$$\rho_{3, N_1+1, N_2} \approx \rho_{3, N_1, N_2+1} \approx \rho_{3, N_1+1, N_2+1} = \frac{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}{\Delta_0^2 + \Gamma^2/4} \rho_{+, +}^{N_1+1, N_2+1} \quad (2.17)$$

La matrice source devient :

$$R_{eff} = \frac{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}{\Delta_0^2 + \Gamma^2/4} \frac{\Gamma}{2} \begin{pmatrix} \left(1 - \left(\frac{\Omega_1^2 - \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}\right) \Upsilon\right) \rho_{+,+}^{N_1+1, N_2+1} & -\frac{\Omega_1 \Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} 2\Upsilon \rho_{+,+}^{N_1+1, N_2+1} \\ -\frac{\Omega_1 \Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} 2\Upsilon \rho_{+,+}^{N_1+1, N_2+1} & \left(1 + \left(\frac{\Omega_1^2 - \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}\right) \Upsilon\right) \rho_{+,+}^{N_1+1, N_2+1} \end{pmatrix} \quad (2.18)$$

avec maintenant la différence des rapports de branchement introduite par  $\Upsilon = \frac{\Gamma_{31} - \Gamma_{32}}{\Gamma}$  où  $\Gamma = \Gamma_{31} + \Gamma_{32}$  est la relaxation totale par émission spontanée. On obtient après utilisation de l'hamiltonien Eq. 2.15 et de la matrice source Eq. 2.18 dans l'équation Eq. 2.11 un ensemble d'équations couplées qui décrit l'évolution temporelle des états atomiques :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{d\rho_{NC,NC}}{dt} = 2\delta_r \frac{\Omega_1 \Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \text{Im}\{\rho_{+,NC}\} + \Gamma_{eff} \left(1 - \Upsilon \frac{\Omega_1^2 - \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}\right) \rho_{+,+}^{N_1+1, N_2+1} \\ \frac{d\rho_{+,+}}{dt} = -2\delta_r \frac{\Omega_1 \Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \text{Im}\{\rho_{+,NC}\} - 2\Gamma_{eff} \rho_{+,+} \\ \quad + \Gamma_{eff} \left(1 + \Upsilon \frac{\Omega_1^2 - \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}\right) \rho_{+,+}^{N_1+1, N_2+1} \\ \frac{d\rho_{+,NC}}{dt} = -\imath \left(\delta_r \frac{\Omega_2^2 - \Omega_1^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} + \Delta_{eff} - i\Gamma_{eff}\right) \rho_{+,NC} \\ \quad + \imath\delta_r \frac{\Omega_1 \Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} (\rho_{+,+} - \rho_{NC,NC}) - 2\Gamma_{eff} \Upsilon \frac{\Omega_1 \Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \rho_{+,+}^{N_1+1, N_2+1} \end{array} \right. \quad (2.19)$$

avec les variables :

$$\Gamma_{eff} = \frac{(\Omega_1^2 + \Omega_2^2)\Gamma/2}{\Delta_0^2 + \Gamma^2/4} \quad \Delta_{eff} = \frac{\Delta_0(\Omega_1^2 + \Omega_2^2)}{\Delta_0^2 + \Gamma^2/4} \quad (2.20)$$

Cet ensemble décrit l'évolution d'une multiplicité  $\xi(N_1, N_2)$  de l'atome habillé sous l'effet des fuites définies par  $\Gamma_{eff}$  et des termes sources données par l'équation Eq. 2.18 (voir Fig. 2.6(a)). Le terme  $\Gamma_{eff}$  est un taux de pompage optique qui force les atomes vers une multiplicité d'ordre inférieur. Le terme  $\Delta_{eff}$  traduit l'écart en énergie entre les deux états de la transition d'horloge du système effectif. La conséquence de ce léger écart en énergie est l'apparition d'un déplacement de fréquence de la transition d'horloge. Notons que l'introduction des déplacements de fréquence induits par des niveaux atomiques non résonnants avec les lasers décalera aussi cette transition d'horloge.

### 2.3.2 Equations d'évolution du système fermé à 2 niveaux

Compte tenue de la forte similitude du système d'équations Eq. 2.19 avec un système à 2 niveaux du chapitre 1, l'évolution temporelle peut être directement étudiée à partir des résultats obtenus au chapitre précédent. Nous rappelons que ce système est ouvert puisque il n'y a pas conservation de la population dans une multiplicité particulière. En fait, on peut généraliser l'approche adiabatique entre toutes les multiplicités. On peut donc écrire avec une bonne approximation que :

$$\rho_{+,+}^{N_1+1, N_2+1} \approx \rho_{+,+} \approx \rho_{+,+}^{N_1-1, N_2-1} \approx \dots \quad (2.21)$$

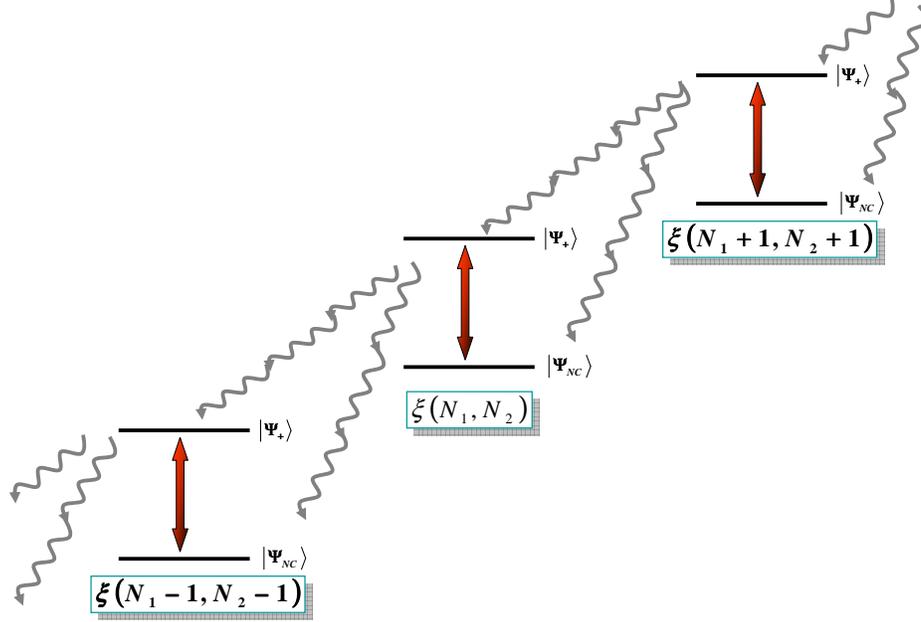


FIG. 2.5 – *Représentation adiabatique de la cascade radiative de l'atome habillé par condensation des multiplicités.*

L'émission spontanée des multiplicités supérieures assure un apport des populations sur les états  $|\Psi_C\rangle$  et  $|\Psi_{NC}\rangle$  avec le même taux  $\Gamma_{eff}$  qui décrit les fuites à partir du niveau excité. Cela revient à condenser l'ensemble des multiplicités en une représentation unique mais la notion de cascade radiative disparaît (voir Fig. 2.6(b)). Dans cette approche développée par la référence [107], on trouve l'ensemble d'équations :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{d\rho_{NC,NC}}{dt} = 2\delta_r \frac{\Omega_1\Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \text{Im}\{\rho_{+,NC}\} + \Gamma_{eff} \left(1 - \Upsilon \frac{\Omega_1^2 - \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}\right) \rho_{+,+} \\ \frac{d\rho_{+,+}}{dt} = -2\delta_r \frac{\Omega_1\Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \text{Im}\{\rho_{+,NC}\} - \Gamma_{eff} \left(1 - \Upsilon \frac{\Omega_1^2 - \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}\right) \rho_{+,+} \\ \frac{d\rho_{+,NC}}{dt} = -i \left( \delta_r \frac{\Omega_2^2 - \Omega_1^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} + \Delta_{eff} - i\Gamma_{eff} \right) \rho_{+,NC} \\ \quad + i\delta_r \frac{\Omega_1\Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} (\rho_{+,+} - \rho_{NC,NC}) - 2\Gamma_{eff} \Upsilon \frac{\Omega_1\Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \rho_{+,+} \end{array} \right. \quad (2.22)$$

avec les variables :

$$\Gamma_{eff} = \frac{(\Omega_1^2 + \Omega_2^2)\Gamma/2}{\Delta_0^2 + \Gamma^2/4} \quad \Delta_{eff} = \frac{\Delta_0(\Omega_1^2 + \Omega_2^2)}{\Delta_0^2 + \Gamma^2/4} \quad (2.23)$$

et la conservation de la population à tout instant :

$$\rho_{NC,NC}(t) + \rho_{+,+}(t) = 1 \quad (2.24)$$

Les populations et les cohérences initiales  $\rho_{+,+}(0)$ ,  $\rho_{NC,NC}(0)$ ,  $\rho_{+,NC}(0)$  s'écrivent alors en fonction de la différence de population  $\rho_{22}(0) - \rho_{11}(0)$  et de la cohérence  $\rho_{12}(0)$  [108] :

$$\begin{cases} \rho_{+,+}(0) = \rho_{11}(0) \frac{\Omega_1^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} + \rho_{22}(0) \frac{\Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} + 2 \frac{\Omega_1 \Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \text{Re}\{\rho_{12}(0)\} \\ \rho_{NC,NC}(0) = \rho_{11}(0) \frac{\Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} + \rho_{22}(0) \frac{\Omega_1^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} - 2 \frac{\Omega_1 \Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \text{Re}\{\rho_{12}(0)\} \\ \rho_{+,NC}(0) = -(\rho_{22}(0) - \rho_{11}(0)) \frac{\Omega_1 \Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} - \frac{\Omega_1^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \rho_{12}(0) + \frac{\Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \rho_{21}(0) \end{cases} \quad (2.25)$$

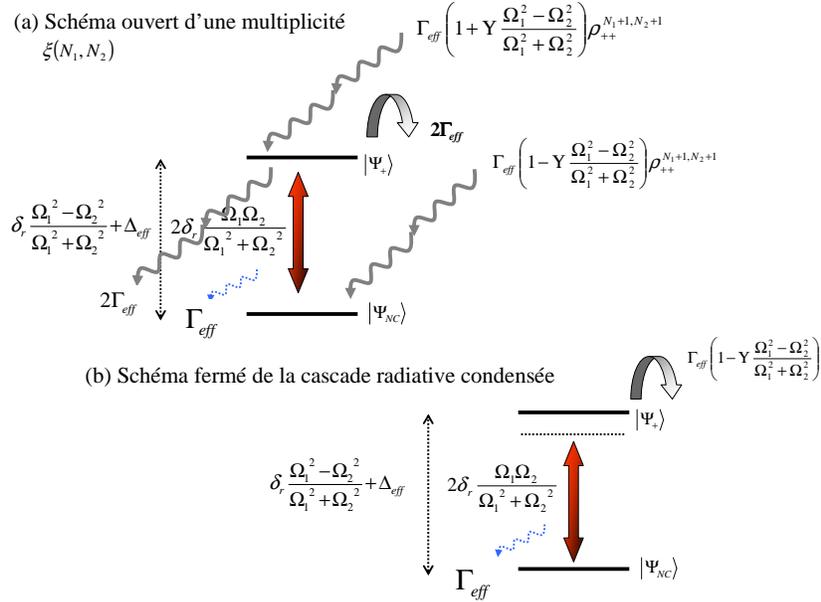


FIG. 2.6 – (a) *Système effectif ouvert d'une multiplicité et (b) système effectif fermé à 2 niveaux. La population est maintenant conservée.*

Le traitement précédent nous a permis de mettre en évidence la similitude entre l'évolution dynamique d'un système à 2 niveaux et le piégeage cohérent de population dans une représentation adiabatique habillée des états atomiques. On s'intéresse donc maintenant aux solutions stationnaires et transitoires dans la base  $\{|\Psi_+\rangle, |\Psi_{NC}\rangle\}$ .

### 2.3.3 Correspondance $\{|\Psi_+\rangle, |\Psi_{NC}\rangle\} \leftrightarrow \{|1\rangle, |2\rangle, |3\rangle\}$

On rappelle la correspondance entre les observables de la base  $\{|1\rangle, |2\rangle, |3\rangle\}$  et celles de la base  $\{|\Psi_+\rangle, |\Psi_{NC}\rangle\}$  à l'aide des relations de tranformation [108] :

$$\begin{pmatrix} \rho_{13}(t) \\ \rho_{23}(t) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{\Omega_1}{\Delta_0 + i\Gamma/2} & 0 & -\frac{\Omega_2}{\Delta_0 + i\Gamma/2} \\ \frac{\Omega_2}{\Delta_0 + i\Gamma/2} & 0 & \frac{\Omega_1}{\Delta_0 + i\Gamma/2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \rho_{+,+}(t) \\ \rho_{NC,NC}(t) \\ \rho_{+,NC}(t) \end{pmatrix} \quad (2.26)$$

et

$$\begin{pmatrix} \rho_{11}(t) \\ \rho_{22}(t) \\ \rho_{33}(t) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{\Omega_1^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} & \frac{\Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} & -2\frac{\Omega_1\Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \\ \frac{\Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} & \frac{\Omega_1^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} & 2\frac{\Omega_1\Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \\ \frac{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}{\Delta_0^2 + \Gamma^2/4} & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \rho_{+,+}(t) \\ \rho_{NC,NC}(t) \\ Re\{\rho_{+,NC}(t)\} \end{pmatrix} \quad (2.27)$$

Il faut noter que la somme pondérée des parties imaginaires des cohérences optiques  $Im\{\rho_{13}(t)\} + Im\{\rho_{23}(t)\}$  est directement reliée à la solution  $\rho_{33}(t)$  décrivant le taux de fluorescence. En effet, nous avons :

$$\begin{aligned} \rho_{33}(t) &= \frac{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}{\Delta_0^2 + \Gamma^2/4} \rho_{+,+}(t) \\ \Omega_1 Im\{\rho_{13}(t)\} + \Omega_2 Im\{\rho_{23}(t)\} &= -\frac{\Gamma}{2} \frac{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}{\Delta_0^2 + \Gamma^2/4} \rho_{+,+}(t) \end{aligned} \quad (2.28)$$

ce qui au final donne la relation générale :

$$\Omega_1 Im\{\rho_{13}(t)\} + \Omega_2 Im\{\rho_{23}(t)\} = -\frac{\Gamma}{2} \rho_{33}(t) \quad (2.29)$$

Ces expressions permettent de passer directement de la représentation couplée à la représentation dans la base  $\{|1\rangle, |2\rangle, |3\rangle\}$ . La relation Eq. 2.29 découle directement de l'approche adiabatique appliquée sur les équations de Bloch-optiques.

### 2.3.4 Solutions stationnaires

Lorsque le temps d'interaction entre les champs lasers et la vapeur atomique est suffisamment long, c'est le régime stationnaire qui intervient. Dans ce cas, il est utile de déterminer les solutions décrivant une interaction continue. Ces solutions s'écrivent après calcul :

$$\begin{pmatrix} Re\{\rho_{+,NC}^{stat}\} \\ Im\{\rho_{+,NC}^{stat}\} \\ \rho_{NC,NC}^{stat} - \rho_{+,+}^{stat} \end{pmatrix} = \frac{1}{D} \begin{pmatrix} \delta_r \frac{\Omega_1\Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \left(1 + \frac{\Omega_1^2 - \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \Upsilon\right) \left[ \delta_r \frac{\Omega_1^2 - \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} + \Delta_{eff} + 2\Gamma_{eff} \Upsilon \frac{\Omega_1\Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \right] \\ -\Gamma_{eff} \delta_r \frac{\Omega_1\Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \left(1 + \frac{\Omega_1^2 - \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \Upsilon\right) \\ \left(1 + \Upsilon \frac{\Omega_1^2 - \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}\right) \cdot \left(\Gamma_{eff}^2 + \left(\delta_r \frac{\Omega_1^2 - \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} + \Delta_{eff} + 2\Gamma_{eff} \Upsilon \frac{\Omega_1\Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}\right)^2\right) \end{pmatrix} \quad (2.30)$$

avec l'expression du dénominateur D :

$$D = \left(1 + \Upsilon \frac{\Omega_1^2 - \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}\right) \left(\Gamma_{eff}^2 + \left(\delta_r \frac{\Omega_1^2 - \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} + \Delta_{eff} + 2\Gamma_{eff} \Upsilon \frac{\Omega_1\Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}\right)^2\right) + 4\delta_r^2 \frac{\Omega_1^2\Omega_2^2}{(\Omega_1^2 + \Omega_2^2)^2} \quad (2.31)$$

Afin de déterminer les caractéristiques essentielles de la résonance noire, on se place dans le cas où les relaxations par émission spontanée sont égales  $\Upsilon = 0$ . Nous trouvons l'expression de la différence de population :

$$\rho_{NC,NC}^{stat} - \rho_{+,+}^{stat} = \frac{\Gamma_{eff}^2 + \left( \delta_r \frac{\Omega_1^2 - \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} + \Delta_{eff} \right)^2}{\Gamma_{eff}^2 + \left( \delta_r \frac{\Omega_1^2 - \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} + \Delta_{eff} \right)^2 + 4 \left( \delta_r \frac{\Omega_1 \Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \right)^2} \quad (2.32)$$

Il est évident que cette différence de population vaut 1 quand le désaccord Raman  $\delta_r = 0$  est satisfait. Il y a bien pompage complet des atomes dans l'état noir. Le développement de la solution  $\rho_{33}^{stat}$  à partir de la relation Eq. 2.14, en utilisant Eq. 2.32 et la relation de fermeture Eq. 2.24, conduit à l'expression de la résonance noire en régime stationnaire :

$$\rho_{33}^{stat} = S^\Lambda \frac{\delta_r^2}{\delta_r(\delta_r - \Delta_{LS}) + \gamma_{eff}^2} \quad (2.33)$$

avec les paramètres :

$$S^\Lambda = \frac{2 \frac{\Omega_1^2 \Omega_2^2}{(\Omega_1^2 + \Omega_2^2)}}{\Delta_0^2 + \Gamma^2/4} \quad \Delta_{LS} = 2(\Omega_2^2 - \Omega_1^2) \frac{\Delta_0}{\Delta_0^2 + \Gamma^2/4} \quad (2.34)$$

On remarque que lorsque les pulsations de Rabi sont différentes, par exemple  $\Omega_1 > \Omega_2$ , on trouve que l'amplitude de la résonance est proportionnelle à l'intensité du laser le plus faible. C'est le cas de la transparence induite électromagnétiquement (ou EIT en anglais). On définit aussi la demi-largeur effective de la transition comme :

$$\gamma_{eff} = \sqrt{\Gamma_{eff}^2 + \Delta_{eff}^2} = \frac{(\Omega_1^2 + \Omega_2^2)}{\sqrt{\Delta_0^2 + \Gamma^2/4}} \quad (2.35)$$

Le terme de contraste  $S^\Lambda$  détermine l'amplitude de la résonance. Ce terme décroît avec l'augmentation du désaccord optique. Le terme de déplacement de fréquence  $\Delta_{LS}$  peut être associé au déplacement lumineux des états  $|1\rangle$  et  $|2\rangle$  sous l'effet des couplages lasers. Il faut cependant noter que ce déplacement, qui affecte la condition de résonance Raman au dénominateur, ne joue aucun rôle sur la position de la résonance noire  $|\Psi_{NC}\rangle$  puisque la fluorescence s'annule quand même pour  $\delta_r = 0$ . Nous reviendrons plus en détail sur cette particularité dans la seconde partie de notre analyse théorique.

### 2.3.5 Le régime transitoire : Solutions temporelles

Le modèle ainsi développé nous permet maintenant d'introduire le vecteur de Raman-Bloch [107, 74] similaire au modèle du vecteur appliqué au système à 2 niveaux, dans le chapitre 1. Il permet de visualiser l'évolution dynamique des variables atomiques pendant chaque interaction avec les faisceaux laser. Il conduit en outre à une expression analytique des observables facilement utilisable pour déterminer le profil des oscillations en fonction par exemple de l'application successive de deux impulsions laser. Les variables du vecteur sont définies par :

$$\begin{aligned} \rho_{+,NC} &= \frac{1}{2} (U(t) - iV(t)) \\ \frac{\rho_{+,+} - \rho_{NC,NC}}{2} &= W(t) \end{aligned} \quad (2.36)$$

On peut alors décrire le vecteur  $\vec{R}$  par :

$$\vec{M} = U(t)\hat{e}_1 + V(t)\hat{e}_2 + W(t)\hat{e}_3 \quad (2.37)$$

L'ensemble des équations de Bloch peuvent se mettre sous la forme suivante :

$$\begin{cases} \frac{dU}{dt} = -\Gamma_{eff}U + \left( \delta_r \frac{\Omega_1^2 - \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} + \Delta_{eff} \right) V - \Gamma_{eff}\Upsilon \frac{\Omega_1\Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \left( \frac{1+2W}{2} \right) \\ \frac{dV}{dt} = - \left( \delta_r \frac{\Omega_1^2 - \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} + \Delta_{eff} \right) U + \delta_r \frac{\Omega_1\Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} W - \Gamma_{eff}V \\ \frac{dW}{dt} = -\delta_r \frac{\Omega_1\Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} V - \Gamma_{eff} \left( 1 + \Upsilon \frac{\Omega_1^2 - \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \right) \left( \frac{1+2W}{2} \right) \end{cases} \quad (2.38)$$

Cela peut s'écrire alors par analogie avec le chapitre 1 comme un produit de matrices de rotation incluant les solutions stationnaires :

$$M(t) - M^{stat} = \exp[R \cdot t] \cdot (M(0) - M^{stat}) \quad (2.39)$$

En suivant un calcul identique au chapitre 1 sur un système à 2 niveaux, nous identifions la nouvelle de matrice de rotation  $\mathbb{R}$  :

$$R = \begin{pmatrix} -\Gamma_{eff} & \left( \delta_r \frac{\Omega_1^2 - \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} + \Delta_{eff} \right) & -\Gamma_{eff}\Upsilon \frac{\Omega_1\Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \\ - \left( \delta_r \frac{\Omega_1^2 - \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} + \Delta_{eff} \right) & -\Gamma_{eff} & \delta_r \frac{\Omega_1\Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \\ 0 & -\delta_r \frac{\Omega_1\Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} & -\Gamma_{eff} \left( 1 + \Upsilon \frac{\Omega_1^2 - \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \right) \end{pmatrix} \quad (2.40)$$

La totalité des résultats du système à 2 niveaux s'applique donc parfaitement ici. On suppose désormais que le rapport de branchement est nul  $\Upsilon = 0$ . La représentation par le vecteur de Bloch permet de déterminer simplement les solutions analytiques [74]. Ce vecteur tourne autour d'un axe tel que :

$$\frac{d(\vec{M} - \vec{M}_{stat})}{dt} = \vec{\Omega} \times (\vec{M} - \vec{M}_{stat}) - \Gamma_{eff} \cdot (\vec{M} - \vec{M}_{stat}) \quad (2.41)$$

avec l'axe de rotation définie comme :

$$\vec{\Omega} = \left( \delta_r \frac{\Omega_1\Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \right) \hat{e}_1 + \left( \delta_r \frac{\Omega_1^2 - \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} + \Delta_{eff} \right) \hat{e}_3 \quad (2.42)$$

tandis que l'amplitude de  $\vec{M}$  décroît avec  $\Gamma_{eff}$  vers la valeur stationnaire  $\vec{M}_{stat}$ . On rappelle que  $\Omega \times (\vec{M} - \vec{M}_{stat})$  vaut :

$$\begin{pmatrix} 0 & \left( \delta_r \frac{\Omega_1^2 - \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} + \Delta_{eff} \right) & 0 \\ - \left( \delta_r \frac{\Omega_1^2 - \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} + \Delta_{eff} \right) & 0 & \delta_r \frac{\Omega_1\Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \\ 0 & -\delta_r \frac{\Omega_1\Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} & 0 \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} U(t) - U^{stat} \\ V(t) - V^{stat} \\ W(t) - W^{stat} \end{pmatrix} \quad (2.43)$$

Les solutions d'un tel système sont connues [107] et nous obtenons les expressions matricielles générales suivantes :

$$\begin{bmatrix} U(t) - U^{stat} \\ V(t) - V^{stat} \\ W(t) - W^{stat} \end{bmatrix} = e^{-\Gamma_{eff}t} \cdot R(a, b, q, t) \cdot \begin{bmatrix} U(0) - U^{stat} \\ V(0) - V^{stat} \\ W(0) - W^{stat} \end{bmatrix} \quad (2.44)$$

et la définition de la matrice générale d'interaction :

$$R(a, b, q, t) = \begin{pmatrix} a^2 + b^2 \cos[qt] & b \sin[qt] & ab (\cos[qt] - 1) \\ b \sin[qt] & \cos[qt] & a \sin[qt] \\ ab (\cos[qt] - 1) & a \sin[qt] & b^2 + a^2 \cos[qt] \end{pmatrix} \quad (2.45)$$

avec :

$$\begin{aligned} a &= -\frac{2\delta_r \frac{\Omega_1 \Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}}{\sqrt{\left(2\delta_r \frac{\Omega_1 \Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}\right)^2 + \left(\delta_r \frac{\Omega_1^2 - \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} + \Delta_{eff}\right)^2}} \\ b &= -\frac{\left(\delta_r \frac{\Omega_1^2 - \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} + \Delta_{eff}\right)}{\sqrt{\left(2\delta_r \frac{\Omega_1 \Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}\right)^2 + \left(\delta_r \frac{\Omega_1^2 - \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} + \Delta_{eff}\right)^2}} \\ q &= \sqrt{\left(2\delta_r \frac{\Omega_1 \Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}\right)^2 + \left(\delta_r \frac{\Omega_1^2 - \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} + \Delta_{eff}\right)^2} \end{aligned} \quad (2.46)$$

On montre que les correspondances entre les conditions initiales du vecteur Raman-Bloch et les états propres du système habillé s'écrivent :

$$\begin{cases} U(0) = Re\{\rho_{+,NC}\}(0) = \\ \quad (\rho_{11}(0) - \rho_{22}(0)) \frac{\Omega_1 \Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} - \frac{\Omega_1^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} Re\{\rho_{12}(0)\} + \frac{\Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} Re\{\rho_{21}(0)\} \\ V(0) = Im\{\rho_{+,NC}\}(0) = -\frac{\Omega_1^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} Im\{\rho_{12}(0)\} + \frac{\Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} Im\{\rho_{21}(0)\} \\ W(0) = \rho_{NC,NC}(0) - \rho_{+,+}(0) = (\rho_{11}(0) - \rho_{22}(0)) \frac{\Omega_1^2 - \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} - 4 \frac{\Omega_1 \Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} Re\{\rho_{12}(0)\} \end{cases} \quad (2.47)$$

### 2.3.6 Temps caractéristique $\tau_p$ de pompage des atomes dans l'état noir

Il est important de connaître le temps nécessaire de pompage des atomes dans l'état  $|\Psi_{NC}\rangle$ . Il détermine la dynamique du système atomique et la durée minimale de l'impulsion laser qu'il faut appliquer pour porter la quasi-totalité des atomes dans l'état noir. On peut reprendre ici l'étude menée au chapitre 1 sur une impulsion de Rabi généralisée en présence de relaxation et à résonance Raman ( $\delta_r = 0$ ). Il suffit de diagonaliser la matrice de rotation  $R$  pour en obtenir les valeurs propres (**voir annexe B**). Ensuite, il faut étudier les exponentielles d'amortissement en remplaçant les relaxations  $\gamma_c$ ,  $\Gamma$  et les fréquences  $\delta$ ,  $\Omega$  par leur

équivalent dans la représentation atome-photon. On obtient ainsi une expression générale du temps de pompage que l'on étudie en fonction de la configuration radiative  $\Upsilon$ . Nous obtenons finalement les formules associées aux temps caractéristiques  $\tau_1 \equiv \tau_p$  et  $\tau_2 \equiv \tau_{osc}$  d'un système à 2 niveaux (voir Eq. B.22 de l'annexe B) :

$$\begin{aligned}\tau_p &= \frac{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}{\Gamma_{eff} [(\Omega_1^2 + \Omega_2^2) - (\Omega_1^2 - \Omega_2^2)\Upsilon]} \\ \tau_{osc} &= 1/\Gamma_{eff}\end{aligned}\quad (2.48)$$

On étudie maintenant deux cas particuliers :

- Le cas purement radiatif symétrique  $\Upsilon = 0$ . La possibilité de retomber par émission spontanée sur chaque niveau de départ est équiprobable. Les temps caractéristiques de pompage et de relaxation des oscillations sont alors égaux :

$$\tau_{osc} = \tau_p = 1/\Gamma_{eff} = \frac{2}{\Gamma} \frac{\Delta_0^2 + \Gamma^2/4}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}\quad (2.49)$$

Lorsqu'une fréquence de Rabi est négligeable, on retrouve un temps de pompage qui se confond avec le processus de pompage optique classique.

- Pour une configuration asymétrique  $\Upsilon = 1$ , on trouve après calcul :

$$\begin{aligned}\tau_p &= 1/\Gamma_{eff} = \frac{2}{\Gamma} \frac{\Delta_0^2 + \Gamma^2/4}{\Omega_2^2} \\ \tau_{osc} &= 1/\Gamma_{eff}\end{aligned}\quad (2.50)$$

En conclusion, si l'on souhaite atteindre rapidement l'état stationnaire, on doit respecter la condition générale :

$$\tau_p \gg \frac{1}{\left[1 - \Upsilon \left(\frac{\Omega_1^2 - \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}\right)\right] \Gamma_{eff}}\quad (2.51)$$

### 2.3.7 Discussion sur la représentation $\{|\Psi_+\rangle, |\Psi_{NC}\rangle\}$

Si la durée de l'impulsion est plus courte que le temps de pompage  $\tau_p$ , la résonance n'a pas atteint l'amplitude maximale et présente une courbe de résonance analogue à celle de Rabi. Lors d'impulsions courtes, la résonance présente un élargissement équivalent à un temps de transit donné par l'inverse de la durée d'interaction  $\tau$ . Lorsque la durée est plus grande que  $\tau_p$ , le régime stationnaire est atteint et la résonance noire présente une amplitude maximale (voir Fig. 2.7).

Il a été par ailleurs démontré, en régime non stationnaire, que la présence d'un désaccord optique non nul entraîne un décalage de fréquence directement relié au déplacement en énergie des états propres de l'hamiltonien d'interaction atome-photon [74]. Ce déplacement de fréquence disparaît pour des temps d'interaction de l'ordre de grandeur de la largeur radiative de la résonance noire ou pour de fortes intensités lasers. L'équipartition atomique initiale détruit toute cohérence atomique initiale dans la base habillée. La cohérence  $\rho_{+,NC}$  entre les états  $|\Psi_{NC}\rangle$  et  $|\Psi_+\rangle$  n'accumule donc pas de déphasage au cours de l'interaction. Ceci reste vrai tant que les contributions des termes non résonnants sont négligés (par exemple, le déplacement Bloch-Siegert ou le déplacement lumineux ac Stark induit par les niveaux extérieurs au système à 3 niveaux.)

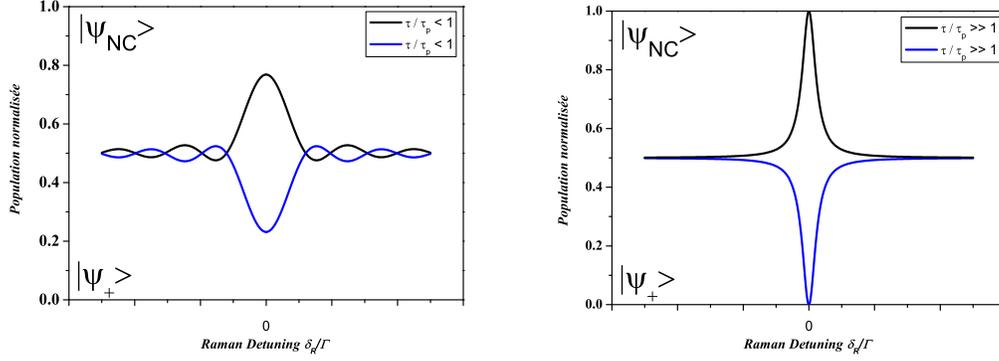


FIG. 2.7 – *Evolution du profil de résonance noire vers l'état stationnaire dans la base  $\{|\Psi_+\rangle, |\Psi_{NC}\rangle\}$  pour une impulsion courte  $\tau/\tau_p \ll 1$  et pour une impulsion de longue durée telle que  $\tau/\tau_p \gg 1$ .*

## 2.4 Solutions complètes de Bloch-optique dans la base $\{|1\rangle, |2\rangle, |3\rangle\}$

Nous présentons dans ce qui suit le modèle de la matrice densité dans la base atomique  $\{|1\rangle, |2\rangle, |3\rangle\}$  en ajoutant la plupart des termes de relaxation qui existent dans une vapeur atomique. Cette description inclut maintenant la relaxation de la cohérence Raman. Nous allons voir que ce taux de relaxation rétablit un couplage entre l'état couplé et l'état non couplé. Il y a alors un déplacement de fréquence qui affecte le minimum de la résonance. Les solutions stationnaires étudiées dans les sections suivantes décrivent de manière satisfaisante le comportement général de la résonance.

### 2.4.1 Introduction des processus de relaxation

La description complète des relaxations du milieu atomique est réalisée dans la base des états atomiques de l'atome  $\{|1\rangle, |2\rangle, |3\rangle\}$ . Deux états  $|1\rangle, |2\rangle$  définissent la transition d'horloge. L'hamiltonien qui décrit les couplages énergétiques entre niveaux atomiques [42] est similaire à l'hamiltonien Eq. 2.1 d'une multiplicité de la base habillée. En suivant la description d'un système à 2 niveaux, nous incorporons maintenant les processus de dissipation des cohérences optiques définies par les variables  $\gamma_{c1}, \gamma_{c2}$  entre les transitions  $|3\rangle \leftrightarrow |2\rangle$  et  $|3\rangle \leftrightarrow |1\rangle$ . Ces termes prennent en compte, de manière phénoménologique, non seulement les processus radiatifs de relaxation mais les collisions déphasantes qui entraînent un amortissement des dipôles atomiques au cours du temps (élargissement collisionnel en présence d'un gaz tampon par exemple). La relaxation de la cohérence Raman est décrite par le terme  $\gamma_c$ . Elle décrit, par exemple, la durée de vie de la superposition d'états  $|\Psi_{NC}\rangle$  de la résonance noire en présence de collisions. On ajoute maintenant de manière "ad hoc" les processus de relaxations qui incluent l'émission spontanée sur chaque transition optique  $\Gamma_{13}, \Gamma_{23}$  (Voir Fig.2.8(b)). Tous les processus d'amortissement introduits de manière phénoménologique sont décrits par une

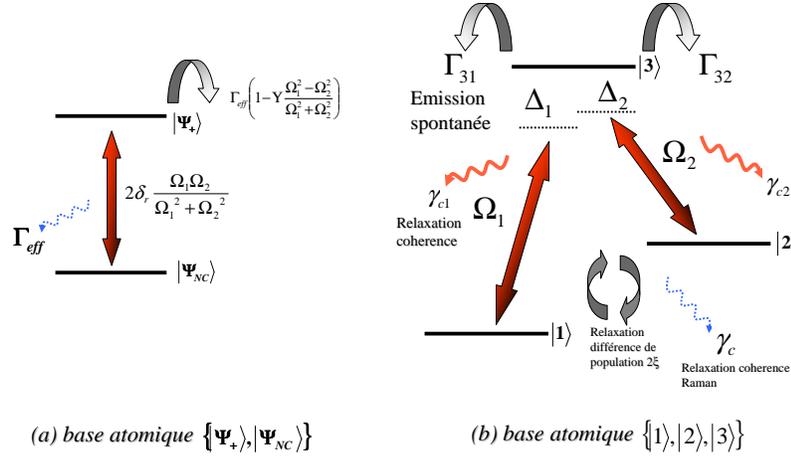


FIG. 2.8 – (a) Représentation effective à 2 niveaux et (b) système à 3 niveaux atomiques avec processus de relaxation.

matrice comprenant les termes sources, les termes de relaxation et les termes de fuite que l'on ajoute sur l'évolution purement hamiltonienne de l'atome. On rappelle la définition des fréquences de Rabi appliquées sur le système atomique :

$$\Omega_1 = -\frac{\langle 1 | \vec{d} \cdot \vec{E}_{L1} | 3 \rangle}{2\hbar} \quad \Omega_2 = -\frac{\langle 2 | \vec{d} \cdot \vec{E}_{L2} | 3 \rangle}{2\hbar} \quad (2.52)$$

On peut développer l'ensemble des **équations de Bloch** dans le référentiel tournant :

$$\begin{cases} \frac{d\rho_{11}}{dt} = 2\Omega_1 \text{Im}\{\rho_{13}\} + \Gamma_{31}\rho_{33} + \xi(\rho_{22} - \rho_{11}) \\ \frac{d\rho_{22}}{dt} = 2\Omega_2 \text{Im}\{\rho_{23}\} + \Gamma_{32}\rho_{33} - \xi(\rho_{22} - \rho_{11}) \\ \frac{d\rho_{33}}{dt} = -2\Omega_1 \text{Im}\{\rho_{13}\} - 2\Omega_2 \text{Im}\{\rho_{23}\} - (\Gamma_{32} + \Gamma_{31})\rho_{33} \\ \frac{d\rho_{13}}{dt} = -(\gamma_{c1} + i\Delta_1)\rho_{13} - i\Omega_2\rho_{12} + i\Omega_1(\rho_{33} - \rho_{11}) \\ \frac{d\rho_{23}}{dt} = -(\gamma_{c2} + i\Delta_2)\rho_{23} - i\Omega_1\rho_{21} + i\Omega_2(\rho_{33} - \rho_{22}) \\ \frac{d\rho_{12}}{dt} = -(\gamma_c + i(\Delta_1 - \Delta_2))\rho_{12} - i\Omega_2\rho_{13} + i\Omega_1\rho_{32} \end{cases} \quad (2.53)$$

Le système étant suppose fermé, on conserve la population atomique :

$$\rho_{33} + \rho_{22} + \rho_{11} = 1 \quad (2.54)$$

Nous souhaitons avoir recours à des expressions analytiques qui déterminent les évolutions temporelles de chaque observable. On développe, dans la suite, un modèle adiabatique puis on en détermine les solutions stationnaires plus complètes que celles calculées dans la base  $\{|\Psi_+\rangle, |\Psi_{NC}\rangle\}$ . On met alors en évidence, dans le régime stationnaire, l'existence d'un déplacement de fréquence à cause de la relaxation  $\gamma_c$  de la cohérence entre les deux niveaux d'horloge.

#### 2.4.2 Le modèle adiabatique de spin : temps de relaxation transverse et longitudinal

Les solutions de la matrice densité peuvent être calculées de manière simplifiée en imposant le fait que les cohérences optiques doivent suivre adiabatiquement l'évolution temporelle des populations des deux niveaux d'horloge :

$$\begin{aligned} \frac{d\rho_{13}}{dt} &\ll |i\Delta_1 - \gamma_{c1}|\rho_{13} \\ \frac{d\rho_{23}}{dt} &\ll |i\Delta_2 - \gamma_{c2}|\rho_{23} \end{aligned} \quad (2.55)$$

L'approche adiabatique n'est valable que pour des fréquences de Rabi petites devant la relaxation du niveau intermédiaire  $\Omega_1, \Omega_2 < \Gamma$ . Le traitement analytique reprend les grandes lignes du modèle développé par la référence [109]. Nous supposons qu'à chaque instant, les cohérences optiques s'adaptent à l'évolution temporelle de la cohérence Raman, on peut donc écrire :

$$\begin{aligned} \rho_{13}(t) &= \frac{\Omega_1(\frac{3}{2}\rho_{33}(t) - \frac{1-\Delta n(t)}{2}) - \Omega_2\rho_{12}(t)}{\Delta_1 - i\gamma_{c1}} \\ \rho_{23}(t) &= \frac{\Omega_2(\frac{3}{2}\rho_{33}(t) - \frac{1+\Delta n(t)}{2}) - \Omega_1\rho_{21}(t)}{\Delta_2 - i\gamma_{c2}} \end{aligned} \quad (2.56)$$

On obtient l'expression<sup>2</sup> de la partie imaginaire de chaque cohérence optique en fonction de  $\rho_{33}(t)$ ,  $Im\{\rho_{12}(t)\}$ ,  $Re\{\rho_{12}(t)\}$  et  $\Delta n(t) = \rho_{22}(t) - \rho_{11}(t)$  :

$$\begin{aligned} Im\{\rho_{13}(t)\} &= \frac{\Omega_1\gamma_{c1}(\frac{3}{2}\rho_{33}(t) - \frac{1-\Delta n(t)}{2}) - \Omega_2\Delta_1 Im\{\rho_{12}(t)\} - \Omega_2\gamma_{c1} Re\{\rho_{12}(t)\}}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} \\ Im\{\rho_{23}(t)\} &= \frac{\Omega_2\gamma_{c2}(\frac{3}{2}\rho_{33}(t) - \frac{1+\Delta n(t)}{2}) + \Omega_1\Delta_2 Im\{\rho_{12}(t)\} - \Omega_1\gamma_{c2} Re\{\rho_{12}(t)\}}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} \end{aligned} \quad (2.57)$$

Les parties imaginaires des cohérences optiques s'expriment à partir de  $\rho_{33}(t)$ , elle-même asservie sur la cohérence  $\rho_{12}(t)$  et la différence de population  $\Delta n(t)$ . L'approche adiabatique conduit finalement à un ensemble d'équations similaires à l'ensemble d'équations du chapitre

<sup>2</sup>à ce stade, on pourrait toujours faire l'approximation que la population du niveau excité est très peu affectée par le pompage optique des lasers en négligeant la population  $\rho_{33}$

1 représentant l'évolution du vecteur de Bloch au cours du temps en introduisant les nouvelles variables  $\Delta w_+(t) = \Delta n(t) + \rho_{33}(t)$  et  $\Delta w_-(t) = \Delta n(t) - \rho_{33}(t)$  :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{d\Delta w_+}{dt} = -4\Omega_1 \text{Im} \left\{ \frac{\Omega_1(\Delta w_+ + \Delta w_-/2 - 1/2) - \Omega_2 \rho_{12}(t)}{\Delta_1 - \nu\gamma_{c1}} \right\} - \Gamma_{31}(\Delta w_+ - \Delta w_-) - \xi(\Delta w_+ + \Delta w_-) \\ \frac{d\Delta w_-}{dt} = -4\Omega_2 \text{Im} \left\{ \frac{\Omega_2(\Delta w_- + \Delta w_+/2 - 1/2) - \Omega_1 \rho_{12}^*(t)}{\Delta_2 - \nu\gamma_{c2}} \right\} + \Gamma_{32}(\Delta w_+ - \Delta w_-) - \xi(\Delta w_+ + \Delta w_-) \\ \frac{d\rho_{12}}{dt} = -\nu(\Delta_1 - \Delta_2 - \nu\gamma_c)\rho_{12} - \nu\Omega_2 \left[ \frac{\Omega_1(\Delta w_+ + \Delta w_-/2 - 1/2) - \Omega_2 \rho_{12}}{\Delta_1 - \nu\gamma_{c1}} \right] \\ \quad + \nu\Omega_1 \left[ \frac{\Omega_2(\Delta w_- + \Delta w_+/2 - 1/2) - \Omega_1 \rho_{12}}{\Delta_2 + \nu\gamma_{c2}} \right] \end{array} \right. \quad (2.58)$$

avec la conservation de la population  $\rho_{11}(t) + \rho_{22}(t) + \rho_{33}(t) = 1$  et les conditions initiales définies par  $\rho_{12}(t=0), \Delta n(t=0)$ . Le traitement des solutions analytiques<sup>3</sup> à partir de la méthode des matrices de Jaynes est assez lourd. L'ensemble des équations Eq. 2.58 généralise les équations Eq. 2.22 de la base  $\{|\Psi_+\rangle, |\Psi_{NC}\rangle\}$ . Le changement de variables précédent permet d'introduire les populations :

$$\rho_{11} = \frac{1 - \Delta w_+}{2} \quad \rho_{22} = \frac{1 + \Delta w_-}{2} \quad \rho_{33} = \frac{\Delta w_+ - \Delta w_-}{2} \quad (2.59)$$

En supposant que la population  $\rho_{33}(t)$  est totalement asservie sur la différence de population et la cohérence Raman, c'est à dire  $d\rho_{33}(t)/dt \equiv 0$ , on peut encore écrire :

$$\rho_{33}(t) = -2 \frac{\Omega_1 \text{Im}\{\rho_{13}(t)\} + \Omega_2 \text{Im}\{\rho_{23}(t)\}}{\Gamma_{31} + \Gamma_{32}} \quad (2.60)$$

nous trouvons des équations d'évolutions plus simples telles que :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{d\Delta n(t)}{dt} = 2(\Upsilon - 1)\Omega_1 \text{Im} \left\{ \frac{\Omega_1(\frac{3}{2}\rho_{33}(t) - \frac{1-\Delta n(t)}{2}) - \Omega_2 \rho_{12}(t)}{\Delta_1 - \nu\gamma_{c1}} \right\} \\ \quad + 2(\Upsilon + 1)\Omega_2 \text{Im} \left\{ \frac{\Omega_2(\frac{3}{2}\rho_{33}(t) - \frac{1+\Delta n(t)}{2}) - \Omega_1 \rho_{12}^*(t)}{\Delta_2 - \nu\gamma_{c2}} \right\} \\ \frac{d\rho_{12}(t)}{dt} = -\nu(\Delta_1 - \Delta_2 - \nu\gamma_c)\rho_{12}(t) - \nu\Omega_2 \left[ \frac{\Omega_1(\frac{3}{2}\rho_{33}(t) - \frac{1-\Delta n(t)}{2}) - \Omega_2 \rho_{12}(t)}{\Delta_1 - \nu\gamma_{c1}} \right] \\ \quad + \nu\Omega_1 \left[ \frac{\Omega_2(\frac{3}{2}\rho_{33}(t) - \frac{1+\Delta n(t)}{2}) - \Omega_1 \rho_{12}(t)}{\Delta_2 + \nu\gamma_{c2}} \right] \end{array} \right. \quad (2.61)$$

$$\rho_{33}(t) = \frac{\frac{\Omega_2^2 \gamma_{c2} (\Delta n(t)+1)}{(\Gamma_{31}+\Gamma_{32})(\Delta_2^2+\gamma_{c2}^2)} - \frac{\Omega_1^2 \gamma_{c1} (\Delta n(t)-1)}{(\Gamma_{31}+\Gamma_{32})(\Delta_1^2+\gamma_{c1}^2)}}{1 + \frac{3\Omega_1^2 \gamma_{c1}}{(\Gamma_{31}+\Gamma_{32})(\Delta_1^2+\gamma_{c1}^2)} + \frac{3\Omega_2^2 \gamma_{c2}}{(\Gamma_{31}+\Gamma_{32})(\Delta_2^2+\gamma_{c2}^2)}} + \frac{2\Omega_1 \Omega_2 \left( \frac{\gamma_{c1} \text{Re}\{\rho_{12}(t)\} + \Delta_1 \text{Im}\{\rho_{12}(t)\}}{(\Gamma_{31}+\Gamma_{32})(\Delta_1^2+\gamma_{c1}^2)} + \frac{\gamma_{c2} \text{Re}\{\rho_{12}(t)\} - \Delta_2 \text{Im}\{\rho_{12}(t)\}}{(\Gamma_{31}+\Gamma_{32})(\Delta_2^2+\gamma_{c2}^2)} \right)}{1 + \frac{3\Omega_1^2 \gamma_{c1}}{(\Gamma_{31}+\Gamma_{32})(\Delta_1^2+\gamma_{c1}^2)} + \frac{3\Omega_2^2 \gamma_{c2}}{(\Gamma_{31}+\Gamma_{32})(\Delta_2^2+\gamma_{c2}^2)}} \quad (2.62)$$

mais la conservation de la population ne porte plus que sur les variables  $\rho_1(t) + \rho_2(t) = 1$ .

<sup>3</sup>On peut retrouver des équations plus simples à partir du changement de variables indiqué dans la référence [109]. Il faut supposer que  $\Delta_1 - \Delta_2 \ll \Delta_1, \Delta_2, \Gamma = \Gamma_{31} + \Gamma_{32}$ . où l'on pose le changement de variables  $\Delta_0 = \frac{1}{2}(\Delta_1 + \Delta_2)$  et  $\Delta_r = \Delta_1 - \Delta_2$ .

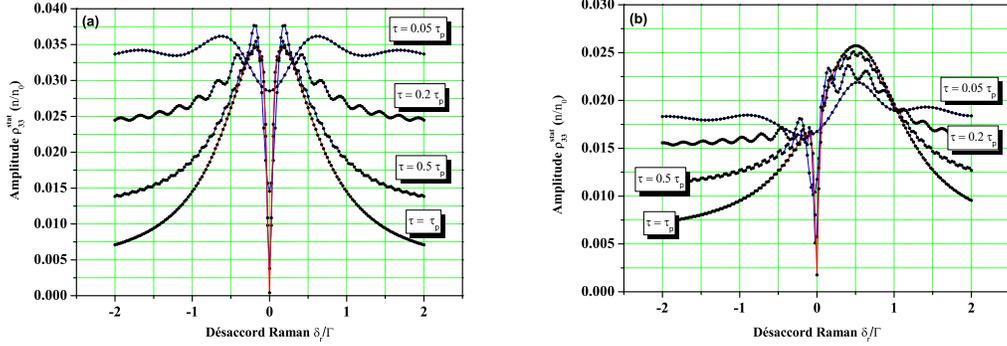


FIG. 2.9 – (a) *Formation de la résonance noire en fonction de la durée de l'impulsion CPT pour  $\Omega_1 = \Omega_2$  et  $\Delta_0 = 0$ .* (b) *Profil de résonance noire pour  $\Omega_1 = \Omega_2$  et  $\Delta_0 = \Gamma/2$ .* Les taux de relaxation des cohérences optiques sont définis par  $\gamma_{c1} = \gamma_{c2} = \Gamma/2$  et  $\Gamma_{31} = \Gamma_{32} = \Gamma/2$ .

Nous pouvons identifier simplement, à l'aide des sections précédentes, le temps de relaxation  $\tau_{osc} \equiv \tau_2$  responsable de l'amortissement des oscillations (équivalent à un taux de relaxation transverse) et  $\tau_p$  qui détermine l'inversion de population entre les états d'horloge  $(\Delta w_+(t) + \Delta w_-(t))/2$  (équivalent à un taux de relaxation longitudinal) tels que :

$$\tau_p^{-1} \sim \left( \frac{\Omega_1^2 \gamma_{c1}}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} + \frac{\Omega_2^2 \gamma_{c2}}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} \right) \left[ 1 + \tilde{\Upsilon} \frac{\frac{\Omega_2^2 \gamma_{c2}}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} - \frac{\Omega_1^2 \gamma_{c1}}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2}}{\frac{\Omega_1^2 \gamma_{c1}}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} + \frac{\Omega_2^2 \gamma_{c2}}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2}} \right] \quad (2.63)$$

$$\tau_{osc}^{-1} \sim \gamma_c + \frac{\Omega_1^2 \gamma_{c2}}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} + \frac{\Omega_2^2 \gamma_{c1}}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} \quad (2.64)$$

avec le rapport de branchement différentiel normalisé :

$$\tilde{\Upsilon} = \frac{\frac{3\Omega_1^2 \gamma_{c1}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)} - \frac{3\Omega_2^2 \gamma_{c2}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)}}{\frac{3\Omega_2^2 \gamma_{c2}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)} + \frac{3\Omega_1^2 \gamma_{c1}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)}} + 1 \quad (2.65)$$

Les formules Eq. 2.64 et Eq. 2.63 caractérisent les processus d'amortissement de la cohérence et de la différence de population qui dépendent du rapport de branchement  $\tilde{\Upsilon}$  par émission spontanée. Ces expressions s'appliquent pour une configuration de type  $\Lambda$ . Dans le cas des alcalins, ce rapport est plutôt faible  $\tilde{\Upsilon} \ll 1$  et l'amortissement est contrôlé par les deux pulsations de Rabi [110]. Pour les alcalino-terreux comme le Sr ou le Ca, ce rapport est au contraire proche de l'unité  $\tilde{\Upsilon} \sim 1$  et on atteint le régime stationnaire à l'aide de la pulsation correspondante à la transition ayant la plus faible relaxation radiative [78]. Il est important de souligner que plus les champs lasers sont proches de la saturation optique, plus la différence de population  $\Delta n(t)$  atteint rapidement son état stationnaire et permet une préparation efficace des atomes dans la superposition cohérente des états d'horloge. Enfin lorsque une configuration à plusieurs champs de couplage est retenue comme les processus à 3 photons [12] (voir Fig. 1.12(b) du chapitre 1), il faudrait pourvoir éliminer par approximation

adiabatique les niveaux relais et ainsi définir une configuration effective à 3 puis 2 niveaux. Si à cause des taux de relaxation, cette approche adiabatique n'était plus possible, il faut traiter à nouveau la dynamique de relaxation par les équations complètes de Bloch-optiques [111]. Si les intensités lasers sont très saturantes, l'approximation adiabatique n'est plus justifiée. On devrait pourvoir contourner cela en développant l'intégralité des équations Eq. 2.53 dans la représentation habillée. Il devrait être possible d'effectuer dans la nouvelle représentation un calcul de manière adiabatique puisque le taux de relaxation  $\Gamma_{eff}$  "habille" les niveaux d'énergie avec les photons optiques [108].

## 2.5 Solution stationnaire de la résonance noire dans la base $\{|1\rangle, |2\rangle, |3\rangle\}$

On étudie exclusivement la solution stationnaire du niveau intermédiaire  $\rho_{33}^{stat}$  qui caractérise la résonance noire. Cette solution a fait l'objet de nombreux travaux théoriques antérieurs [68, 98, 101, 102, 2, 3, 112, 103, 106, 113, 82, 114, 115, 116]. La structure de notre solution est plus complète que les travaux cités précédemment. Elle considère des relaxations qui peuvent être à la fois radiatives (émission spontanée) mais aussi collisionnelles (collisions entre atomes, avec un gaz ou contre les parois d'une cellule...). Les expressions des solutions de la population excitée et des parties imaginaires des cohérences optiques ont été établies dans l'annexe C.

**Solution stationnaire de la population excitée  $\rho_{33}^{stat}$  :**

$$\rho_{33}^{stat} = S^\Lambda \frac{(\Delta_1 - \Delta_2)^2 + \gamma_c^2 + 2\gamma_c(\gamma_{c1} + \gamma_{c2})S^*}{(\Delta_1 - \Delta_2)[(\Delta_1 - \Delta_2) - \Delta_f] + \Gamma_{eff}^2} S^* \quad (2.66)$$

**Solution stationnaire de la partie imaginaire de la cohérence optique  $Im\{\rho_{i3}\}^{stat}$  avec  $i = 1, 2$  :**

$$Im\{\rho_{i,3}\}^{stat} = -S^\Lambda \frac{\Gamma_{3,i}}{2\Omega_i} \times \frac{(\Delta_1 - \Delta_2)^2 + \gamma_c^2 + 2\gamma_c(\gamma_{c1} + \gamma_{c2})S^*}{(\Delta_1 - \Delta_2)[(\Delta_1 - \Delta_2) - \Delta_f] + \Gamma_{eff}^2} \quad (2.67)$$

On constate que la partie imaginaire stationnaire des cohérences optiques est directement proportionnelle à l'équation Eq.2.66 de la fluorescence. On introduit les trois paramètres de saturation :

$$S = 2 \frac{\Omega_1^2 \Omega_2^2}{(\Gamma_{32} \gamma_{c2} \Omega_1^2 + \Gamma_{31} \gamma_{c1} \Omega_2^2)} \quad S^* = \frac{\gamma_{c1} \Omega_1^2 + \gamma_{c2} \Omega_2^2}{2\gamma_{c1} \gamma_{c2} (\gamma_{c1} + \gamma_{c2})} \quad (2.68)$$

$$S^\Lambda = \frac{S}{1 + (3 - \frac{\Gamma_{31} + \Gamma_{32}}{\gamma_{c1} + \gamma_{c2}})S + \frac{\Omega_2^2 \Gamma_{31} \gamma_{c2} \Delta_1^2 + \Omega_1^2 \Gamma_{32} \gamma_{c1} \Delta_2^2}{\gamma_{c1} \gamma_{c2} (\Omega_1^2 \Gamma_{32} \gamma_{c2} + \Omega_2^2 \Gamma_{31} \gamma_{c1})}}$$

Le paramètre de saturation S provient des équations de taux d'Einstein. Le terme  $S^*$  représente les saturations par pompage laser de chaque transition optique. Il y a compétition entre les processus par émission stimulé à 1 photon et les processus à 2 photons responsable de la formation de la cohérence  $\rho_{12}$ . Ainsi, lorsque le taux  $\gamma_c$  de la cohérence Raman est nulle, l'amplitude du signal est directement déterminée par le terme  $S^\Lambda$ .

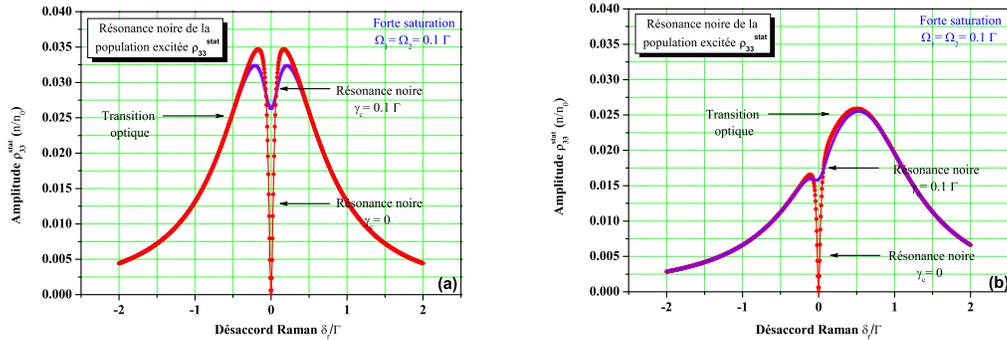


FIG. 2.10 – (a) Profil de resonance noire pour  $\Omega_1 = \Omega_2$  et  $\Delta_0 = 0$ . (b) Profil de resonance noire pour  $\Omega_1 = \Omega_2$  et  $\Delta_0 = \Gamma/2$ . La fluorescence s'annule exactement lorsque  $\delta_r = 0$  pour  $\gamma_c = 0$ . Les taux de relaxation des coherences optiques sont définis par  $\gamma_{c1} = \gamma_{c2} = \Gamma/2$  et  $\Gamma_{31} = \Gamma_{32} = \Gamma/2$ .

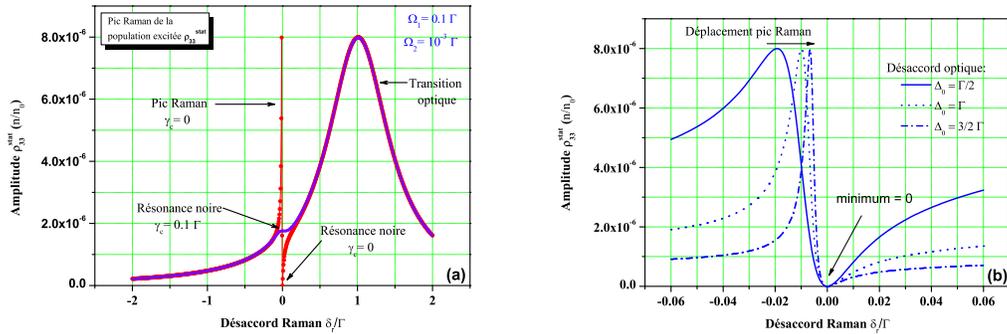


FIG. 2.11 – (a) Profil de Fano-Feshbach. Le pic brillant est associé à la résonance Raman qui caractérise l'état couplé  $\Psi_+$ . (b) Profil de resonance perturbée par l'effet des différents désaccords optiques  $\Delta_0$ . Le déplacement lumineux induit par le laser de forte intensité perturbe la position de l'état  $\Psi_+$  mais pas la position de l'état noir  $\Psi_{NC}$  dont la signature spectrale est toujours déterminée par le minimum de fluorescence à résonance lorsque  $\gamma_c = 0$ .

Les équations de taux prédisent normalement une équipartition des atomes sur les 3 niveaux atomiques à forte saturation. En réalité, la cohérence  $\rho_{12}(t)$  entre en compétition avec le phénomène de pompage optique. Les atomes passent alors de l'état  $|1\rangle$  à l'état  $|2\rangle$  par l'intermédiaire de l'état relais  $|3\rangle$ . La fluorescence du niveau intermédiaire est extrêmement faible puisque les atomes ne le peuplent presque pas. Remarquons que pour  $\gamma_c = 0$ , la solu-

tion Eq.2.66 s'annule exactement pour  $\Delta_1 - \Delta_2 = \delta_r = 0$ . La fluorescence disparaît totalement bien que les deux lasers soient optiquement résonants comme le montre la figure Fig. 4.9. La solution la plus proche de la nôtre est celle de la référence [112] que l'on retrouve exactement à partir de l'équation Eq.2.66 en posant  $\gamma_{c1} = \Gamma_{31}/2$ ,  $\gamma_{c2} = \Gamma_{32}/2$  et  $\gamma_c = 0$ . Cette solution avait été calculée et vérifiée expérimentalement dans le groupe de Dehmelt sur la transition à 2 photons de l'ion  $\text{Ba}^+$  entre les états  $6^2\text{S}_{1/2}$  et  $5^2\text{D}_{3/2}$  [112]. Lorsque une fréquence de Rabi est beaucoup plus importante que l'autre et en présence d'un désaccord optique  $\Delta_0$  non nul, le profil de la population excitée présente deux résonances (voir Fig. 2.11). La résonance étroite est couramment appelée résonance brillante ou pic Raman tandis que la seconde résonance correspond à la transition optique classique pilotée par la pulsation de Rabi la plus élevée. Les références [3] et [106] ont étudié cette configuration particulière à partir de la formule de la référence [112]. Le profil de la résonance la plus étroite est similaire au profil de Fano que l'on peut observer quand un état discret est couplé au continuum par deux chemins possibles [4]. De telles résonances de diffusion se rencontrent lors des processus d'autoionisation de molécules ou lors de variations importantes des sections efficaces de collision entre atomes (Résonances de Feshbach). Dans ce dernier cas, il suffit de remplacer, en quelque sorte, les pulsations de Rabi par la valeur des potentiels d'interaction entre atomes formant la molécule. Les déplacements de fréquences et les largeurs radiatives correspondantes aux deux transitions ont été déterminés de façon analytiques par les références [3, 106]. Il faut retenir que le pic Raman et la transition optique subissent, à grand désaccord optique, un déplacement analogue au déplacement lumineux  $\Omega_1^2/\Delta_0$  induit par la pulsation laser la plus forte. Nous comparons enfin notre solution Eq.2.66 avec l'équation Eq.2.33 obtenue dans le cadre du modèle habillé en régime purement radiatif. En effet, en posant  $\gamma_c = 0$ ,  $\Gamma_{31} = \Gamma_{32}$  avec  $\Gamma_{31} + \Gamma_{32} = \Gamma$  dans la solution Eq.2.66, nous trouvons pour  $\delta_r \ll \Gamma$  et  $S \ll 1$ , et en utilisant les expressions de l'annexe C, que les formules Eq.2.66 et Eq.2.33 sont identiques. Elles confirment que l'approche adiabatique dans la base  $\{|\Psi_+\rangle, |\Psi_{NC}\rangle\}$  n'est valable que pour de faibles valeurs du désaccord  $\delta_r$  devant le taux de relaxation  $\Gamma$  de l'état excité. Afin de déterminer simplement les caractéristiques principales de la largeur associée à la résonance noire et les déplacements de fréquence affectant la condition de résonance  $\delta_r$ , nous supposons dans la suite que l'on néglige  $\Delta_1 - \Delta_2$  devant  $\Delta_1$  et  $\Delta_2$ .

### 2.5.1 Largeur effective de la résonance noire

La largeur de la résonance noire est plus étroite que la largeur naturelle  $\Gamma = \Gamma_{31} + \Gamma_{32}$  du niveau excité  $|3\rangle$ . Cette largeur de raie effective  $2\Gamma_{eff}$  peut-être simplement déterminée dans plusieurs régimes de relaxation. La saturation optique  $S^*$  pilote la largeur de la résonance. En introduisant  $\gamma_{c1} = \gamma_{c2} = \Gamma/2$  et  $\Gamma_{31} = \Gamma_{32} = \Gamma/2$  avec  $\Delta_1 - \Delta_2 \ll \Delta_1, \Delta_2$ , elle devient :

$$\Gamma_{eff} = \frac{(2\Gamma S^*)}{\sqrt{1 + S + \frac{4}{\Gamma^2} \frac{\Omega_2^2 \Delta_1^2 + \Omega_1^2 \Delta_2^2}{(\Omega_1^2 + \Omega_2^2)}}} \quad (2.69)$$

Dans ce cas, la saturation optique du milieu atomique est réduite par  $(\sqrt{(1 + \Delta_0^2/4\Gamma^2)})$  pour  $\Delta_1 \sim \Delta_2 \sim \Delta_0$  et la largeur augmente moins vite avec la saturation  $S^*$ . Elle reste toutefois linéaire avec le paramètre de saturation  $S^*$  puisqu'il n'y pas de relaxation de la cohérence à 2 photons. Lorsque le système est à résonance optique  $\Delta_1 = \Delta_2 = \Delta_0 = 0$ , nous avons alors

l'expression exacte :

$$\Gamma_{eff} = \gamma_c \sqrt{\frac{(1 + 3S + \frac{\Gamma}{\gamma_c} S^*)(1 + \frac{\Gamma}{\gamma_c} S^*)}{1 + S}} \quad (2.70)$$

### 2.5.2 Déplacement de fréquence $\Delta_f$ associé à la condition de résonance Raman

Le dénominateur de l'équation Eq. 2.66 contient le terme que l'on peut assimiler à un déplacement de fréquence  $\Delta_f$ . Bien que ces déplacements modifient la condition de résonance Raman  $\delta_r = \Delta_1 - \Delta_2$  au dénominateur, elles ne traduisent pas la véritable position du minimum de la résonance. En effet, souvenons nous que la fluorescence s'annule pour  $\delta_r = 0$  lorsque  $\gamma_c = 0$ . A partir du modèle de l'atome habillé, on peut établir que la présence d'un taux de relaxation  $\gamma_c$  non nulle entraîne un couplage entre l'état  $|\Psi_+\rangle$  et l'état  $|\Psi_{NC}\rangle$ . Il y a dans ce cas une contamination de l'état noir par l'état couplé à la lumière et l'apparition d'un déplacement de fréquence associée à la résonance. Les trois déplacements de fréquence évoqués plus haut sont alors clairement responsables d'un déplacement de fréquence du minimum de la résonance bien que cette position soit rigoureusement définie par le minimum de la solution Eq. 2.66. On donne l'expression de ces trois déplacements de fréquence :

Le déplacement (f1) associé au déplacement lumineux des niveaux atomiques :

$$\Delta_{f1} = \frac{\frac{2}{\gamma_{c1}\gamma_{c2}} \frac{\Delta_1\Gamma_{31}\gamma_{c2}\Omega_2^4 - \Delta_2\Gamma_{32}\gamma_{c1}\Omega_1^4}{\Gamma_{32}\gamma_{c2}\Omega_1^2 + \Gamma_{31}\gamma_{c1}\Omega_2^2}}{1 + (3 - \frac{\Gamma_{31} + \Gamma_{32}}{\gamma_{c1} + \gamma_{c2}})S + \frac{\Omega_2^2\Gamma_{31}\gamma_{c2}\Delta_1^2 + \Omega_1^2\Gamma_{32}\gamma_{c1}\Delta_2^2}{\gamma_{c1}\gamma_{c2}(\Omega_1^2\Gamma_{32}\gamma_{c2} + \Omega_2^2\Gamma_{31}\gamma_{c1})}} \quad (2.71)$$

puis le déplacement (f2) associé à la présence d'une relaxation différentielle des cohérences optiques :

$$\Delta_{f2} = -\frac{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})S \frac{(\gamma_{c1} - \gamma_{c2})(\gamma_{c2}\Delta_1 + \gamma_{c1}\Delta_2)}{2\gamma_{c1}\gamma_{c2}(\gamma_{c1} + \gamma_{c2})}}{1 + (3 - \frac{\Gamma_{31} + \Gamma_{32}}{\gamma_{c1} + \gamma_{c2}})S + \frac{\Omega_2^2\Gamma_{31}\gamma_{c2}\Delta_1^2 + \Omega_1^2\Gamma_{32}\gamma_{c1}\Delta_2^2}{\gamma_{c1}\gamma_{c2}(\Omega_1^2\Gamma_{32}\gamma_{c2} + \Omega_2^2\Gamma_{31}\gamma_{c1})}} \quad (2.72)$$

et enfin le déplacement (f3) associé à la présence d'une relaxation de la cohérence Raman :

$$\Delta_{f3} = -\frac{\gamma_c S \frac{\Gamma_{31}\Delta_1 - \Gamma_{32}\Delta_2}{2\gamma_{c1}\gamma_{c2}}}{1 + (3 - \frac{\Gamma_{31} + \Gamma_{32}}{\gamma_{c1} + \gamma_{c2}})S + \frac{\Omega_2^2\Gamma_{31}\gamma_{c2}\Delta_1^2 + \Omega_1^2\Gamma_{32}\gamma_{c1}\Delta_2^2}{\gamma_{c1}\gamma_{c2}(\Omega_1^2\Gamma_{32}\gamma_{c2} + \Omega_2^2\Gamma_{31}\gamma_{c1})}} + \frac{\gamma_c S (\Gamma_{31} + \Gamma_{32}) \frac{\Delta_1 + \Delta_2}{2\gamma_{c1}\gamma_{c2}}}{1 + (3 - \frac{\Gamma_{31} + \Gamma_{32}}{\gamma_{c1} + \gamma_{c2}})S + \frac{\Omega_2^2\Gamma_{31}\gamma_{c2}\Delta_1^2 + \Omega_1^2\Gamma_{32}\gamma_{c1}\Delta_2^2}{\gamma_{c1}\gamma_{c2}(\Omega_1^2\Gamma_{32}\gamma_{c2} + \Omega_2^2\Gamma_{31}\gamma_{c1})}} \quad (2.73)$$

Le déplacement  $\Delta_{f1}$  présente une forme de courbe de dispersion en fonction de  $\Delta_1 = \Delta_2 \sim \Delta_0$  qui s'annule pour  $\Delta_0 = 0$ . C'est le déplacement lumineux [117] que l'on associe généralement au déphasage induit par la cohérence à 2 photons  $\rho_{12}$  [66, 118, 119]. Il peut être annulé par un choix convenable des pulsations de Rabi reliées aux coefficients de couplage des transitions optiques. Le déplacement  $\Delta_{f2}$  apparait lorsque les taux de relaxation des cohérences optiques sont déséquilibrés par des processus d'amortissement qui n'affectent pas de la même manière les deux couplages optiques (par exemple des fuites sur

chaque niveau d'horloge). Dans ce cas, le déséquilibre induit un déplacement de fréquence de la transition. Le dernier terme  $\Delta_{f3}$ , proportionnel à  $\gamma_c$ , est responsable d'un couplage atome-champ sous l'effet des processus de collisions extérieures (collisions atome-atome ou contre les parois d'une cellule par exemple).

### 2.5.3 Déplacement de fréquence de la résonance noire

On peut introduire de manière perturbative les déplacements lumineux induits par des couplages extérieurs  $\eta_1, \eta_2$  dans la définition des désaccords optiques tel que  $\Delta_1 = \Delta_0 + \eta_1$  et  $\Delta_2 = \Delta_0 + \eta_2 - \delta_r$ . Il est facile de vérifier que la solution de Eq. 2.66 est maintenant nulle pour  $\delta_r = \eta_2 - \eta_1$  lorsque  $\gamma_c = 0$ . La détermination approximative du minimum de la résonance noire  $\delta\nu_{33}$  est donnée au premier ordre en  $\delta_r$  par la dérivée de l'expression Eq.2.66 par rapport à  $\Delta_1 - \Delta_2 \ll \Delta_1, \Delta_2$  :

$$\delta\nu_{33} \approx \frac{d\rho_{33}^{stat}}{d(\Delta_1 - \Delta_2)} = 0 \quad (2.74)$$

Le calcul de la dérivée conduit au déplacement de fréquence de la résonance noire :

$$\delta\nu_{33} \sim \eta_2 - \eta_1 - \frac{\Gamma_{eff}^2 + \gamma_c(\gamma_c + 2(\gamma_{c1} + \gamma_{c2})S^*)}{2\Delta_f} \times \left[ 1 - \sqrt{1 + 4 \frac{\gamma_c(\gamma_c + 2(\gamma_{c1} + \gamma_{c2})S^*)\Delta_f^2}{(\Gamma_{eff}^2 + \gamma_c(\gamma_c + 2(\gamma_{c1} + \gamma_{c2})S^*))^2}} \right] \quad (2.75)$$

qui peut se réduire pour  $\Delta_f \ll \Gamma_{eff}$  à :

$$\delta\nu_{33} \sim \eta_2 - \eta_1 + \frac{\gamma_c(\gamma_c + 2(\gamma_{c1} + \gamma_{c2})S^*)}{\Gamma_{eff}^2 + \gamma_c(\gamma_c + 2(\gamma_{c1} + \gamma_{c2})S^*)} \Delta_f \quad (2.76)$$

On remarque que le déplacement n'est pas nul pour un taux de relaxation  $\gamma_c = 0$  de la cohérence Raman puisque l'on a introduit aussi l'effet de déplacement lumineux différentiel  $\eta_2 - \eta_1$ . Lorsque cette relaxation n'est plus nulle, la formule Eq. 2.76 montre que ce déplacement reste linéaire avec l'intensité laser et directement proportionnel au déplacement lumineux  $\Delta_f$  calculé au paragraphe précédent.

### 2.5.4 Résonance noire dans l'état fondamental et déplacement de fréquence associé lorsque $\Gamma_{31} \neq \Gamma_{32}$

La Résonance noire (ou le processus EIT) est usuellement associée à la disparition de la fluorescence sur la variable  $\rho_{33}$  autour d'une étroite fenêtre centrée sur la condition de résonance Raman  $\Delta_1 = \Delta_2$ . Toutefois, lorsque l'asymétrie du rapport de branchement par émission spontanée existe  $\tilde{\Upsilon} \neq 0$ , il y a un phénomène de pompage optique différentiel entre les états de plus faible énergie qui entre en compétition avec le piégeage cohérent de population. On peut alors examiner le transfert de population atomique entre les états  $|1\rangle$  et  $|2\rangle$ . Cette transition avait déjà été remarquée par [120] dans une étude numérique des équations de Bloch à 3 niveaux. Nous avons établi la forme analytique exacte correspondant à la solution stationnaire des populations  $\rho_{11}$  et  $\rho_{22}$ . Ces solutions peuvent s'écrire en fonction

des parties réelle et imaginaire de la cohérence Raman  $\rho_{12}$  sous la forme suivante :

$$\rho_{11}^{stat} = \frac{1}{2} \left( 1 - \frac{2\Omega_1\Omega_2 \left[ \left( \frac{(1-\tilde{\Upsilon})\Delta_1}{\Delta_1^2+\gamma_{c1}^2} + \frac{(1+\tilde{\Upsilon})\Delta_2}{\Delta_2^2+\gamma_{c2}^2} \right) Im\{\rho_{12}\} + \left( \frac{(1-\tilde{\Upsilon})\gamma_{c1}}{\Delta_1^2+\gamma_{c1}^2} - \frac{(1+\tilde{\Upsilon})\gamma_{c2}}{\Delta_2^2+\gamma_{c2}^2} \right) Re\{\rho_{12}\} \right]}{\frac{(1-\tilde{\Upsilon})\Omega_1^2\gamma_{c1}}{\Delta_1^2+\gamma_{c1}^2} + \frac{(1+\tilde{\Upsilon})\Omega_2^2\gamma_{c2}}{\Delta_2^2+\gamma_{c2}^2}} - \frac{\frac{(1-\tilde{\Upsilon})\Omega_1^2\gamma_{c1}}{\Delta_1^2+\gamma_{c1}^2} - \frac{(1+\tilde{\Upsilon})\Omega_2^2\gamma_{c2}}{\Delta_2^2+\gamma_{c2}^2}}{\frac{(1-\tilde{\Upsilon})\Omega_1^2\gamma_{c1}}{\Delta_1^2+\gamma_{c1}^2} + \frac{(1+\tilde{\Upsilon})\Omega_2^2\gamma_{c2}}{\Delta_2^2+\gamma_{c2}^2}} - \rho_{33} \right) \quad (2.77)$$

$$\rho_{22}^{stat} = \frac{1}{2} \left( 1 + \frac{2\Omega_1\Omega_2 \left[ \left( \frac{(1-\tilde{\Upsilon})\Delta_1}{\Delta_1^2+\gamma_{c1}^2} + \frac{(1+\tilde{\Upsilon})\Delta_2}{\Delta_2^2+\gamma_{c2}^2} \right) Im\{\rho_{12}\} + \left( \frac{(1-\tilde{\Upsilon})\gamma_{c1}}{\Delta_1^2+\gamma_{c1}^2} - \frac{(1+\tilde{\Upsilon})\gamma_{c2}}{\Delta_2^2+\gamma_{c2}^2} \right) Re\{\rho_{12}\} \right]}{\frac{(1-\tilde{\Upsilon})\Omega_1^2\gamma_{c1}}{\Delta_1^2+\gamma_{c1}^2} + \frac{(1+\tilde{\Upsilon})\Omega_2^2\gamma_{c2}}{\Delta_2^2+\gamma_{c2}^2}} + \frac{\frac{(1-\tilde{\Upsilon})\Omega_1^2\gamma_{c1}}{\Delta_1^2+\gamma_{c1}^2} - \frac{(1+\tilde{\Upsilon})\Omega_2^2\gamma_{c2}}{\Delta_2^2+\gamma_{c2}^2}}{\frac{(1-\tilde{\Upsilon})\Omega_1^2\gamma_{c1}}{\Delta_1^2+\gamma_{c1}^2} + \frac{(1+\tilde{\Upsilon})\Omega_2^2\gamma_{c2}}{\Delta_2^2+\gamma_{c2}^2}} - \rho_{33} \right) \quad (2.78)$$

avec  $Re\{\rho_{12}\}$  et  $Im\{\rho_{12}\}$  développées dans l'**annexe C**. Plusieurs remarques sont nécessaires. On peut négliger la variable  $\rho_{33}$  qui n'excède jamais quelques  $10^{-2}$  à  $10^{-8}$  pour des pulsations de Rabi faible devant  $\Gamma_{31}$ ,  $\Gamma_{32}$ ,  $\gamma_{c1}$ ,  $\gamma_{c2}$ . Ensuite, si l'on se place exactement à résonance  $\Delta_1 = \Delta_2 = 0$ , la distribution des populations sur les deux niveaux d'horloge devient :

$$\begin{pmatrix} \rho_{11}^{stat} \\ \rho_{22}^{stat} \end{pmatrix} \approx \frac{1}{2} \left[ 1 \mp \left( \frac{\frac{(1-\tilde{\Upsilon})\Omega_1^2}{\gamma_{c1}} - \frac{(1+\tilde{\Upsilon})\Omega_2^2}{\gamma_{c2}}}{\frac{(1-\tilde{\Upsilon})\Omega_1^2}{\gamma_{c1}} + \frac{(1+\tilde{\Upsilon})\Omega_2^2}{\gamma_{c2}}} + 2\Omega_1\Omega_2 \frac{\frac{(1-\tilde{\Upsilon})}{\gamma_{c1}} - \frac{(1+\tilde{\Upsilon})}{\gamma_{c2}}}{\frac{(1-\tilde{\Upsilon})\Omega_1^2}{\gamma_{c1}} + \frac{(1+\tilde{\Upsilon})\Omega_2^2}{\gamma_{c2}}} Re\{\rho_{12}\} \right) \right] \quad (2.79)$$

Nous avons la valeur du transfert de population en fonction du rapport des pulsation de Rabi de chaque laser et de la quantité  $Re\{\rho_{12}\}$  calculée à résonance, soit pour les cas remarquables suivants :

- $\Omega_1 = \Omega_2 \rightarrow \rho_{11} = \rho_{22} = 1/2$  equipartition cohérente
- $\Omega_1 \gg \Omega_2 \rightarrow \rho_{11} = 0$  et  $\rho_{22} = 1$  inversion de population
- $\Omega_1 \ll \Omega_2 \rightarrow \rho_{11} = 1$  et  $\rho_{22} = 0$  inversion de population

en rappelant que  $Re\{\rho_{12}\} = -1/2$  lorsque  $\Omega_1 = \Omega_2$  et  $\gamma_c = 0$ .

On reproduit, sur les figures Fig. 2.12(a) et Fig. 2.12(b), le profil de résonance pour  $\Omega_1 = \Omega_2$  et  $\Omega_1 \gg \Omega_2$  lorsque le rapport de branchement par émission spontanée vaut  $\tilde{\Upsilon} \sim +1$ . Puis nous avons aussi tracé les figures Fig. 2.12(b) et (c) lorsque le rapport devient  $\tilde{\Upsilon} \sim -1$ . Sur la figure Fig. 2.12(a), l'inversion de population réalisée pour la configuration  $\tilde{\Upsilon} \sim +1$  est pratiquement complète pour  $\Omega_1 \gg \Omega_2$ . Mais la largeur de la résonance s'accroît aussi d'un quantité proportionnelle à  $\Omega_1^2$ . Lorsque  $\Omega_1 = \Omega_2$ , on retrouve l'équipartition cohérente des atomes sur les états  $|1\rangle$  et  $|2\rangle$ . Ce type d'inversion n'est réalisée que lorsque  $\Gamma_{31} \neq \Gamma_{32}$  et ouvre, par exemple, des nouvelles applications sur les alcalino-terreux ou les terres rares ayant un profil radiatif adapté.

## 2.6 Conclusion sur les résonances noires

L'étude du modèle de l'atome habillé a montré que la cascade radiative entre multiplicités habillées était interrompue par pompage optique des atomes dans l'état  $|\Psi_{NC}\rangle$ . A faible saturation optique et pour  $\Omega_1 \sim \Omega_2$ , la population du niveau intermédiaire  $|3\rangle$  est très peu peuplée et l'ensemble de la population est équirépartie sur les états d'horloge  $\rho_{11}, \rho_{22} \sim \frac{1}{2}$  comme le montre la figure Fig. 2.13. Cette situation décrit alors un ensemble atomique piégé dans une superposition cohérente des états d'horloge et évoluant naturellement à la pulsation d'horloge  $\omega_{21}$ . Le transfert de population entre les niveaux atomiques

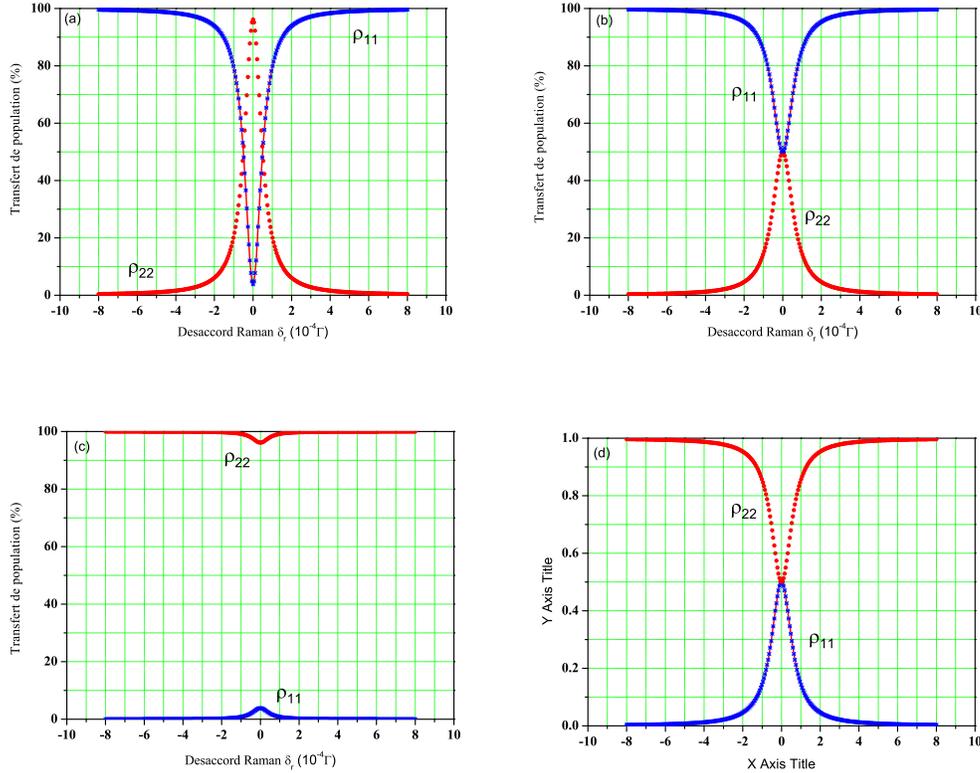


FIG. 2.12 – *Transfert de population entre les états  $|1\rangle$  et  $|2\rangle$ . (a) Inversion complète de population pour  $\Omega_1 = 0.005\Gamma$ ,  $\Omega_2 = 0.001\Gamma$  avec le rapport de branchement tel que  $\tilde{\Upsilon} \sim +1$ . (b) Equipartition des populations pour  $\Omega_1 = \Omega_2 = 0.004\Gamma$  avec le rapport de branchement tel que  $\tilde{\Upsilon} \sim +1$ . (c)  $\Omega_1 = 0.005\Gamma$ ,  $\Omega_2 = 0.001\Gamma$  mais avec le rapport de branchement tel que  $\tilde{\Upsilon} \sim -1$ . (d)  $\Omega_2 = \Omega_1 = 0.004\Gamma$  mais avec le rapport de branchement tel que  $\tilde{\Upsilon} \sim -1$ .*

peut se décrire par deux superpositions d'états qui définissent un système à deux niveaux effectif et qui dépend directement du rapport des pulsations de Rabi. La durée des impulsions CPT conduit à deux régimes d'évolution temporelle des variables atomiques. Le premier régime est défini par des impulsions de durée plus courte que le temps de pompage  $\tau_p$  des atomes dans l'état noir. L'élargissement est alors dominé par l'inverse du temps d'interaction de l'atome avec la lumière laser. Le second régime est stationnaire et est pratiquement atteint après un temps supérieur à  $\tau_p$ . La résonance présente dans ce cas un contraste maximal et une largeur à mi-hauteur qui dépend de la saturation optique. La sensibilité de la résonance noire aux déplacements de fréquence dépend de la présence ou non de termes de relaxation qui recouplent l'état noir avec le système atomique excité par les lasers. Notons que chaque couplage laser induit non seulement un déplacement lumineux sur sa propre

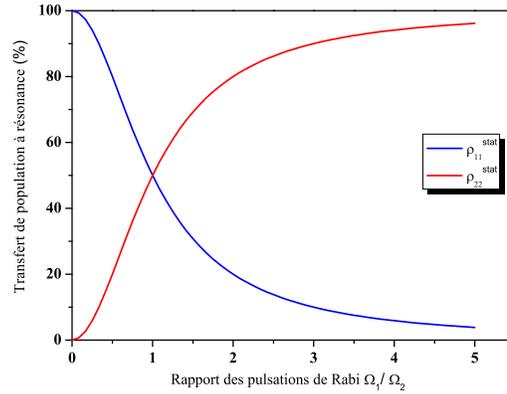


FIG. 2.13 – *Transfert de population entre les états  $|1\rangle$  et  $|2\rangle$  à résonance optique  $\Delta_1 = \Delta_2 = 0$  en fonction du rapport des pulsations de Rabi calculé par l'équation Eq. 2.79 quelque soit la valeur  $\tilde{\Upsilon} = 0, \pm 1$ .*

transition mais aussi sur la transition voisine. Enfin, le déplacement de Bloch-Siegert n'est pas introduit dans nos équations puisque les équations Eq.2.53 ont été développées à partir de l'approximation du champ tournant, ce qui masque l'effet des composantes évoluant à plus haute fréquence. Au travers de quelques articles théoriques sur la résonance noire en régime stationnaire [68, 112, 115] et les transitions à deux photons [98, 99, 100], la position en fréquence est le plus souvent associée à la résonance Raman (profil de Fano) et non à la résonance noire elle-même [106, 3]. En calculant exactement ce profil à partir des équations de Bloch-optiques, il a été possible de déterminer la position réelle  $\delta\nu_{33}$  du minimum de fluorescence. Ce minimum contient bien-sûr le déplacement lumineux induit par les lasers sur les deux niveaux d'horloge déjà établi par les articles précédents mais on a montré maintenant que cette correction dépend en fait directement du taux de relaxation  $\gamma_c$  de la cohérence Raman. Lorsque ce taux est nul, la résonance ne se déplace pas mais les ailes se déforment. On rappelle que le contraste de la résonance noire et sa largeur sont liés à la saturation optique du niveau intermédiaire. De faibles largeurs de raie entraînent des contrastes relativement faibles. Par contre, lorsque le rapport de branchement par émission spontanée est assymétrique  $\tilde{\Upsilon} \neq 0$ , un transfert complet de population est mis en évidence entre les états d'horloge même en présence de faible saturation optique. Une telle configuration atomique se retrouve dans les alcalino-terreux (Ca, Mg, Sr) et les terres rares (Yb) ainsi que les ions. Soulignons le dernier point fondamental concernant la dynamique du système à 3 niveaux et les temps caractéristiques d'évolution des observables : le temps de pompage optique dépend des pulsations lasers et la formation de la cohérence Raman est d'autant plus rapide que les intensités sont importantes. Il faut donc attendre plusieurs cycles de pompage optique avant d'atteindre le régime stationnaire décrit par les solutions Eq. 2.66, Eq. 2.77 et Eq. 2.78. Pour les alcalins et la raie D1 du Cs, ce temps est typiquement de l'ordre de 100  $\mu\text{s}$  avec des déplacements lumineux pouvant atteindre plusieurs dizaines de Hz. Pour les alcalino-terreux comme le  $^{88}\text{Sr}$  et la configuration des rapports de branchement telle que  $\tilde{\Upsilon} \sim +1$ , ce temps

typique de pompage peut atteindre 100 s avec des déplacements de quelques Hz. On peut ajouter qu'en pratique, la présence de légers déplacements de fréquence est presque toujours en relation avec une légère asymétrie des profils de résonance. Cet effet permet d'identifier rapidement la présence de déplacements lumineux sur les franges de résonance noire que nous décrivons dans les chapitres suivants.



## Chapitre 3

# Franges de résonance noire et déphasages optiques associés

*‘Le navigateur italien vient juste d’atteindre le nouveau monde’*

Arthur Compton à propos d’Enrico Fermi.

### 3.1 Introduction

Nous avons montré dans le chapitre 2 que les résonances noires pouvaient être bien décrites dans une base particulière du système atome-photon. L’atome oscille de manière amortie entre un état de faible durée de vie  $|\Psi_+\rangle$  couplé à la lumière laser et un état noir  $|\Psi_{NC}\rangle$  qui est un état piège parfait pour les atomes lorsque la condition de résonance Raman est respectée i.e  $\Delta_1 - \Delta_2 = 0$ . Le système atomique se comporte, dans une certaine mesure, comme un système effectif à deux niveaux avec relaxation. En régime stationnaire, on observe, par fluorescence ou par transmission optique, une résonance dont la largeur est déterminée principalement par la saturation optique du milieu atomique. L’amplitude de la résonance dépend aussi directement des intensités lasers. Afin de découpler ce phénomène d’élargissement par saturation du contraste (cf équation 2.35 et équation 2.34 du chapitre 2), on propose d’appliquer la méthode d’interrogation de Ramsey à l’aide d’impulsions CPT séparées temporellement. Cette méthode a l’avantage de laisser évoluer librement les superpositions d’états à la fin de la première impulsion et de sonder le déphasage accumulé au cours du vol libre à l’aide d’une seconde impulsion CPT. Notre chapitre présente d’abord la séquence d’interrogation des atomes appelée *séquence Raman-Ramsey* avec des impulsions CPT. Nous montrons que la description complète de la séquence temporelle passe obligatoirement par une représentation en terme de matrice densité. Le second modèle analytique repose sur l’évolution temporelle de la fonction d’onde de Schrödinger. Ce modèle est suffisant pour décrire l’état de l’atome lorsque celui-ci n’a pas atteint le régime stationnaire. Ce dernier modèle permet de déterminer avec précision les éventuelles déphasages accumulés par la fonction d’onde atomique pendant les interactions avec la lumière laser. Il

est en grande partie fortement inspiré par le traitement analytique des transitions Raman stimulées [57, 104].

### 3.2 Le modèle fermé : formalisme de la matrice densité

La description de l'interaction en régime impulsif par la matrice densité permet de modéliser les franges de résonance noire. Le système est ici fermé, c'est à dire que la population atomique est conservée tout au long de la séquence d'interrogation. On rappelle l'ensemble des équations de base pour décrire l'interaction entre l'atome et le champ laser CPT à faible saturation optique :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{d\Delta n(t)}{dt} = 2(\Upsilon - 1)\Omega_1 \text{Im} \left\{ \frac{\Omega_1(\frac{3}{2}\rho_{33}(t) - \frac{1-\Delta n(t)}{2}) - \Omega_2\rho_{12}(t)}{\Delta_1 - i\gamma_{c1}} \right\} \\ \quad + 2(\Upsilon + 1)\Omega_2 \text{Im} \left\{ \frac{\Omega_2(\frac{3}{2}\rho_{33}(t) - \frac{1+\Delta n(t)}{2}) - \Omega_1\rho_{12}^*(t)}{\Delta_2 - i\gamma_{c2}} \right\} \\ \frac{d\rho_{12}(t)}{dt} = -i(\Delta_1 - \Delta_2 - \nu\gamma_c)\rho_{12}(t) - i\Omega_2 \left[ \frac{\Omega_1(\frac{3}{2}\rho_{33}(t) - \frac{1-\Delta n(t)}{2}) - \Omega_2\rho_{12}(t)}{\Delta_1 - i\gamma_{c1}} \right] \\ \quad + i\Omega_1 \left[ \frac{\Omega_2(\frac{3}{2}\rho_{33}(t) - \frac{1+\Delta n(t)}{2}) - \Omega_1\rho_{12}(t)}{\Delta_2 + i\gamma_{c2}} \right] \end{array} \right. \quad (3.1)$$

$$\rho_{33}(t) = \frac{\frac{\Omega_2^2\gamma_{c2}(\Delta n(t)+1)}{(\Gamma_{31}+\Gamma_{32})(\Delta_2^2+\gamma_{c2}^2)} - \frac{\Omega_1^2\gamma_{c1}(\Delta n(t)-1)}{(\Gamma_{31}+\Gamma_{32})(\Delta_1^2+\gamma_{c1}^2)}}{1 + \frac{3\Omega_1^2\gamma_{c1}}{(\Gamma_{31}+\Gamma_{32})(\Delta_1^2+\gamma_{c1}^2)} + \frac{3\Omega_2^2\gamma_{c2}}{(\Gamma_{31}+\Gamma_{32})(\Delta_2^2+\gamma_{c2}^2)}} + \frac{2\Omega_1\Omega_2 \left( \frac{\gamma_{c1}\text{Re}\{\rho_{12}(t)\} + \Delta_1\text{Im}\{\rho_{12}(t)\}}{(\Gamma_{31}+\Gamma_{32})(\Delta_1^2+\gamma_{c1}^2)} + \frac{\gamma_{c2}\text{Re}\{\rho_{12}(t)\} - \Delta_2\text{Im}\{\rho_{12}(t)\}}{(\Gamma_{31}+\Gamma_{32})(\Delta_2^2+\gamma_{c2}^2)} \right)}{1 + \frac{3\Omega_1^2\gamma_{c1}}{(\Gamma_{31}+\Gamma_{32})(\Delta_1^2+\gamma_{c1}^2)} + \frac{3\Omega_2^2\gamma_{c2}}{(\Gamma_{31}+\Gamma_{32})(\Delta_2^2+\gamma_{c2}^2)}} \quad (3.2)$$

La conservation de la population ne porte que sur les variables  $\rho_1(t) + \rho_2(t) = 1$ . En régime purement radiatif, les cohérences optiques se relaxent avec un taux d'amortissement égal à la moitié du taux de relaxation par émission spontanée  $\gamma_{c1} = \gamma_{c2} = \Gamma/2$ . Ces équations d'évolutions permettent de calculer les profils de résonance lorsque les pulsations de Rabi  $\Omega_1$  et  $\Omega_2$  restent faibles ou comparables devant la relaxation  $\Gamma$  du niveau excité. La variable  $\rho_{33}(t)$  étant asservie sur la différence de population  $\Delta n(t)$  et la cohérence Raman  $\rho_{12}(t)$ , la méthode des matrices présentée dans l'**annexe B** s'applique toujours.

#### 3.2.1 La séquence d'interrogation avec des impulsions CPT

On remplace maintenant l'interaction directe des atomes avec un champ électromagnétique par une impulsion CPT. La totalité de la séquence est schématiquement représentée sur la figure Fig. 3.1. La très forte similitude entre un système à 2 niveaux du chapitre 1 et la représentation dans la base  $\{|\Psi_+\rangle, |\Psi_{NC}\rangle\}$  nous a conduit à imaginer une séquence d'interrogation de la transition d'horloge analogue à celle de Ramsey. En suivant la méthode de

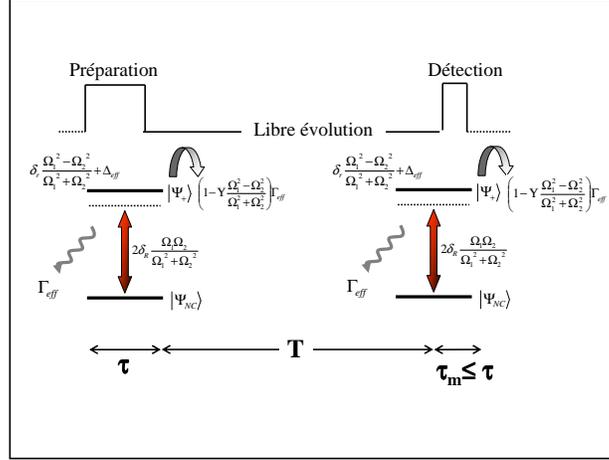


FIG. 3.1 – *Analogie de la séquence d'interrogation de Ramsey appliquée avec des impulsions lasers CPT.*

calcul du chapitre 1, les variables atomiques du système à 2 niveaux s'écrivent :

$$\begin{pmatrix} Re\{\rho_{12}(\tau, T, \tau_m)\} \\ Im\{\rho_{12}(\tau, T, \tau_m)\} \\ W(\tau, T, \tau_m) \end{pmatrix} = \exp[R \cdot \tau_m] \left[ e^{-\gamma_c T} \begin{pmatrix} Re\{\rho_{12}(\tau)\} \cos(\delta_r T) + Im\{\rho_{12}(\tau)\} \sin(\delta_r T) \\ -Re\{\rho_{12}(\tau)\} \tau \sin(\delta_r T) + Im\{\rho_{12}(\tau)\} \cos(\delta_r T) \\ W(\tau) \end{pmatrix} - M_{\tau_m}^{stat} \right] + M_{\tau_m}^{stat} \quad (3.3)$$

On constate immédiatement qu'une seconde impulsion de durée très courte  $\tau_m \mapsto 0$  est suffisante (l'aire de l'impulsion n'a pas d'importance) pour réaliser des oscillations cohérentes sur la variable  $\rho_{33}(\tau, T, \tau_m)$  ou les cohérences optiques. Par contre, l'équation Eq. 3.3 suggère que les oscillations  $\propto \delta_r T$  ne seront visibles sur les populations d'horloge que pour une durée  $\tau_m > 0$ . Il faut attendre un certain temps avant que les variables  $Im\rho_{12}(\tau, T)$  et  $Re\rho_{12}(\tau, T)$  ne soient à nouveau mélangées avec  $\Delta n(\tau)$  et produisent le spectre d'interférences. L'optimisation temporelle de la séquence d'interrogation sera donc différente pour la population excitée ou les populations d'horloge. En remplaçant les fonctions sinusoidales par les formules trigonométriques d'Euler et en factorisant le résultant sous la forme d'un nombre complexe, on peut écrire sous forme compacte l'expression Eq. 3.3 et obtenir les différentes probabilités tel que avec  $i = 1, 2, 3$  :

$$\rho_{ij}(\tau, T, \tau_m) = \alpha_{ij}(\tau, \tau_m) \left( 1 + \beta_{ij}(\tau, \tau_m) e^{-\gamma_c T} \text{Cos}[\delta_r T - \Phi_{ij}(\tau, \tau_m)] \right) \quad (3.4)$$

avec  $\alpha_{ij}(\tau, \tau_m)$ ,  $\beta_{ij}(\tau, \tau_m)$  qui contiennent des fonctions exponentielles amorties [54]. La condition de résonance raman sans champ laser est introduite par le terme de balayage  $\delta_r$ . La présence d'un déphasage de la frange centrale  $\Phi_{ij}(\tau, \tau_m)$  dépend entre autre des parties imaginaire et réelle de la cohérence Raman  $\rho_{12}$  [109]. Ce déphasage est étudié dans les paragraphes suivants à partir de la matrice densité et de la fonction d'onde complexe. Il est à l'origine d'un léger déplacement de fréquence de la transition d'horloge.

### 3.2.2 Solution exacte pour une impulsion de préparation de durée $\tau$ et une impulsion de détection courte $\tau_m \mapsto 0$

On applique une première impulsion de durée  $\tau/\tau_p \gg 1$  qui vide les atomes de l'état  $|\Psi_+\rangle$  pour les piéger après quelques cycles de pompage optique dans l'état noir  $|\Psi_{NC}\rangle$ . Puis on coupe les faisceaux cohérents et on laisse la superposition d'état  $|\Psi_{NC}\rangle$  évoluer sans lumière en fonction du désaccord  $\delta_r$ . Enfin, on applique une seconde impulsion de très courte durée  $\tau_m/\tau_p \mapsto 0$  qui sonde le déphasage accumulé pendant le temps d'évolution libre  $T$ . On détermine alors les solutions exactes pour la population excitée  $\rho_{33}(\tau, T)$  ainsi que les parties imaginaires  $Im\{\rho_{13}(\tau, T)\}$ ,  $Im\{\rho_{23}(\tau, T)\}$  des cohérences optiques responsables de l'absorption des faisceaux lasers à travers la vapeur atomique :

$$\begin{aligned} \rho_{33}(\tau, T) = & \left( \frac{\Omega_2^2 \gamma_{c2} (\Delta n(\tau) + 1)}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)} - \frac{\Omega_1^2 \gamma_{c1} (\Delta n(\tau) - 1)}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)} \right) \\ & + \left( \frac{2\Omega_1 \Omega_2 \Delta_1}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)} - \frac{2\Omega_1 \Omega_2 \Delta_2}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)} \right) e^{-\gamma_c T} \left\{ \begin{array}{l} Im\{\rho_{12}(\tau)\} Cos(\delta_r T) \\ -Re\{\rho_{12}(\tau)\} Sin(\delta_r T) \end{array} \right\} \\ & + \left( \frac{2\Omega_1 \Omega_2 \gamma_{c1}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)} + \frac{2\Omega_1 \Omega_2 \gamma_{c2}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)} \right) e^{-\gamma_c T} \left\{ \begin{array}{l} Re\{\rho_{12}(\tau)\} Cos(\delta_r T) \\ +Im\{\rho_{12}(\tau)\} Sin(\delta_r T) \end{array} \right\} \end{aligned} \quad (3.5)$$

$$\begin{aligned} Im\{\rho_{13}(\tau, T)\} = & \frac{\Omega_1 \gamma_{c1}}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} \times \left[ \frac{3}{2} \left( \frac{\Omega_2^2 \gamma_{c2} (\Delta n(\tau) + 1)}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)} - \frac{\Omega_1^2 \gamma_{c1} (\Delta n(\tau) - 1)}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)} \right) - \frac{(1 - \Delta n(\tau))}{2} \right. \\ & + \left( \frac{3\Omega_1^2 \Omega_2 \gamma_{c1} \left( \frac{\gamma_{c1}}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} + \frac{\gamma_{c2}}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} \right)}{1 + \frac{3\Omega_1^2 \gamma_{c1}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)} + \frac{3\Omega_2^2 \gamma_{c2}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)}} - \Omega_2 \gamma_{c1} \right) e^{-\gamma_c T} \left\{ \begin{array}{l} Re\{\rho_{12}(\tau)\} Cos(\delta_r T) \\ +Im\{\rho_{12}(\tau)\} Sin(\delta_r T) \end{array} \right\} \\ & \left. + \left( \frac{3\Omega_1^2 \Omega_2 \gamma_{c1} \left( \frac{\Delta_1}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} - \frac{\Delta_2}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} \right)}{1 + \frac{3\Omega_1^2 \gamma_{c1}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)} + \frac{3\Omega_2^2 \gamma_{c2}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)}} - \Omega_2 \Delta_1 \right) e^{-\gamma_c T} \left\{ \begin{array}{l} Im\{\rho_{12}(\tau)\} Cos(\delta_r T) \\ -Re\{\rho_{12}(\tau)\} Sin(\delta_r T) \end{array} \right\} \right] \end{aligned} \quad (3.6)$$

$$\begin{aligned}
 \text{Im}\{\rho_{23}(\tau, T)\} = & \\
 & \frac{\Omega_2 \gamma_{c2}}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} \times \left[ \frac{\frac{3}{2} \left( \frac{\Omega_2^2 \gamma_{c2} (\Delta n(\tau) + 1)}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)} - \frac{\Omega_1^2 \gamma_{c1} (\Delta n(\tau) - 1)}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)} \right)}{1 + \frac{3\Omega_1^2 \gamma_{c1}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)} + \frac{3\Omega_2^2 \gamma_{c2}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)}} - \frac{(1 + \Delta n(\tau))}{2} \right. \\
 & + \left( \frac{3\Omega_2^2 \Omega_1 \gamma_{c2} \left( \frac{\gamma_{c1}}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} + \frac{\gamma_{c2}}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} \right)}{1 + \frac{3\Omega_1^2 \gamma_{c1}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)} + \frac{3\Omega_2^2 \gamma_{c2}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)}} - \Omega_1 \gamma_{c2} \right) e^{-\gamma_c T} \left\{ \begin{array}{l} \text{Re}\{\rho_{12}(\tau)\} \text{Cos}(\delta_r T) \\ + \text{Im}\{\rho_{12}(\tau)\} \text{Sin}(\delta_r T) \end{array} \right\} \\
 & + \left( \frac{3\Omega_2^2 \Omega_1 \gamma_{c2} \left( \frac{\Delta_1}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} - \frac{\Delta_2}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} \right)}{1 + \frac{3\Omega_1^2 \gamma_{c1}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)} + \frac{3\Omega_2^2 \gamma_{c2}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)}} + \Omega_1 \Delta_2 \right) e^{-\gamma_c T} \left\{ \begin{array}{l} \text{Im}\{\rho_{12}(\tau)\} \text{Cos}(\delta_r T) \\ - \text{Re}\{\rho_{12}(\tau)\} \text{Sin}(\delta_r T) \end{array} \right\} \left. \right] \quad (3.7)
 \end{aligned}$$

En utilisant l'expression Eq. 3.5, on peut obtenir une formulation plus adaptée (voir Eq. 3.4) qui met en évidence l'enveloppe des franges et le déphasage associé à la frange centrale. On obtient après calcul les nouvelles expressions :

$$\begin{aligned}
 \rho_{33}(\tau, T) = & \\
 & \left( \frac{\frac{\Omega_2^2 \gamma_{c2} (\Delta n(\tau) + 1)}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)} - \frac{\Omega_1^2 \gamma_{c1} (\Delta n(\tau) - 1)}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)}}{1 + \frac{3\Omega_1^2 \gamma_{c1}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)} + \frac{3\Omega_2^2 \gamma_{c2}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)}} \right) \times \left( 1 - \frac{|\rho_{12}(\tau)| \sqrt{(\mu_\gamma^{33})^2 + (\mu_\Delta^{33})^2}}{\frac{\Omega_2^2 \gamma_{c2} (\Delta n(\tau) + 1)}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)} - \frac{\Omega_1^2 \gamma_{c1} (\Delta n(\tau) - 1)}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)}} e^{-\gamma_c T} \cos[\delta_r T - \Phi_{33}(\tau)] \right) \quad (3.8)
 \end{aligned}$$

Le terme  $\Phi_{33}(\tau)$  associé au déphasage de la frange centrale s'écrit :

$$\begin{aligned}
 \Phi_{33}(\tau) = \arctan & \left[ \frac{\mu_\gamma^{33} \text{Im}\{\rho_{12}(\tau)\} - \mu_\Delta^{33} \text{Re}\{\rho_{12}(\tau)\}}{\mu_\gamma^{33} \text{Re}\{\rho_{12}(\tau)\} + \mu_\Delta^{33} \text{Im}\{\rho_{12}(\tau)\}} \right] \\
 \mu_\gamma^{33} = \frac{2\Omega_1 \Omega_2}{\Gamma_{31} + \Gamma_{32}} & \left( \frac{\gamma_{c1}}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} + \frac{\gamma_{c2}}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} \right) \quad \mu_\Delta^{33} = \frac{2\Omega_1 \Omega_2}{\Gamma_{31} + \Gamma_{32}} \left( \frac{\Delta_1}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} - \frac{\Delta_2}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} \right) \quad (3.9)
 \end{aligned}$$

Le profil de la partie imaginaire  $\text{Im}\{\rho_{13}(\tau)\}$  de la cohérence optique sur la transition  $|1\rangle \leftrightarrow |3\rangle$  s'écrit :

$$\begin{aligned}
 \text{Im}\{\rho_{13}(\tau, T)\} = & \left[ \frac{\frac{3\Omega_1 \gamma_{c1}}{2(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)} \left( \frac{\Omega_2^2 \gamma_{c2} (\Delta n(\tau) + 1)}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)} - \frac{\Omega_1^2 \gamma_{c1} (\Delta n(\tau) - 1)}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)} \right) - \frac{\Omega_1 \gamma_{c1} (1 - \Delta n(\tau))}{2(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)}}{1 + \frac{3\Omega_1^2 \gamma_{c1}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)} + \frac{3\Omega_2^2 \gamma_{c2}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)}} \right] \\
 & \times \left[ 1 - \frac{|\rho_{12}(\tau)| \sqrt{(\mu_\gamma^{13})^2 + (\mu_\Delta^{13})^2}}{1 + \frac{3\Omega_1 \gamma_{c1}}{2(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)} \left( \frac{\Omega_2^2 \gamma_{c2} (\Delta n(\tau) + 1)}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)} - \frac{\Omega_1^2 \gamma_{c1} (\Delta n(\tau) - 1)}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)} \right) - \frac{\Omega_1 \gamma_{c1} (1 - \Delta n(\tau))}{2(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)}} e^{-\gamma_c T} \cos[\delta_r T - \Phi_{13}(\tau)] \right] \quad (3.10)
 \end{aligned}$$

Le terme  $\Phi_{13}(\tau)$  associé au déphasage de la frange centrale s'écrit :

$$\Phi_{13}(\tau) = \arctan \left[ \frac{\mu_\gamma^{13} \operatorname{Im}\{\rho_{12}(\tau)\} - \mu_\Delta^{13} \operatorname{Re}\{\rho_{12}(\tau)\}}{\mu_\gamma^{13} \operatorname{Re}\{\rho_{12}(\tau)\} + \mu_\Delta^{13} \operatorname{Im}\{\rho_{12}(\tau)\}} \right]$$

$$\mu_\gamma^{13} = \frac{\frac{3\Omega_1\gamma_{c1}}{2(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)} (\mu_\gamma^{33})}{1 + \frac{3\Omega_1^2\gamma_{c1}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)} + \frac{3\Omega_2^2\gamma_{c2}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)}} - \frac{\Omega_2\gamma_{c1}}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} \quad (3.11)$$

$$\mu_\Delta^{13} = \frac{\frac{3\Omega_1\gamma_{c1}}{2(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)} (\mu_\Delta^{33})}{1 + \frac{3\Omega_1^2\gamma_{c1}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)} + \frac{3\Omega_2^2\gamma_{c2}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)}} - \frac{\Omega_2\Delta_1}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2}$$

Le profil de la partie imaginaire  $\operatorname{Im}\{\rho_{23}(\tau)\}$  de la cohérence optique sur la transition  $|2\rangle \leftrightarrow |3\rangle$  s'écrit :

$$\operatorname{Im}\{\rho_{23}(\tau, T)\} = \left[ \frac{\frac{3\Omega_2\gamma_{c2}}{2(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)} \left( \frac{\Omega_2^2\gamma_{c2}(\Delta n(\tau)+1)}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)} - \frac{\Omega_1^2\gamma_{c1}(\Delta n(\tau)-1)}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)} \right)}{1 + \frac{3\Omega_1^2\gamma_{c1}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)} + \frac{3\Omega_2^2\gamma_{c2}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)}} - \frac{\Omega_2\gamma_{c2}(1 + \Delta n(\tau))}{2(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)} \right]$$

$$\times \left[ 1 - \frac{|\rho_{12}(\tau)| \sqrt{(\mu_\gamma^{23})^2 + (\mu_\Delta^{23})^2}}{1 + \frac{3\Omega_1\gamma_{c1}}{2(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)} \left( \frac{\Omega_2^2\gamma_{c2}(\Delta n(\tau)+1)}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)} - \frac{\Omega_1^2\gamma_{c1}(\Delta n(\tau)-1)}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)} \right) - \frac{\Omega_1\gamma_{c1}(1 - \Delta n(\tau))}{2(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)}}} e^{-\gamma c T} \cos[\delta_r T - \Phi_{23}(\tau)] \right] \quad (3.12)$$

Le terme  $\Phi_{23}(\tau)$  associé au déphasage de la frange centrale s'écrit :

$$\Phi_{13}(\tau) = \arctan \left[ \frac{\mu_\gamma^{23} \operatorname{Im}\{\rho_{12}(\tau)\} - \mu_\Delta^{23} \operatorname{Re}\{\rho_{12}(\tau)\}}{\mu_\gamma^{23} \operatorname{Re}\{\rho_{12}(\tau)\} + \mu_\Delta^{23} \operatorname{Im}\{\rho_{12}(\tau)\}} \right]$$

$$\mu_\gamma^{23} = \frac{\frac{3\Omega_2\gamma_{c2}}{2(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)} (\mu_\gamma^{33})}{1 + \frac{3\Omega_1^2\gamma_{c1}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)} + \frac{3\Omega_2^2\gamma_{c2}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)}} - \frac{\Omega_1\gamma_{c2}}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} \quad (3.13)$$

$$\mu_\Delta^{23} = \frac{\frac{3\Omega_2\gamma_{c2}}{2(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)} (\mu_\Delta^{33})}{1 + \frac{3\Omega_1^2\gamma_{c1}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)} + \frac{3\Omega_2^2\gamma_{c2}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)}} + \frac{\Omega_1\Delta_2}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2}$$

Lorsque l'impulsion de préparation devient suffisamment longue pour porter l'ensemble des atomes dans l'état noir, la solution stationnaire est atteinte à la fin de la première impulsion. On peut donc remplacer les variables dynamiques par les expressions stationnaires de la différence de population  $\Delta n^{stat}$  et de la cohérence Raman  $\rho_{12}^{stat}$  calculées dans **l'annexe C**. La résonance noire, signature spectrale du CPT, apparaît dans le profil de fluorescence du niveau intermédiaire comme le montre la figure Fig. 3.2(a). Lorsque la condition de résonance entre les fréquences lasers et tous les niveaux d'énergie est respectée, la fluorescence s'annule complètement. Toutefois, après une configuration impulsioneille de type Ramsey comme sur la figure Fig. 3.2(b), les ailes de la résonance présentent des oscillations typiques d'un phénomène d'excitation cohérente. Les oscillations à l'intérieur de l'enveloppe définie par le profil spectral stationnaire de la résonance noire présentent une période similaire à la loi de Ramsey  $12/T$ . Il est important de constater que la largeur de la

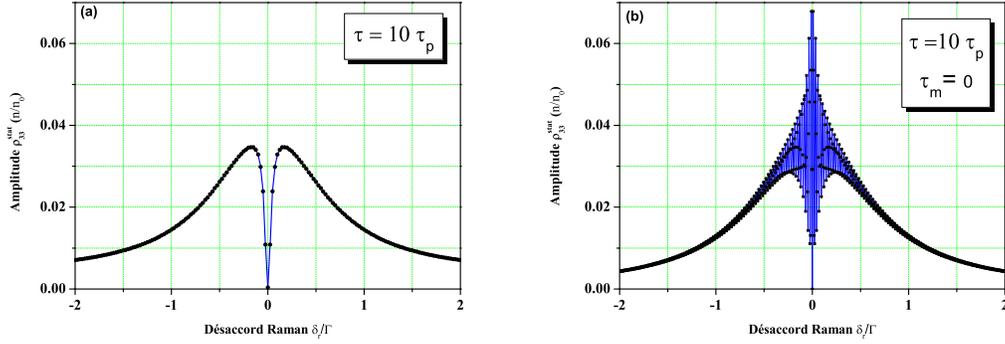


FIG. 3.2 – Impulsion de préparation telle que  $\tau = 10\tau_p$  et  $\Omega_1 = \Omega_2 = 0.1\Gamma$ . (a) résonance noire  $\rho_{33}(\tau)$  calculée à l'aide de la matrice densité. (b) Franges de résonance noire  $\rho_{33}(\tau, T)$  calculée à l'aide de l'équation Eq. 3.8 ou Eq. 3.5. On a choisi le taux de relaxation tel que  $\gamma_c = \Gamma/2$  et  $T = 2\tau$ . Conditions initiales  $\Delta n(0) = -1$ ,  $\rho_{12}(0) = 0$ , sans désaccord optique  $\Delta_0 = 0$ .

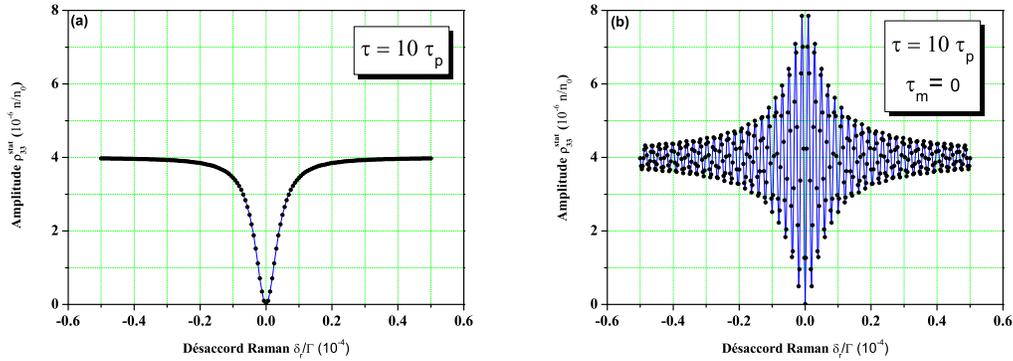


FIG. 3.3 – Impulsion de préparation telle que  $\tau = 10\tau_p$  et  $\Omega_1 = \Omega_2 = 0.001\Gamma$ . (a) résonance noire  $\rho_{33}(\tau)$  calculée à l'aide de la matrice densité. (b) Franges de résonance noire  $\rho_{33}(\tau, T)$  calculée à l'aide de l'équation Eq. 3.8 ou Eq. 3.5. On a choisi le taux de relaxation tel que  $\gamma_c = \Gamma/2$  et  $T = 2\tau$ . Conditions initiales  $\Delta n(0) = -1$ ,  $\rho_{12}(0) = 0$ , et  $\Delta_0 = 0$ .

frange centrale devient ainsi indépendante de l'élargissement par saturation optique. Enfin l'amplitude du signal de la résonance noire est pratiquement doublée. Si l'on applique des pulsations de Rabi plus faibles, le profil de la résonance des figures Fig. 3.3(a) et Fig. 3.3(b) tendent vers une valeur stationnaire dès que le désaccord  $\delta_r$  est plus grand que la largeur effective  $\Gamma_{eff}$  de la résonance. Lorsque l'impulsion de préparation n'a pas atteint une durée

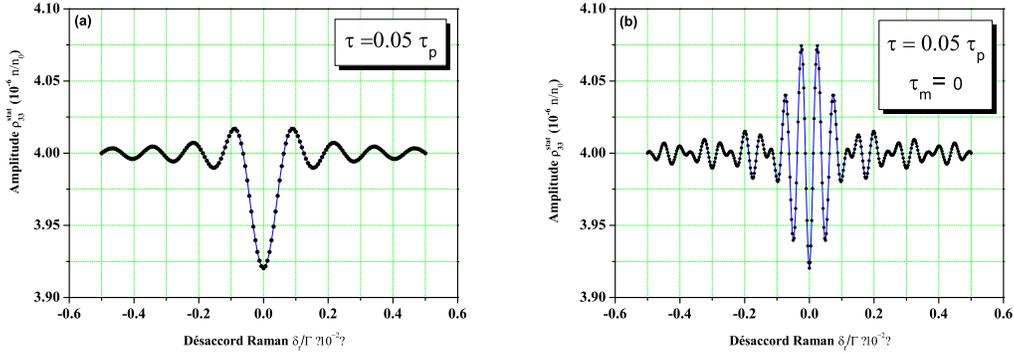


FIG. 3.4 – *Impulsion de préparation telle que  $\tau = 0.05\tau_p$  et  $\Omega_1 = \Omega_2 = 0.001\Gamma$ . (a) résonance noire  $\rho_{33}(\tau)$  calculée à l'aide de la matrice densité. (b) Franges de résonance noire  $\rho_{33}(\tau, T)$  calculée à l'aide de l'équation Eq. 3.8 ou Eq. 3.5. On a choisi le taux de relaxation tel que  $\gamma_c = \Gamma/2$  et  $T = 2\tau$ . Conditions initiales  $\Delta n(0) = -1$ ,  $\rho_{12}(0) = 0$ , et  $\Delta_0 = 0$ .*

suffisamment longue, le contraste du signal n'est pas maximal. La résonance présente, après une impulsion courte, un élargissement par temps de transit à mi-hauteur de la frange centrale et déterminée par l'inverse du temps d'interaction  $\tau$  comme le montre la figure Fig. 3.4(a). Le profil spectral est, dans ce cas, similaire au profil d'une impulsion de Rabi. Après 2 impulsions, on obtient toujours sur le profil spectral de la figure Fig. 3.4(b) des oscillations de Ramsey.

### 3.3 Le modèle ouvert : formalisme de la fonction d'onde complexe

Lorsque le système est ouvert, c'est à dire présentant des fuites vers un niveau extérieur, la conservation de la population n'est plus assurée (voir chapitre 1). Dans ce cas, les équations du chapitre 2 doivent être modifiées en éliminant la relation de conservation de la population atomique. Toutefois, on peut efficacement décrire, pendant les temps courts, les nouvelles variables dynamiques en développant un modèle reposant sur le formalisme de la fonction d'onde complexe. Il suffit d'ajouter de manière phénoménologique les effets de relaxation en incorporant des termes imaginaires sur les éléments diagonaux de l'hamiltonien d'interaction. On définit alors des énergies complexes qui traduisent l'instabilité radiative des niveaux atomiques et les éventuels effets de déphasage. Ce formalisme permet entre autre de déterminer l'évolution dynamique de la fonction d'onde atomique [121, 122, 123, 124, 125, 126] dans une représentation simplifiée à 2 niveaux. Cette représentation n'a de sens que pour des temps d'interaction tels que la durée des impulsions est plus petite que le temps de pompage  $\tau_p$  éliminant la présence d'un état stationnaire. *Toutefois, nous limiterons uniquement notre étude au calcul du déphasage complexe, le profil des résonances étant correctement décrit par la matrice densité.*

Afin de décrire l'influence du déphasage accumulé par la fonction d'onde lorsque les lasers ne sont plus résonnants avec le niveau intermédiaire, on reprend les résultats fournis dans l'**annexe A**. On néglige toujours l'influence des couplages très anti-résonnants de type Bloch -Siegert et les effets de déplacements lumineux induits par des niveaux extérieurs au système considéré. On applique le changement de variables des désaccords  $\Delta_1, \Delta_2$  :

$$\Delta_1 = \Delta_0 \quad \Delta_2 = \Delta_0 - \delta_r \quad (3.14)$$

L'hamiltonien indépendant du temps s'écrit lorsqu'on ajoute les termes de relaxation sur chaque niveau d'énergie :

$$H = \begin{pmatrix} \Delta_0 - i\gamma_{c1} & 0 & \Omega_1 \\ 0 & \delta_r - i\gamma_{c2} & \Omega_2 \\ \Omega_1 & \Omega_2 & -i\frac{\Gamma}{2} \end{pmatrix} \quad (3.15)$$

On retranche  $\Delta_0$  sur la diagonale de l'hamiltonien d'interaction. Le développement des équations d'évolution à partir de la représentation RWA de Schrödinger donne :

$$\begin{cases} i\dot{c}_1(t) = \Omega_1^2 c_3(t) - i\gamma_{c1} c_1(t) \\ i\dot{c}_2(t) = \Omega_2^2 c_3(t) + (\delta_r - i\gamma_{c2}) c_2(t) \\ i\dot{c}_3(t) = \Omega_1^2 c_1(t) + \Omega_2^2 c_2(t) + (-\Delta_0 - i\frac{\Gamma}{2}) c_3(t) \end{cases} \quad (3.16)$$

Dans le cas de l'approche adiabatique (voir l'**annexe A**), on établit ainsi les équations d'un système à 2 niveaux d'énergie :

$$\begin{cases} \dot{c}_1(t) = \frac{\Omega_1^2}{-\Delta_0 - i\frac{\Gamma}{2}} c_1(t) - i\gamma_{c1} c_1(t) + \frac{\Omega_1 \Omega_2}{-\Delta_0 - i\frac{\Gamma}{2}} c_2(t) \\ \dot{c}_2(t) = \frac{\Omega_2^2}{-\Delta_0 - i\frac{\Gamma}{2}} c_2(t) + (\delta_r - i\gamma_{c2}) c_2(t) + \frac{\Omega_1 \Omega_2}{-\Delta_0 - i\frac{\Gamma}{2}} c_1(t) \end{cases} \quad (3.17)$$

On rappelle que l'état excité est défini par l'expression :

$$c_3(t) = -\frac{\Omega_1 c_1(t) + \Omega_2 c_2(t)}{-\Delta_0 - i\Gamma/2} \quad (3.18)$$

Les solutions d'un tel système sont bien connues [25, 127] et on trouve leur expression générale dans l'**annexe A**. Ces solutions s'écrivent simplement sous la forme d'une matrice  $2 \times 2$  d'interaction :

$$\begin{pmatrix} c_1(t) \\ c_2(t) \end{pmatrix} = \chi(t) \cdot \begin{pmatrix} M_+(t) & M_+(t) \\ M_+(t) & M_-(t) \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} c_1(0) \\ c_2(0) \end{pmatrix} \quad (3.19)$$

avec les éléments de matrice :

$$\chi(t) = \exp\left(-(\gamma_{c1} + \gamma_{c2} + \frac{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}{\Delta_0^2 + \frac{\Gamma^2}{4}} \frac{\Gamma}{2}) \frac{t}{2}\right) \exp\left(i\left(-\delta_r + \frac{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}{\Delta_0^2 + \frac{\Gamma^2}{4}} \Delta_0\right) \frac{t}{2}\right) \quad (3.20)$$

$$\begin{aligned}
M_{\dagger}(t) &= 2i \frac{\Omega_1 \Omega_2}{\omega} \left( \frac{\Delta_0 + i\frac{\Gamma}{2}}{\Delta_0^2 + \frac{\Gamma^2}{4}} \right) \sin\left(\frac{\omega}{2}t\right) \\
M_{+}(t) &= \cos\left(\frac{\omega}{2}t\right) + i \frac{\left(\frac{\Omega_1^2 - \Omega_2^2}{\Delta_0^2 + \frac{\Gamma^2}{4}} (\Delta_0 + i\frac{\Gamma}{2}) + (\delta_r - i(\gamma_{c2} - \gamma_{c1}))\right)}{\omega} \sin\left(\frac{\omega}{2}t\right) \\
M_{-}(t) &= \cos\left(\frac{\omega}{2}t\right) - i \frac{\left(\frac{\Omega_1^2 - \Omega_2^2}{\Delta_0^2 + \frac{\Gamma^2}{4}} (\Delta_0 + i\frac{\Gamma}{2}) + (\delta_r - i(\gamma_{c2} - \gamma_{c1}))\right)}{\omega} \sin\left(\frac{\omega}{2}t\right)
\end{aligned} \tag{3.21}$$

La pulsation angulaire complexe est donnée par :

$$\omega^2 = \left[ (\Omega_1^2 - \Omega_2^2) \frac{\Delta_0 + i\Gamma/2}{\Delta_0^2 + \Gamma^2/4} + \delta_r - i(\gamma_{c2} - \gamma_{c1}) \right]^2 + \left[ 2\Omega_1\Omega_2 \frac{\Delta_0 + i\Gamma/2}{\Delta_0^2 + \Gamma^2/4} \right]^2 \tag{3.22}$$

Tous ces éléments de matrice sont consistents avec le traitement des transitions Raman stimulées si on élimine l'émission spontanée en présence d'un important désaccord avec le niveau relais [104]. La séquence de Ramsey se compose habituellement de deux impulsions de même durée  $\tau$  séparées par un intervalle de temps  $T$ . Nous généralisons cette approche pour deux impulsions de durée différente  $\tau$  et  $\tau_m$  en suivant un raisonnement identique à l'**annexe A**. La solution analytique des franges s'écrit sous la forme :

$$\boxed{P_{ij}(\tau, T, \tau_m) = |\alpha_{ij}(\tau, \tau_m, T)|^2 \left| 1 + \beta_{ij}(\tau, \tau_m) e^{-(\gamma_{c2} - \gamma_{c1})T} e^{-i(\delta_r T - \Phi_{ij}(\tau, \tau_m))} \right|^2} \tag{3.23}$$

On peut identifier notamment l'enveloppe des franges  $|\alpha_{i,j}(\tau, \tau_m, T)|^2$  et le facteur de phase  $\beta_{ij}(\tau, \tau_m) e^{-i(\delta_r T - \Phi_{ij}(\tau, \tau_m))}$  responsable d'un déplacement de la frange centrale. Les solutions des populations  $P_{11}(\tau, T, \tau_m)$ ,  $P_{22}(\tau, T, \tau_m)$  et  $P_{33}(\tau, T, \tau_m)$  ont pour expression :

population  $P_{11}(\tau, T, \tau_m)$  :

$$P_{11}(\tau, T, \tau_m) = |\alpha_{11}(\tau, \tau_m, T)|^2 \times \left| \left[ 1 + \beta_{11}(\tau, \tau_m) e^{i\Phi_{11}(\tau, \tau_m)} \cdot e^{-(\gamma_{c2} - \gamma_{c1})T} e^{-i\delta_r T} \right] \right|^2 \tag{3.24}$$

avec :

$$\alpha_{11}(\tau, T, \tau_m) = [M_{+}(\tau_m)M_{+}(\tau)c_1(0) + M_{\dagger}(\tau)M_{+}(\tau_m)c_2(0)] \chi(\tau)\chi(\tau_m) \tag{3.25}$$

et

$$\beta_{11}(\tau, \tau_m) e^{i\Phi_{11}(\tau, \tau_m)} = \frac{M_{\dagger}(\tau_m)}{M_{+}(\tau_m)} \cdot \frac{M_{\dagger}(\tau)c_1(0) + M_{-}(\tau)c_2(0)}{(M_{+}(\tau)c_1(0) + M_{\dagger}(\tau)c_2(0))} \tag{3.26}$$

population  $P_{22}(\tau, T, \tau_m)$  :

$$P_{22}(\tau, T, \tau_m) = |\alpha_{22}(\tau, \tau_m, T)|^2 \times \left| \left[ 1 + \beta_{22}(\tau, \tau_m) e^{i\Phi_{22}(\tau, \tau_m)} \cdot e^{-(\gamma_{c2} - \gamma_{c1})T} e^{-i\delta_r T} \right] \right|^2 \tag{3.27}$$

avec :

$$\alpha_{22}(\tau, T, \tau_m) = [M_{\dagger}(\tau_m)M_{+}(\tau)c_1(0) + M_{\dagger}(\tau)M_{\dagger}(\tau_m)c_2(0)] \chi(\tau)\chi(\tau_m) \tag{3.28}$$

et

$$\beta_{22}(\tau, \tau_m) e^{i\Phi_{22}(\tau, \tau_m)} = \frac{M_{-}(\tau_m)}{M_{\dagger}(\tau_m)} \cdot \frac{M_{\dagger}(\tau)c_1(0) + M_{-}(\tau)c_2(0)}{(M_{+}(\tau)c_1(0) + M_{\dagger}(\tau)c_2(0))} \tag{3.29}$$

population  $P_{33}(\tau, T, \tau_m)$  :

$$P_{33}(\tau, T, \tau_m) = |\alpha_{33}(\tau, \tau_m, T)|^2 \times \left| \left[ 1 + \beta_{33}(\tau, \tau_m) e^{i\Phi_{33}(\tau, \tau_m)} \times e^{-(\gamma_{c2} - \gamma_{c1})T} e^{-i(\delta_r)T} \right] \right|^2 \quad (3.30)$$

avec :

$$\begin{aligned} \alpha_{33}(\tau, T, \tau_m) = & [(M_+(\tau)c_1(0) + M_+(\tau)c_2(0)) \\ & \times (\Omega_2 M_+(\tau_m) + \Omega_1 M_+(\tau_m))] \cdot \frac{\chi(\tau)\chi(\tau_m)}{-\Delta_0 - i\frac{\Gamma}{2}} \end{aligned} \quad (3.31)$$

et

$$\beta_{33}(\tau, \tau_m) e^{i\Phi_{33}(\tau, \tau_m)} = \frac{\Omega_2 M_-(\tau_m) + \Omega_1 M_+(\tau_m)}{\Omega_2 M_+(\tau_m) + \Omega_1 M_+(\tau_m)} \cdot \frac{M_+(\tau)c_1(0) + M_-(\tau)c_2(0)}{(M_{11}(\tau)c_1(0) + M_+(\tau)c_2(0))} \quad (3.32)$$

### 3.4 Déphasage optique et déplacement de fréquence des observables

Le déplacement de la frange centrale est directement relié au déphasage accumulé pendant les interactions avec les champs lasers. Les formules Eq. 3.4 et Eq. 3.23 permettent de déterminer ces expressions et leur comportement en fonction des paramètres comme le désaccord optique  $\Delta_0$ , les pulsations de Rabi  $\Omega_1$  et  $\Omega_2$  ou encore avec les durées  $\tau$ ,  $\tau_m$  des impulsions. Ce déplacement est dilué sur la durée d'évolution libre de la cohérence et s'écrit pour  $\tau, \tau_m \lesssim T$  :

$$\delta\nu_{ij} \sim \frac{\Phi_{ij}(\tau, \tau_m)}{2\pi T(1 + \frac{\tau + \tau_m}{2T})} \quad (3.33)$$

Les déphasages optiques  $\Phi_{ij}(\tau, \tau_m)$  sont estimés à partir de la matrice densité pour le modèle fermé et à partir de la fonction d'onde complexe pour le modèle ouvert. La comparaison des deux approches permet de valider la notion de déphasage de la fonction d'onde atomique à 3 niveaux pour quelques cas spécifiques.

#### 3.4.1 Estimation à partir de la fonction d'onde complexe

Le formalisme de la fonction d'onde complexe permet d'estimer les déphasages associés à chaque observable. L'expression générale peut s'écrire avec (i,j=1,2,3) comme :

$$\Phi_{ij}(\tau, \tau_m) = \arctan \left( \frac{\text{Im}\{\beta_{ij}(\tau, \tau_m)e^{i\Phi_{ij}(\tau, \tau_m)}\}}{\text{Re}\{\beta_{ij}(\tau, \tau_m)e^{i\Phi_{ij}(\tau, \tau_m)}\}} \right) \equiv \arg \left\{ \beta_{ij}(\tau, \tau_m)e^{i\Phi_{ij}(\tau, \tau_m)} \right\} \quad (3.34)$$

Les facteurs de phase  $\beta_{ij}(\tau, \tau_m)e^{i\Phi_{ij}(\tau, \tau_m)}$  sont complexes. Ils s'écrivent de manière générale en fonction des composantes d'une matrice d'interaction M en introduisant maintenant des désaccords différents  $\Delta_1$  et  $\Delta_2$  sur chaque transition optique :

$$M = \begin{pmatrix} \cos\left(\frac{\omega}{2}t\right) + i\frac{\Delta_{\text{eff}}}{\omega} \sin\left(\frac{\omega}{2}t\right) & 2i\frac{\Omega_{\text{eff}}}{\omega} \sin\left(\frac{\omega}{2}t\right) \\ 2i\frac{\Omega_{\text{eff}}}{\omega} \sin\left(\frac{\omega}{2}t\right) & \cos\left(\frac{\omega}{2}t\right) - i\frac{\Delta_{\text{eff}}}{\omega} \sin\left(\frac{\omega}{2}t\right) \end{pmatrix} \equiv \begin{pmatrix} M_+(t) & M_+(t) \\ M_+(t) & M_-(t) \end{pmatrix} \quad (3.35)$$

avec la nouvelle pulsation complexe :

$$\omega = (\Delta_{\text{eff}}^2 + 4\Omega_{\text{eff}}^2)^{1/2} \quad (3.36)$$

le désaccord effectif  $\Delta_{\text{eff}}$  et la fréquence de Rabi  $\Omega_{\text{eff}}$  sont introduits par les fonctions complexes :

$$\begin{aligned} \Delta_{\text{eff}} &= \Omega_1^2 \frac{\Delta_1 + i\Gamma/2}{\Delta_1^2 + \Gamma^2/4} - \Omega_2^2 \frac{\Delta_2 + i\Gamma/2}{\Delta_2^2 + \Gamma^2/4} - (\Delta_1 - \Delta_2) + i(\gamma_{c2} - \gamma_{c1}) \\ \Omega_{\text{eff}} &= \Omega_1 \Omega_2 \left( \frac{\Delta_1 + i\Gamma/2}{\Delta_1^2 + \Gamma^2/4} \times \frac{\Delta_2 + i\Gamma/2}{\Delta_2^2 + \Gamma^2/4} \right)^{1/2} \end{aligned} \quad (3.37)$$

Les déphasages reliés aux populations sont données par les expressions suivantes :

$$\Phi_{11}(\tau, \tau_m) = \arg \left\{ \frac{M_{\dagger}(\tau_m)}{M_{+}(\tau_m)} \cdot \frac{M_{\dagger}(\tau)c_1(0) + M_{-}(\tau)c_2(0)}{(M_{+}(\tau)c_1(0) + M_{\dagger}(\tau)c_2(0))} \right\} \quad (3.38)$$

$$\Phi_{22}(\tau, \tau_m) = \arg \left\{ \frac{M_{-}(\tau_m)}{M_{\dagger}(\tau_m)} \cdot \frac{M_{\dagger}(\tau)c_1(0) + M_{-}(\tau)c_2(0)}{(M_{+}(\tau)c_1(0) + M_{\dagger}(\tau)c_2(0))} \right\} \quad (3.39)$$

$$\Phi_{33}(\tau, \tau_m) = \arg \left\{ \frac{\Omega_2 M_{-}(\tau_m) + \Omega_1 M_{\dagger}(\tau_m)}{\Omega_2 M_{\dagger}(\tau_m) + \Omega_1 M_{+}(\tau_m)} \cdot \frac{M_{\dagger}(\tau)c_1(0) + M_{-}(\tau)c_2(0)}{(M_{11}(\tau)c_1(0) + M_{\dagger}(\tau)c_2(0))} \right\} \quad (3.40)$$

Toutes ces expressions précédentes dépendent de la préparation atomique initiale introduite à  $t = 0$  par les valeurs  $c_i(0)$  des composantes de la fonction d'onde. Lorsque  $c_1(0) = c_2(0)$ , tous ces déphasages sont annulés. Les atomes sont déjà équirépartis sur les niveaux d'horloge et n'accumulent plus de phase pendant l'interaction avec les champs lasers. En représentation habillée, toute cohérence initiale entre les états d'horloge dans la base  $\{|\Psi_{+}\rangle, |\Psi_{NC}\rangle\}$  est initialement effacée. Il n'y a pas de déphasage accumulé entre les parties réelle et imaginaire de la cohérence Raman au cours des temps d'interaction  $\tau, \tau_m$  avec la lumière laser CPT.

### 3.4.2 Estimation à partir de la matrice densité

A partir de la formule analytique Eq. 3.4 et des equations Eq. 3.8, Eq. 3.10, Eq. 3.12, on peut aussi évaluer l'expression des déphasages optiques. Nous donnons d'abord le déphasage associé au déplacement de fréquence de la frange centrale correspondant à la population atomique du niveau excité à faible saturation  $S \ll 1$ . Nous avons :

$$\begin{aligned} \Phi_{33}(\tau, \tau_m) &= \arctan \left[ \frac{\mu_{\gamma} \text{Im}\{\rho_{12}(\tau, \tau_m)\} - \mu_{\Delta} \text{Re}\{\rho_{12}(\tau, \tau_m)\}}{\mu_{\gamma} \text{Re}\{\rho_{12}(\tau, \tau_m)\} + \mu_{\Delta} \text{Im}\{\rho_{12}(\tau, \tau_m)\}} \right] \\ \mu_{\gamma} &= \frac{\gamma_{c1}}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} + \frac{\gamma_{c2}}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} \quad \mu_{\Delta} = \frac{\Delta_1}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} - \frac{\Delta_2}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} \end{aligned} \quad (3.41)$$

puis les fonctions déphasantes des parties imaginaires des cohérences optiques (i.e absorption) avec  $i = 1, 2$  :

$$\Phi_{i3}(\tau, \tau_m) = \arctan \left[ \frac{\frac{3\Omega_i^2 \gamma_{ci}}{\Gamma_{31} + \Gamma_{32}} [\mu_{\gamma} \text{Im}\{\rho_{12}(\tau, \tau_m)\} - \mu_{\Delta} \text{Re}\{\rho_{12}(\tau, \tau_m)\}]}{1 + \frac{3\Omega_1^2 \gamma_{c1}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)} + \frac{3\Omega_2^2 \gamma_{c2}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)}} - \gamma_{ci} \text{Im}\{\rho_{12}(\tau, \tau_m)\} - \Delta_i \text{Re}\{\rho_{12}(\tau, \tau_m)\}}{\frac{3\Omega_i^2 \gamma_{ci}}{\Gamma_{31} + \Gamma_{32}} [\mu_{\gamma} \text{Re}\{\rho_{12}(\tau, \tau_m)\} + \mu_{\Delta} \text{Im}\{\rho_{12}(\tau, \tau_m)\}]}{1 + \frac{3\Omega_1^2 \gamma_{c1}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)} + \frac{3\Omega_2^2 \gamma_{c2}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)}} - \gamma_{ci} \text{Im}\{\rho_{12}(\tau, \tau_m)\} + \Delta_i \text{Re}\{\rho_{12}(\tau, \tau_m)\}} \right] \quad (3.42)$$

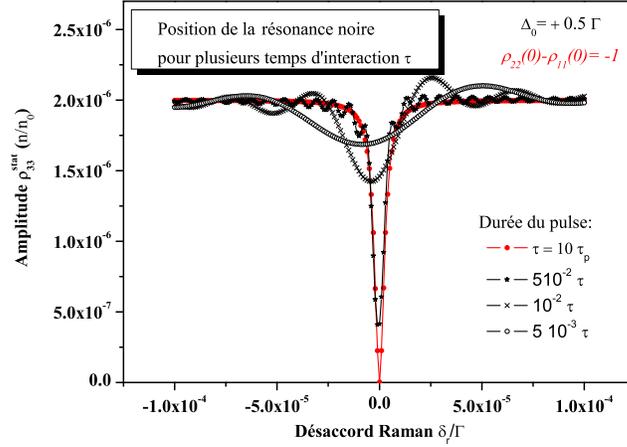


FIG. 3.5 – Mise en évidence du déplacement de fréquence de la résonance noire après une impulsion CPT de durée variable  $\tau$  pour un désaccord optique tel que  $\Delta_0 = +0.5\Gamma$  et des fréquences de Rabi  $\Omega_1 = \Omega_2 = 0.001\Gamma$ .

Les fonctions transitoires de la partie réelle  $Re\{\rho_{12}(\tau, \tau_m)\}$  et imaginaire  $Im\{\rho_{12}(\tau, \tau_m)\}$  de la cohérence sont évaluées à partir de l'analyse des équations Eq. 3.1 en suivant l'intégralité de la méthode présentée dans l'annexe B. Il suffit d'introduire comme conditions initiales les valeurs  $Re\{\rho_{12}(\tau)\}$  et  $Im\{\rho_{12}(\tau)\}$  à la fin de la première impulsion et de calculer les solutions dynamiques de Eq. 3.1 pendant une seconde interaction de durée  $\tau_m$  en négligeant l'influence des solutions stationnaires (valable lorsque la durée de ces interactions est petite devant le temps caractéristique de pompage  $\tau_p$ ). On pourrait bien-sûr établir des fonctions similaires pour les populations  $\rho_{11}(\tau, T, \tau_m)$  et  $\rho_{22}(\tau, T, \tau_m)$  lorsque les taux de relaxation par émission spontanée sont différents  $\Upsilon \neq 0$ . Pour un système fermé, nous avons montré qu'en présence d'un rapport de branchement asymétrique  $\tilde{\Upsilon} \neq 0$ , une étroite résonance noire apparaît dans le profil de raie des états d'horloge. En régime impulsionnel de type Ramsey, on peut aussi obtenir des oscillations de Ramsey dans le profil stationnaire de la résonance de l'état fondamental. On peut déterminer, une fois de plus, un déphasage optique qui vient perturber la position en fréquence de la frange centrale. Toutefois, le calcul des spectres de résonance  $\rho_{11}(\tau, T, \tau_m)$  et  $\rho_{22}(\tau, T, \tau_m)$  est plus compliqué et n'est pas présenté dans le manuscrit. On remarquera d'ailleurs que les déphasages Eq. 3.38 et Eq. 3.39 ne peuvent plus se comparer simplement au calcul effectuée à partir de la matrice densité. Le saut quantique par émission spontanée introduit dans la matrice densité entraîne une relation de fermeture sur les variables atomiques. Le choix de la bonne formule de déphasage complexe associée à la variable  $\rho_{11}(\tau, T, \tau_m)$  ou  $\rho_{22}(\tau, T, \tau_m)$  dépend fortement des conditions initiales et de la configuration radiative choisie pour l'atome. Une étude plus approfondie pourrait alors résoudre le dilemme est permettre d'identifier le cas échéant la formule complexe adaptée à la représentation par la matrice densité comme nous l'avons observé sur une simulation appliquée avec la configuration radiative des alcalino-terreux [78].

### 3.4.3 Comparaison entre le modèle de la fonction d'onde et celui de la matrice densité : cas de la population du niveau excité

Proche de la condition de résonance Raman  $\delta_r \sim 0$ , les atomes tombent dans l'état noir et ne participent plus au signal (i.e approximativement un système ouvert). Afin de vérifier que l'expression du déplacement de fréquence obtenue avec le modèle de la fonction d'onde est similaire à celui de la matrice densité, nous avons choisi de comparer les différentes solutions pour la population du niveau excité. On donne sur la figures Fig. 3.5 l'influence du désaccord optique  $\Delta_0 \neq 0$  sur la position en fréquence de la résonance noire après une impulsion unique de durée variable. Le minimum de la résonance se déplace en fonction du temps d'interaction vers la position observée en régime stationnaire  $\tau \gg \tau_p(\Delta_0)$ .

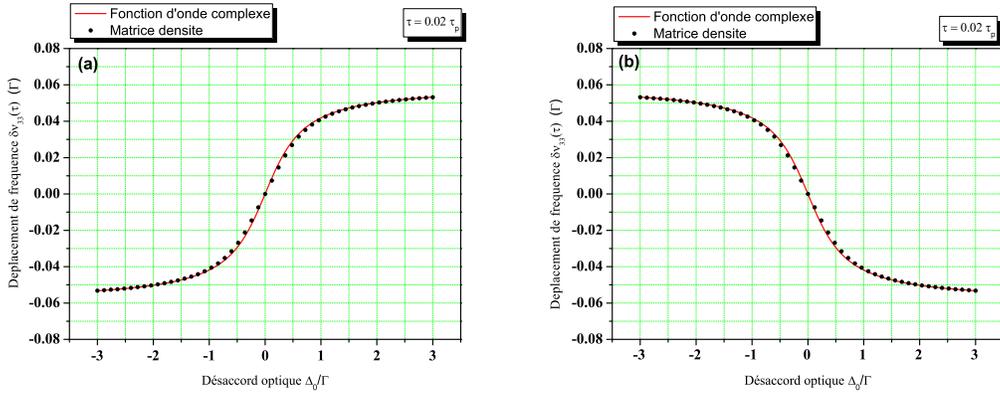


FIG. 3.6 – (a) *Déplacement de fréquence de la frange centrale pour  $\Omega_1 = \Omega_2 = 0.2\Gamma$ ,  $\tau = 0.02\tau_p(0)$  après 2 impulsions CPT en fonction du désaccord optique  $\Delta_0$  avec  $\Delta n(0) = 1$ ,  $c_1(0) = 0$ ,  $c_2(0) = 1$  en utilisant les équations Eq. 3.34 et Eq. 3.40 (points  $\bullet$ ) comparée avec la solution de la matrice densité Eq. 3.43 (courbe continue).* (b) *Préparation avec  $\Delta n(0) = -1$ ,  $c_1(0) = 1$ ,  $c_2(0) = 0$ . Les paramètres sont  $\Gamma_{31} = \Gamma_{32} = \Gamma/2$ ,  $\gamma_{c1} = \gamma_{c2} = \Gamma/2$  et  $\gamma_c = 0$  avec  $T = 10\tau$ .*

Pour calculer cette position dépendante du temps, on peut toujours dériver la solution temporelle de  $\rho_{33}(\tau)$  en fonction du désaccord Raman  $\delta_r$ . Il est toutefois plus facile de développer en perturbation cette solution au second ordre du désaccord et cette approche se trouve présentée dans la référence [74]. On préfère, dans notre cas de figure, étudier les formules de déplacement lors de l'application de la séquence d'interrogation à 2 impulsions. En calculant les solutions imaginaires et réelles de la cohérence  $\rho_{12}(\tau, \tau_m \mapsto 0)$ , on retrouve la formule établie par [109, 74] pour une faible saturation  $S \ll 1$ , en posant  $\Delta_1 \sim \Delta_2 \sim \Delta_0$

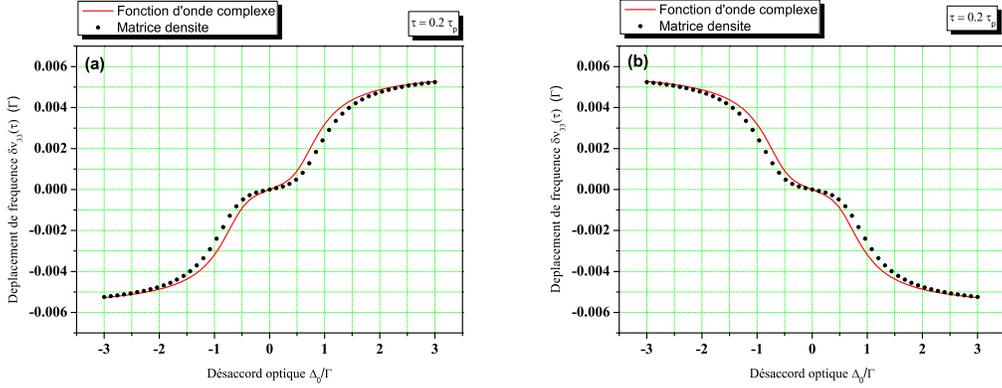


FIG. 3.7 – (a) Déplacement de fréquence de la frange centrale pour  $\Omega_1 = \Omega_2 = 0.2\Gamma$ ,  $\tau = 0.2\tau_p(0)$  après 2 impulsions CPT en fonction du désaccord optique  $\Delta_0$  avec  $\Delta n(0) = 1$ ,  $c_1(0) = 0$ ,  $c_2(0) = 1$  en utilisant les équations Eq. 3.34 et Eq. 3.40 (points •) comparée avec la solution de la matrice densité Eq. 3.43 (courbe continue). (b) Préparation avec  $\Delta n(0) = -1$ ,  $c_1(0) = 1$ ,  $c_2(0) = 0$ . Les paramètres sont  $\Gamma_{31} = \Gamma_{32} = \Gamma/2$ ,  $\gamma_{c1} = \gamma_{c2} = \Gamma/2$  et  $\gamma_c = 0$  avec  $T = 10\tau$ .

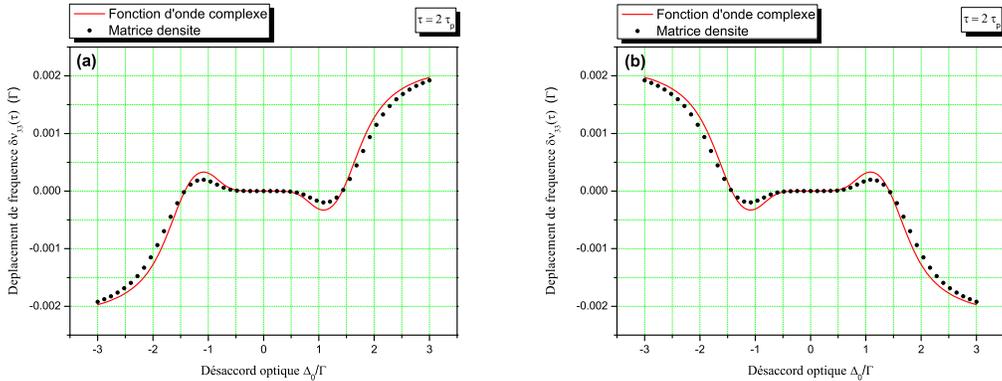


FIG. 3.8 – (a) Déplacement de fréquence de la frange centrale pour  $\Omega_1 = \Omega_2 = 0.2\Gamma$ ,  $\tau = 2\tau_p(0)$  après 2 impulsions CPT en fonction du désaccord optique  $\Delta_0$  avec  $\Delta n(0) = 1$ ,  $c_1(0) = 0$ ,  $c_2(0) = 1$  en utilisant les équations Eq. 3.34 et Eq. 3.40 (points •) comparée avec la solution de la matrice densité Eq. 3.43 (courbe continue). (b) Préparation avec  $\Delta n(0) = -1$ ,  $c_1(0) = 1$ ,  $c_2(0) = 0$ . Les paramètres sont  $\Gamma_{31} = \Gamma_{32} = \Gamma/2$ ,  $\gamma_{c1} = \gamma_{c2} = \Gamma/2$  et  $\gamma_c = 0$  avec  $T = 10\tau$ .

avec  $\gamma_c = 0$ , soit explicitement :

$$\Phi_{33}(\tau, \tau_m \mapsto 0) \sim \arctan \left\{ \frac{\Delta n(0) \exp[-\frac{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}{\Delta_0^2 + \Gamma^2/4} \frac{\Gamma}{2} \tau] \text{Sin}[\frac{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}{\Delta_0^2 + \Gamma^2/4} \Delta_0 \tau]}{1 - \exp[-\frac{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}{\Delta_0^2 + \Gamma^2/4} \frac{\Gamma}{2} \tau] + \Delta n(0) \frac{\Omega_1^2 - \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \left(1 - \text{Cos}[\frac{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}{\Delta_0^2 + \Gamma^2/4} \Delta_0 \tau]\right) \exp[-\frac{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}{\Delta_0^2 + \Gamma^2/4} \frac{\Gamma}{2} \tau]} \right\} \quad (3.43)$$

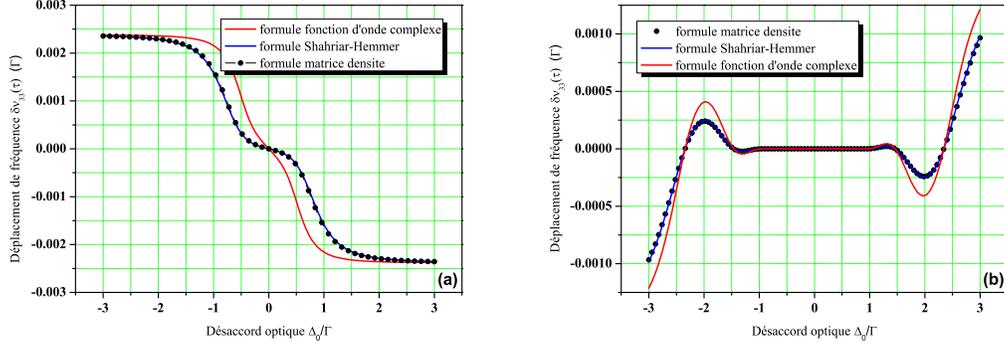


FIG. 3.9 – *Comparaison des formules sur le déplacement de fréquence de la frange centrale après 2 impulsions CPT en fonction du désaccord optique  $\Delta_0$ . (a) Faible saturation  $\Omega_1 = 0.15\Gamma, \Omega_2 = 0.08\Gamma, \tau = 2\tau_p(0)$ . (b) Forte saturation pour  $\Omega_1 = \Omega_2 = 0.35\Gamma, \tau = 2\tau_p(0)$ . Les paramètres sont  $\Gamma_{31} = \Gamma_{32} = \Gamma/2$ ,  $\gamma_{c1} = \gamma_{c2} = \Gamma/2$  et  $\gamma_c = 0$  avec  $T = 10\tau$ . Préparation  $\Delta n(0) = -1, c_1(0) = 1, c_2(0) = 0$*

Cette expression est comparée à la formule Eq. 3.40 calculée à l'aide de la fonction d'onde complexe à 3 niveaux introduit au paragraphe précédent. Notons que l'expression de l'équation Eq. 3.43 devient beaucoup plus compliquée lorsque la relaxation  $\gamma_c$  de la cohérence Raman est prise en compte. On compare maintenant les trois formules Eq. 3.41 Eq. 3.43 et Eq. 3.40 à faible et forte saturation optique afin de tester leur comportement en fonction du désaccord  $\Delta_0$ . Le résultat de la comparaison est reporté sur la Fig. 3.9. Le résultat de [109] est toujours en très bon accord avec la solution Eq. 3.41. La solution de la fonction d'onde complexe reproduit bien les résultats de la matrice densité. Comme le montre les figures Fig. 3.9(a) et (b), l'augmentation de la saturation produit une diminution du déplacement de fréquence. Si on compare maintenant les expressions de chaque formalisme sur l'effet de la relaxation  $\gamma_c$ , les conclusions ne sont pas identiques. L'introduction d'un terme imaginaire sur les états d'horloge traduit plutôt une fuite vers des niveaux externes. La conséquence est la rotation de la pente en fréquence autour de l'origine comme le montre la figure Fig. 3.10(a). Dans le point de vue de la matrice densité de la figure Fig. 3.10(b), il s'agit à la fois d'une légère rotation et d'une réduction de la plage des désaccords pour lesquelles la pente en fréquence est la plus faible. Toutefois, la matrice densité contrairement à la fonction d'onde prédit une faible sensibilité à la variation du taux de relaxation de la cohérence. Ces deux approches permettent d'évaluer l'effet d'une relaxation de la cohérence ou l'effet des termes de fuite qui peuvent perturber les états d'horloge.

### 3.5 Conclusion

Afin de simplifier la description en terme de matrice densité, nous avons développé le formalisme de la fonction d'onde en introduisant sur les termes diagonaux des éléments complexes traduisant l'instabilité radiative des niveaux atomiques. Le calcul est effectué en séparant les parties enveloppe et phase qui composent les probabilités  $c_i c_j^*$ . La comparaison

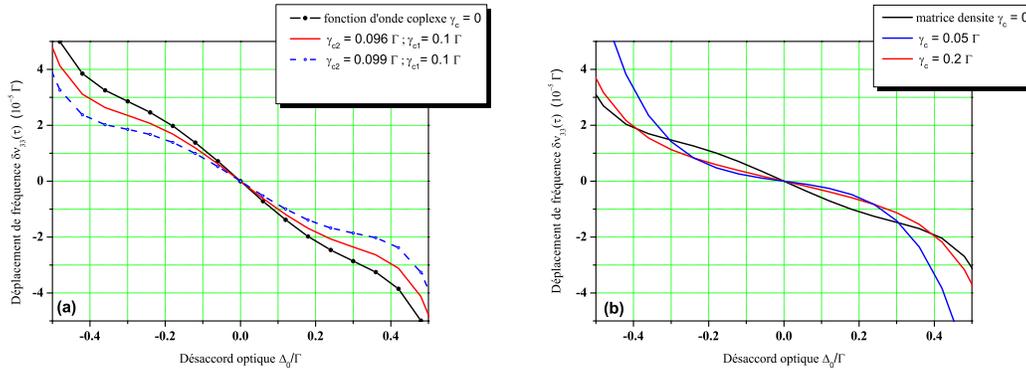


FIG. 3.10 – *Influence de la relaxation Raman  $\gamma_c$  après 2 impulsions CPT en fonction du désaccord optique  $\Delta_0$ . (a) Point de vue de la fonction d'onde complexe  $\Omega_1 = 0.15\Gamma = \Omega_2 = 0.15\Gamma$ ,  $\tau = 2\tau_p(0)$ . (b) Point de vue de la matrice densité pour  $\Omega_1 = \Omega_2 = 0.15\Gamma$ ,  $\tau = 2\tau_p(0)$ .*

des modèles de la matrice densité et de la fonction d'onde qui décrivent le terme de déphasage de la frange centrale valide la représentation du système à 3 niveaux par un hamiltonien non hermitique. Bien que cette partie non hermitique n'assure pas la conservation de la population (fuites vers des niveaux externes), l'évolution dynamique du système fermé aux temps courts est supposé bien approché par les probabilités de présence tant que les durées  $\tau, \tau_m$  des impulsions sont plus petites que le temps de pompage  $\tau_p$  des atomes dans l'état noir. En toute rigueur, les expressions des déphasages des populations des états d'horloge doivent être établis par la matrice densité qui assure une relation de fermeture entre toutes les populations atomiques. Bien que la fonction d'onde complexe ne soit pas totalement adaptée à tous les cas de figures, il a permis de déterminer une expression analytique simplifiée du déphasage optique accumulé au cours de chaque interaction avec les champs laser pour la population du niveau intermédiaire  $\rho_{33}(\tau, T, \tau_m)$ .



## Chapitre 4

# Observation des franges de résonance noire en cellule de vapeur atomique

*‘Oui, tout avait été indiqué ou soupçonné mais rien n’avait été compris’*

Citation de Milne-Edwards.

### 4.1 Description de l’expérience du LNE-SYRTE sur une vapeur atomique

Notre expérience comprend une source d’interrogation nécessaire aux impulsions CPT développées à partir de deux sources lasers cohérentes entre elles (réalisation d’un verrouillage de phase) et une cellule remplie par la vapeur atomique alcaline et le gas tampon. Le choix des transitions s’est porté naturellement sur l’atome de Césium utilisé pour la définition de la seconde et plus particulièrement sur la transition D1 entre l’état hyperfin fondamental  $1S_{1/2}$  et l’état excité  $3P_{1/2}$ . La transition D1 ( $\lambda = 894$  nm) présente l’avantage de ne pas avoir de croisement de niveaux comme la transition D2 puisque l’écart hyperfin entre l’état  $F' = 3$  et l’état  $F' = 4$  de 1.166 GHz est plus grand que l’élargissement Doppler de 380 MHz à température ambiante.

#### 4.1.1 Réalisation du banc optique

Le banc optique est constitué de deux sources lasers (laser maître et laser esclave) montées en cavité étendue (LCE) à partir de diodes lasers de la marque Toptica (type LD-0895-0050-1 à 894 nm) et verrouillées en phase. Les sources lasers utilisées maintenant sur les expériences de physiques atomiques sont des diodes lasers commerciales à semi-conducteur. Celles-ci possèdent généralement des largeurs spectrales de quelques 10 à 40 MHz. La puissance délivré

par ces diodes sont autour de 50 mW pour des courants d'injection de quelques 80 à 100 mA. La bande passante doit être suffisamment large pour que l'asservissement en fréquence d'une source laser reste robuste. Il faut donc réduire la largeur de raie (largeur naturelle de l'ordre de  $\sim 10\text{-}20$  MHz) en dessous de 1 MHz avec une cavité externe de quelques cm de longueur. Dans notre cas, la longueur d'onde utilisée est 894 nm. Les diodes commerciales à cette longueur d'onde ne sont pas toujours facilement accessibles et celles utilisées dans cette expérience (diodes TOPTICA, boîtier type G1) sans traitement antireflet ne disposent pas de modules Peltier intégrés. Afin de contrôler la longueur d'onde, il a donc fallu développer un boîtier composé de deux pièces en cuivres dans lesquelles un élément Peltier est au contact de la diode. L'ensemble est maintenu serré par deux vis et des lamelles en Téflon qui évitent un contact direct entre les deux pièces métalliques. Une thermistance en contact thermique avec l'ensemble et le module Peltier permettent de contrôler la température de la diode autour de 25°C. Pour affiner spectralement la diode et stabiliser celle-ci, l'ensemble précédent est placé dans une cavité étendue de longueur 70 mm. Le faisceau utile est collimaté par une lentille d'ouverture numérique 0.55 et de focale 6.33 mm. La cavité étendue réalisée est constituée de la facette arrière de la diode et d'un réseau de diffraction de pas  $a=1500$  traits/mm. Le réseau est monté sur une cale piézoélectrique qui permet de venir ajuster finement la longueur d'onde autour de 894 nm. La sélection d'un mode particulier de la diode est réalisée en réinjectant l'ordre -1 du réseau de diffraction dans la diode. L'angle de réinjection de 42° est donné au premier ordre par la formule de Bragg appliqué au réseau. Un miroir de renvoi permet d'orienter le faisceau d'ordre 0 convenablement. La puissance utile en sortie de cavité est d'environ 15 mW pour un courant de 65 mA. La technique de l'absorption saturée sur laquelle nous venons asservir un laser consiste à réfléchir un faisceau laser sur un miroir à travers une cellule de gaz atomique. On crée deux ondes appelées onde pompe et onde sonde qui viennent perturber la population du gaz. L'onde pompe excite les atomes du gaz et crée une inversion de population que l'onde réfléchie vient sonder. On détecte alors la variation d'intensité de l'onde sonde due à cette inversion de population avec une photodiode. L'utilisation de deux sources lasers permet non seulement de contrôler la polarisation et l'intensité mais aussi de choisir la géométrie d'excitation des faisceaux lasers (faisceaux copropageants ou contra-propageants).

La réalisation des impulsions CPT séparées temporellement nécessite l'emploi d'un obturateur rapide (un modulateur acousto-optique) capable d'éteindre et d'allumer les faisceaux en un temps (environ 400-500 ns) beaucoup plus court que le temps de pompage  $\tau_p \sim ms$  pour atteindre l'état stationnaire de la cohérence Raman. L'emploi d'un tel obturateur décale aussi les fréquences laser de  $\pm 80$  MHz. Il faut donc penser à corriger ce déplacement de fréquence pour que les faisceaux soient toujours à résonance avec les transitions optiques de la vapeur atomique. On contrôle la fréquence du laser maître à l'aide d'un double passage des lasers à travers un premier MAO modulé en fréquence dans un premier étage d'asservissement. Les deux faisceaux lasers décalés de 160 MHz par le double passage sont ensuite mélangés sur un cube polariseur puis envoyé à travers une lame  $\lambda/2$  sur une photo-diode fibré (marque New Focus, modèle 2592 à 12 GHz, puissance 3 mW et plage de longueur d'onde utile 400-1650 nm) afin de réaliser le second étage de l'asservissement en fréquence par verrouillage de phase. Ce verrouillage est réalisée à l'aide d'un battement optique entre les deux faisceaux du laser maître et du laser esclave. L'autre partie du mélange passe à travers un second acousto-optique qui ajoute encore un décalage de 80 MHz et sert d'obturateur rapide pour la génération des impulsions CPT. La combinaison des deux MAO permet de compenser le décalage en fréquence des transitions optiques induit par les

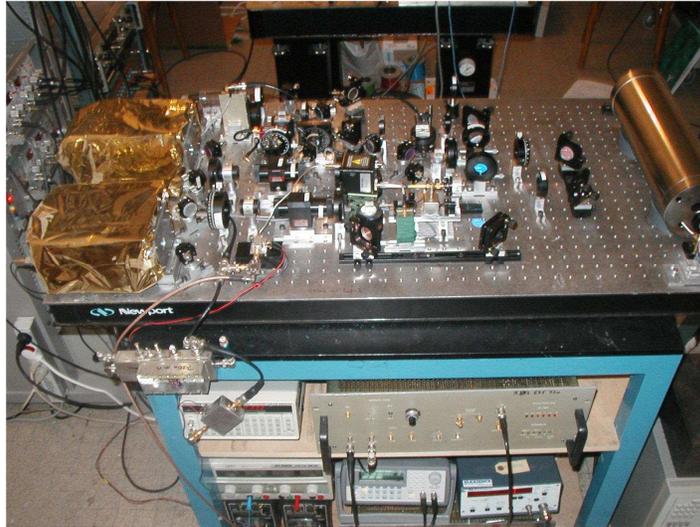


FIG. 4.1 – *Prototype de l'horloge CPT-atomes thermiques du LNE-SYRTE.* Les deux lasers montés en cavité étendue sont à gauche. On peut apercevoir la chaîne micro-onde à 9.192 GHz qui est située sous le banc optique et nécessaire au verrouillage de phase. Le résonateur optique constitué par la cellule de gaz et les blindages magnétiques se trouve à droite de la photo.

collisions avec le gaz tampon (de l'ordre de quelques 200 MHz). Les deux faisceaux lasers superposés passent à travers un collimateur de fibre pour assurer un filtrage spatial et homogénéiser la distribution d'intensité. Un télescope assure la collimation des faisceaux avec un diamètre de 15 mm pour exciter un maximum d'atomes à travers la cellule. Une photodiode assure la détection des faisceaux transmis à travers la vapeur atomique en sortie du dispositif expérimental.

Actuellement, les bancs optiques destinés à des applications d'horloges compactes CPT [9, 128, 129, 119, 130, 131] utilisent plutôt une excitation continue des atomes par faisceaux CPT à partir de sources lasers modulées directement en fréquence. Notons que les références [81, 82] ont développé une approche reposant sur le verrouillage de phase.

#### 4.1.2 La source cohérente d'interrogation à 894 nm : le verrouillage de phase entre 2 lasers LCE

Quelques travaux ont fait l'objet de publications pour les LCE montés en cavité étendue sur la raie D1 du césium [132, 133, 134]. Les diodes lasers utilisées étaient pour la plupart des diodes de marque EG&G dont la production est aujourd'hui très peu développée. La diode Toptica seule a une largeur de raie de l'ordre de 10 MHz pour une puissance de sortie de 50 mW. Cette largeur est généralement trop importante pour assurer un pompage optique efficace des atomes lorsque les niveaux hyperfins ne sont séparés que d'une centaine de mégahertz (cas de la raie D2 par exemple). L'adaptation d'une cavité de longueur L

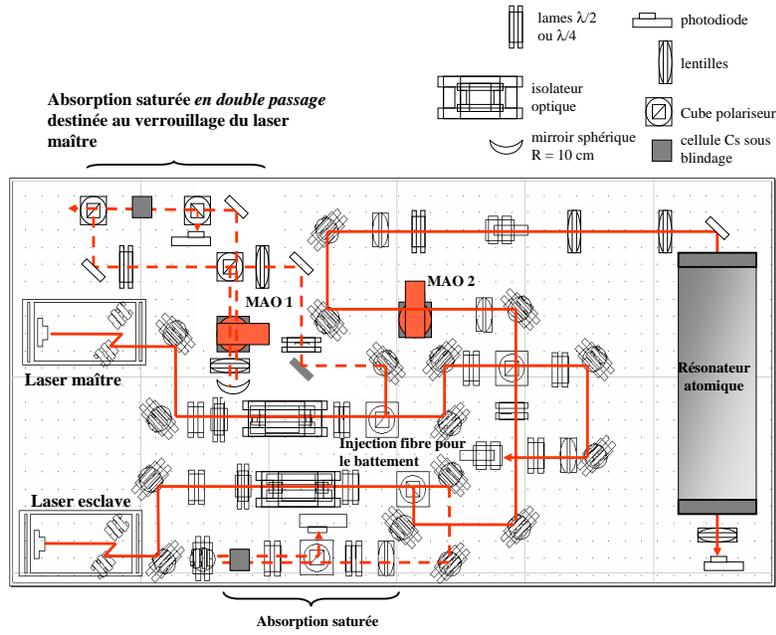


FIG. 4.2 – *Schema de principe du banc optique.*

devant la diode de longueur  $l$  permet de réaliser l'équivalent d'une cavité Fabry-Perot de facteur  $(L/l)^2$  assez élevé pour réduire la largeur de la diode à quelques dizaines de kilohertz pour des longueurs de cavité de l'ordre de 10 cm [135]. Dans notre cas, nous avons repris des anciens montages LCE que nous avons adaptés pour réaliser une longueur intra-cavité  $L = 5,5 \text{ cm}$ . Nous avons pu entre autre déterminer les fonctions de transfert de la diode seule :

$$\begin{aligned} (\Delta\nu/\Delta T)_{mode} &= -\frac{c}{\Delta T} \cdot \frac{\Delta\lambda}{\lambda^2} = -25 \text{ GHz/K} \\ (\Delta\nu/\Delta I)_{diode} &= -\frac{c}{\Delta I} \cdot \frac{\Delta\lambda}{\lambda^2} = -4 \text{ GHz/mA} \end{aligned} \quad (4.1)$$

La cavité étendue est constituée par la facette de sortie de la diode et le réseau de diffraction (1500 traits/mm) monté sur une céramique piézo-électrique de 150 V (marque Polytec PI, translateur basse tension 0-150V) qui renvoie l'ordre 1 avec un angle de  $42^\circ$  environ (montage Littrow). Les fonctions de transfert mesurées à très faible modulation pour la diode en cavité étendue deviennent :

$$\begin{aligned} (\Delta\nu/\Delta I)_{diode} &= -1 \text{ GHz/mA} \\ (\Delta\lambda/\Delta V)_{piezo} &= 300 \text{ MHz/V} \end{aligned} \quad (4.2)$$

L'intervalle spectral libre sans saut de mode du LCE est estimé quant à lui à environ 2,7 GHz, ce qui a été expérimentalement observé sur le spectre d'absorption saturée.

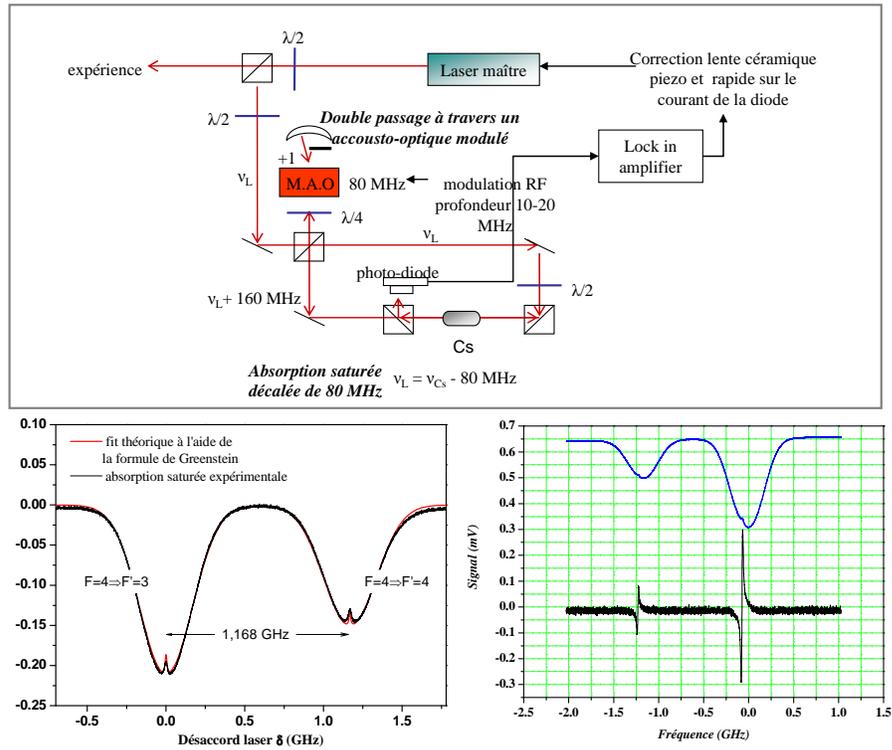


FIG. 4.3 – Asservissement par absorption saturée en double passage.

### 1- Absorption saturée en double passage

Le laser maître est asservi sur une absorption saturée par double passage du faisceau à travers un MAO modulé par radio-fréquence (Fig. 4.3). Le faisceau du laser maître est divisé en deux parties (faisceau pompe et faisceau sonde) par un cube séparateur de polarisation. Le faisceau pompe effectue un aller et retour à travers un accousto-optique modulé en fréquence à 150 kHz. L'ordre +1 est sélectionné par l'ajout d'un cache sur le parcours du faisceau. Cette méthode permet de moduler le faisceau pompe du maître sans modification de sa position spatiale. Les faisceaux pompe et sonde sont ensuite directement envoyés à travers une cellule de Cs afin de réaliser une absorption saturée.

### 2- Fréquences laser :

Il existe plusieurs possibilités pour générer les deux fréquences optiques nécessaires aux impulsions laser CPT. La référence [70] utilise la modulation de fréquence appliquée directement sur un MAO. Aux fréquences plus élevées que quelques GHz, une autre solution consiste

à utiliser un modulateur electro-optique (MEO) fibré. Nous avons pu tester un modulateur (n° série NIR-MPX-LN-02-P-P-FA-FA de la marque Photline Technologies) opérationnel à  $\lambda = 1053 \text{ nm}$ . Nous avons mesuré à titre expérimental le rapport  $J_{+1}/J_0$  entre la première bande latérale et la porteuse mais à la longueur d'onde  $\lambda = 894 \text{ nm}$ . Nous avons obtenu de façon tout à fait préliminaire au moins 50% de la porteuse dans la bande latérale jusqu'à une fréquence de modulation de 2 GHz autour de 4, 6 GHz. La puissance micro-onde appliquée était de 12 dBm. Nous avons d'ailleurs pu observer la résonance CPT dans une cellule de vapeur de Cs avec environ 100  $\mu\text{W}$  de puissance laser en sortie de fibre. Le maser à CPT développé par l'IEN à Turin utilise soit un MEO modulé en phase ou une modulation directe sur le courant de la diode du Rubidium 87 [66]. Toutefois, nous avons retenu pour notre expérience le verrouillage de phase de deux LCE. Cette situation bien que plus compliquée à mettre en oeuvre permet d'asservir la différence de fréquence d'un laser (appelé laser esclave) par rapport à celle d'un laser de référence (appelé laser maître). Cette différence de fréquence est maintenue par un dispositif électronique (une boucle d'asservissement phase-fréquence) qui assure un double contrôle de celle-ci par des corrections lentes et rapides sur le courant et la cale piézo électrique de la cavité LCE esclave [136]. Le verrouillage de phase des deux sources laser permet de séparer les faisceaux et de jouer sur les intensités ou les fréquences indépendamment de l'une ou l'autre source. Enfin, on ne génère que deux bandes latérales et non les harmoniques latérales lorsque l'on module directement le courant de la diode [118]. Ces harmoniques sont responsables de perturbations induites par la création de transitions virtuelles voisines qui déforment et déplacent la résonance noire [137, 118].

### 3- Le verrouillage de phase à 9,192 GHz

Le schéma de principe de l'asservissement par verrouillage de phase est simplement décrite par la figure Fig. 4.4. Les faisceaux du laser maître et esclave (puissance totale 500  $\mu\text{W}$ ) sont ensuite mélangés afin d'effectuer un battement à 9.192 GHz. Ce battement est détecté par une photodiode rapide de marque Newfocus (modèle 2592 avec une fibre très courte de 10 cm de long) puis amplifié de + 20dB. Il est comparé avec un signal de référence à 9,292 GHz (puissance délivrée +7dBm) délivré par une chaîne de fréquence asservie sur le maser du laboratoire et piloté en fréquence par un synthétiseur de marque Agilent (DDS 33220 de fréquence maximale 20 MHz). Un filtre passe-bas de 200 MHz est placé en sortie du mélangeur afin de filtrer les fréquences parasites. Le signal à 100 MHz est ensuite divisé par 2 et lui même comparé avec la fréquence d'un synthétiseur de fréquence (modèle Stanford DS 345 délivrant une fréquence maximale de 30 MHz) doublé à 50 MHz (puissance -0.01dBm). Le signal final à 50 MHz pilote un comparateur phase-fréquence. Le signal d'erreur en sortie du comparateur est directement envoyé sur le courant de la diode laser (corrections rapides) et sur la cale piézo électrique du réseau (corrections lentes). L'adaptation d'impédance du signal de correction sur le courant implique l'utilisation d'une petite carte comprenant une diode de protection et deux résistances afin d'adapter la valeur de la correction appliquée sur le courant de la diode et éviter le décrochage de l'asservissement. La largeur du battement entre les deux lasers verrouillés en phase est typiquement inférieur au Hz lorsque la boucle est active. Afin de bénéficier d'un temps de réponse rapide, le circuit de correction doit être le plus court possible. Si ce n'est pas le cas, la bande passante d'asservissement en est réduite. Dans notre cas, cette bande passante était habituellement de 2 MHz.

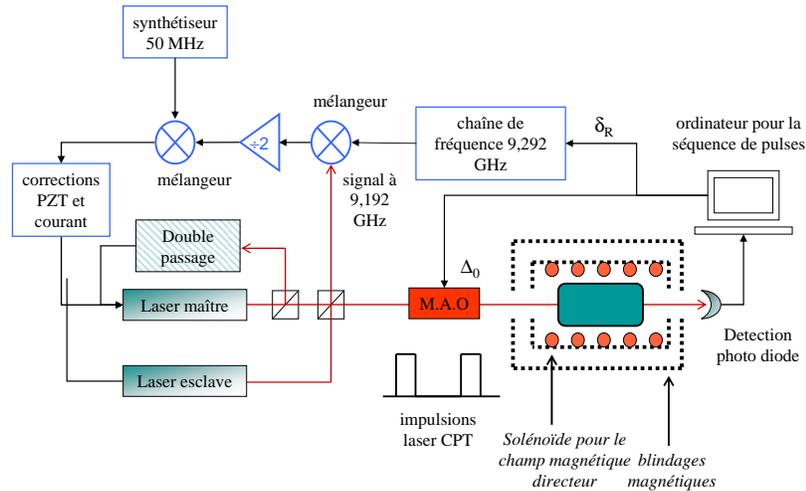


FIG. 4.4 – *Montage pour le verrouillage phase-fréquence des lasers maître et esclave.* L'ordinateur assure le balayage du désaccord Raman  $\delta_R$ , c'est à dire de la différence de fréquence entre les fréquences lasers et la fréquence d'horloge. Le désaccord optique  $\Delta_0$  entre les fréquences optiques et le niveau excité est contrôlé par le second MAO.

## 4.2 Vapeur thermique de Césium en présence de gaz tampon

Le résonateur atomique est simplement constitué d'une cellule de pyrex de diamètre  $d=25$  mm et de longueur  $L=50$  mm (Modèle Toptica). Le champ magnétique directeur généré le long de l'axe de propagation des faisceaux CPT est de l'ordre de  $20 \mu\text{T}$ . L'ensemble est ensuite placée dans deux blindages magnétiques contre le champ magnétique terrestre de  $50 \mu\text{T}$ . La cellule de pyrex est placée à l'intérieur d'une cavité dans laquelle on peut appliquer un vide secondaire suffisant pour réduire fortement la sensibilité aux fluctuations de température.

### 4.2.1 Spectre d'absorption

La cellule contient une vapeur atomique de Césium et 23 Torr de diazote  $N_2$  (à  $\pm 20\%$  d'après Toptica) qui confine par collisions l'atome dans le régime de Lamb-Dicke. D'après la figure Fig. 4.5, le gaz entraîne une importante diminution de l'absorption et un élargissement radiatif de l'ordre de plusieurs centaines de MHz. L'ajustement des courbes théoriques et

expérimentales (à l'aide d'un facteur d'échelle correctif) montrent que la résonance subit un élargissement  $\Gamma^* = 850 \text{ MHz} \pm 50 \text{ MHz}$  et un déplacement de fréquence  $\nu^* - \nu = -220 \text{ MHz} \pm 30 \text{ MHz}$  où  $\nu^*$  est la fréquence de résonance avec gaz tampon. Les coeffi-

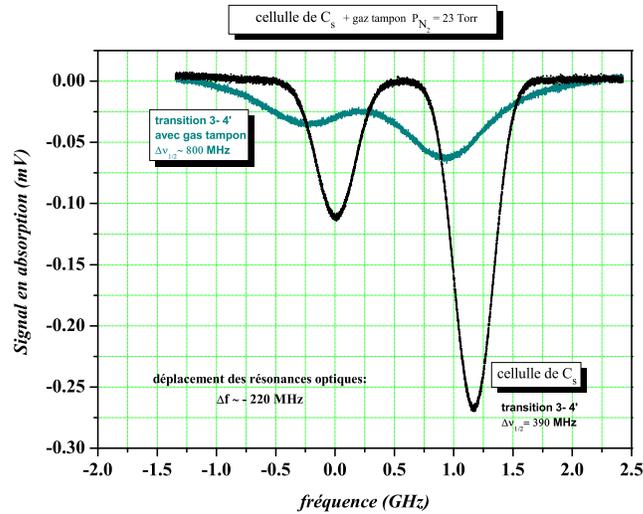


FIG. 4.5 – Observation expérimentale de la transmission d'un faisceau laser à travers une cellule de Cs avec et sans gaz tampon.

cients de déplacement et d'élargissement de référence de la transition optique obtenues à partir de [138] donne une pression de gaz tampon de  $23,5 \text{ Torr} \pm 3 \text{ Torr}$  estimé à partir de l'élargissement collisionnel et de  $26,7 \text{ Torr} \pm 4 \text{ Torr}$  à partir du déplacement de la transition. La pression de gaz tampon est donc proche des 23 Torr annoncés à 20% près (incertitude du fournisseur Toptica). L'ajout d'un gaz tampon avec une vapeur atomique permet d'éliminer l'élargissement Doppler du premier ordre qui affecte la transition d'horloge micro-onde. Toutefois la présence d'un gaz étranger à la vapeur atomique alcaline entraîne plusieurs effets qui perturbent l'état interne de l'atome. Plusieurs processus peuvent entraîner non seulement une relaxation rapide des cohérences hyperfines fondamentales comme on l'a vu mais aussi un élargissement des transitions optiques ou micro-ondes. La plupart des effets perturbateurs importants sont décrits dans les références [139] et [127] :

– **Vitesse de diffusion des atomes :**

Les collisions entre atomes de Cs entraînent une modification systématique des classes de vitesse atomique. Il en résulte une diminution du temps moyen d'interaction des atomes avec les champs laser. Si le temps de réponse atomique est plus long que le temps moyen entre deux collisions, l'atome est expulsé et n'a pas le temps de déterminer si le champ laser excitateur est résonnant ou non avant que la cohérence Raman ne soit entièrement établie et réduit donc la durée de vie de cette cohérence. Les cohérences optiques sont beaucoup moins affectées par cet effet puisque leur temps de vie est

beaucoup plus court.

– **Collision par échange de spin :**

Tout phénomène aléatoire qui perturbe l'orientation des spins réduit la durée de vie des cohérences hyperfines et des cohérences Zeeman. Les interactions par échange de spin ou les interactions de type spin-orbite (couplage entre le spin d'un atome et le champ créé par un électron d'un atome voisin) provoquent des couplages qui influencent les temps de relaxation des cohérences. Par exemple, les collisions des atomes avec la paroi de la cellule perturbent le spin électronique. L'emploi d'une substance comme la paraffine sur les parois élimine fortement ce type de relaxation.

– **Phénomène de Quenching :**

Lors d'une collision entre un atome et une molécule du gaz étranger, l'atome peut transférer de l'énergie à la molécule sans émettre de photons de fluorescence ("Quenching" en anglais). Ce phénomène peut être malheureusement problématique si on détecte par exemple la population de l'état excité puisque le taux de fluorescence en est considérablement diminué. Le diazote est connue pour être l'un des gaz tampons les plus efficace pour le "Quenching".

– **Phénomène de Radiation Trapping :**

Si la longueur d'absorption des champs laser à travers la cellule est plus petite que l'extension de la vapeur atomique, les photons de fluorescence peuvent être réabsorbés et réémis plusieurs fois. Cela entraîne un processus d'émission de lumière incohérente qui se forme dans la vapeur et réduit alors la durée de vie des cohérences Raman. Ce phénomène joue un rôle non négligeable à forte densité ( $\sim 10^{12} \text{ atomes.cm}^{-3}$ ) ou à température élevée ( $40 - 80^\circ \text{C}$ )

## 4.2.2 Largeur de raie et déplacement de fréquence des transitions optiques

Pour des transitions optiques entre niveaux hyperfins, le régime Lamb-Dicke n'est plus réalisé en pratique et les collisions avec le gaz tampon élargissent les niveaux excités de plusieurs centaines de MHz [140, 141]. Ceci peut être modélisé par une loi linéaire au premier ordre avec la pression  $P$  de gaz tampon [138] :

$$\Gamma^* \approx \Gamma + \Delta\nu_D + \beta_{opt} P \quad (4.3)$$

avec  $\Gamma$  la relaxation naturelle de la résonance,  $\Delta\nu_D$  l'élargissement Doppler et  $\beta_{opt}$  le coefficient d'élargissement collisionnel en MHz/Torr (voir tableau Tab.4.1).

Soulignons que l'augmentation du taux de relaxation des niveaux excités produit une diminution du taux de pompage optique et donc une réduction de la saturation des processus Raman.

Gaz	transition Césium	Valeur (MHz/Torr) à 21°C [138]
$N_2$	$\beta_{opt}$ D1( $\lambda = 894,6 \text{ nm}$ )	19,51 $\pm$ 0.06
$N_2$	$\beta_{opt}$ D2( $\lambda = 852,3 \text{ nm}$ )	22,58 $\pm$ 0.06
$N_2$	déplacement optique D1	-8,23 $\pm$ 0.02
$N_2$	déplacement optique D2	-6,73 $\pm$ 0.01

TAB. 4.1 – Valeurs des coefficients d'élargissement et de déplacement optique des transitions D1 et D2 dans le cas de  $N_2$ .

### 4.3 Observation en régime stationnaire : résonance noire en simple ( $\Lambda$ ) et double lambda ( $\Lambda\Lambda$ )

Afin d'observer les transitions micro-ondes et notamment la transition d'horloge  $|F = 3, m_f = 0\rangle \iff |F = 4, m_f = 0\rangle$ , il faut appliquer un champ magnétique directeur le long de l'axe de propagation des faisceaux lasers pour lever la dégénérescence des états atomiques. Cette cellule est donc placée dans un solénoïde constitué par du fil fin de cuivre enroulé sur un tube en dural. Les couplages lasers nécessaires au schéma  $\Lambda$  sont habituellement réalisés à l'aide de polarisations circulaires droite  $\sigma^-$  ou gauche  $\sigma^+$ . Pour cela, on utilise une lame quart onde  $\lambda/4$  placée sur le passage des deux faisceaux lasers de polarisations parallèles. A la sortie de la lame, le couplage réalisé est soit circulaire gauche soit circulaire droit.

#### 4.3.1 Polarisation circulaires ( $\sigma^\pm$ ) et orthogonales (lin $\perp$ lin)

Pour le Cs, les couplages peuvent être effectués sur la raie D2 ( $^2P_{3/2}$ ) ou la raie D1 ( $^2P_{1/2}$ ). Dans le cas circulaire  $\sigma^+$ , on couple les niveaux fondamentaux  $|F, m_f = 0\rangle$ ,  $|F' = F + 1, m_f = 0\rangle$  avec le niveau excité  $|F_e, m_{f_e} = +1\rangle$  ou  $|F_e, m_{f_e} = -1\rangle$  (Fig. 4.6). La possibilité de réaliser un couplage double  $\Lambda$  est possible si les polarisations de chaque laser sont orthogonales entre elles. Dans ce cas, les niveaux fondamentaux restent identiques mais on les couple avec les deux niveaux excités  $|F_e, m_{f_e} = +1\rangle$  et  $|F_e, m_{f_e} = -1\rangle$  (Fig. 4.6).

Afin de réaliser des transitions simple ou double lambda, l'axe de quantification du champ magnétique doit être appliqué le long de l'axe de propagation des faisceaux laser. La levée de dégénérescence permet de séparer les sous niveaux Zeeman des états hyperfins couplés par les deux champs laser. Lorsque la configuration en polarisation circulaire des lasers est choisie, les transitions possibles sont de type  $\sigma^+\sigma^+$  ou  $\sigma^-\sigma^-$ . Le champ magnétique appliqué est habituellement de l'ordre de 20  $\mu\text{T}$ . Le spectre d'absorption Zeeman des résonances noires en configuration simple lambda  $\Lambda$  se compose alors de 6 transitions hyperfines lorsque le niveau intermédiaire de couplage est  $F' = 3$  ou de 7 transitions lorsque  $F' = 4$ .

L'observation en régime stationnaire des résonances noires nous permet de caractériser la largeur de raie et le contraste du signal transmis en fonction de la saturation optique. La comparaison du spectre d'absorption en configuration de polarisation circulaire ( $\sigma^+\sigma^+$  ou  $\sigma^-\sigma^-$ ) et en configuration lin $\perp$ lin a permis de montrer que l'on pouvait réduire fortement le pompage optique des atomes dans les états Zeeman pièges à l'aide du système en double lambda  $\Lambda\Lambda$ . Ce schéma apporte donc un avantage incontournable sur la configuration circulaire traditionnelle en simple lambda ( $\Lambda$ ) puisque tous les niveaux sont couplés par la lumière laser. On repompe en quelque sorte les atomes perdus sur des niveaux pièges

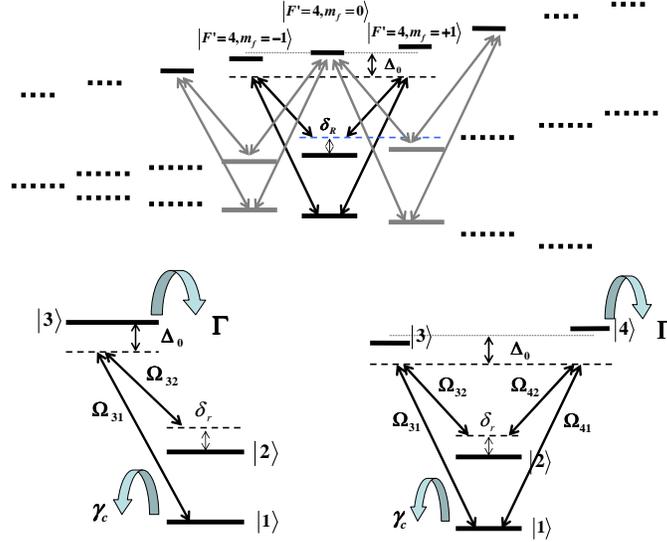


FIG. 4.6 – *Schéma simple lambda  $\Lambda$  versus double lambda  $\Lambda\Lambda$ .  $\Gamma$  représente le taux d'émission spontanée et le désaccord optique  $\Delta_0$ .  $\gamma_c$  est le taux de relaxation de la cohérence hyperfine entre les deux niveaux d'horloges.*

qui ne participent plus au phénomène CPT [142]. Le spectre Zeeman expérimental réalisé en configuration lin $\perp$ lin démontre clairement son efficacité puisque le spectre est d'abord symétrique autour de la transition d'horloge. De plus, le contraste optimisé est toujours plus important que le contraste réalisé en configuration circulaire droite ou gauche.

La réalisation en configuration circulaire est simple puisque il suffit alors de rendre les polarisations de chaque laser parallèle entre elles et de placer une lame quart-onde sur le trajet des faisceaux pour obtenir le couplage simple  $\Lambda$ . En configuration lin $\perp$ lin, les deux polarisations de chaque laser doivent être orthogonales entre elles. Ceci peut être effectué en plaçant un cube séparateur de polarisation sur le trajet commun aux deux faisceaux lasers. On récupère alors en sortie de chaque face une combinaison des polarisations circulaires droite et gauche de chaque faisceau. Sachant que le champ magnétique définit l'axe de quantification  $e_z$  de notre système atomique, on peut définir les champs électriques de chaque laser  $E_1$  et  $E_2$  à l'aide du référentiel suivant :

$$\begin{aligned}
 e_x &= -\frac{1}{\sqrt{2}}(e_{+1} - e_{-1}) \\
 e_y &= -\frac{i}{\sqrt{2}}(e_{+1} - e_{-1}) \\
 e_z &= e_0
 \end{aligned} \tag{4.4}$$

Le couplage par les champs laser se note :

$$\mathbf{V} = -\mathbf{D} \cdot (\mathbf{E}_1 + \mathbf{E}_2) \tag{4.5}$$

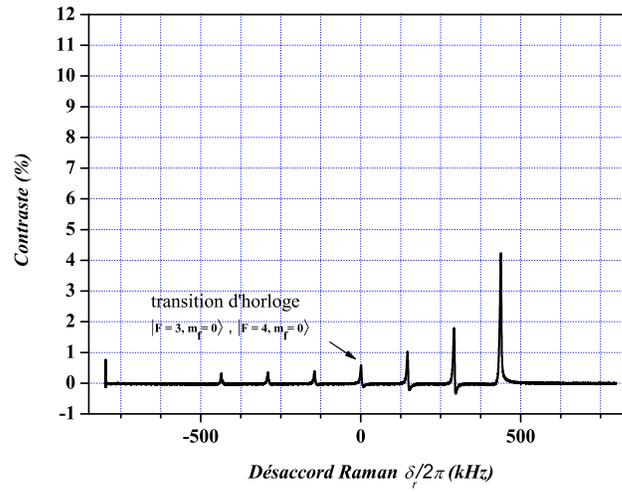


FIG. 4.7 – *Spectre Zeeman expérimental en configuration  $\sigma$  des résonances noires avec le niveau intermédiaire  $F' = 4$ . (Moyennage 16).*

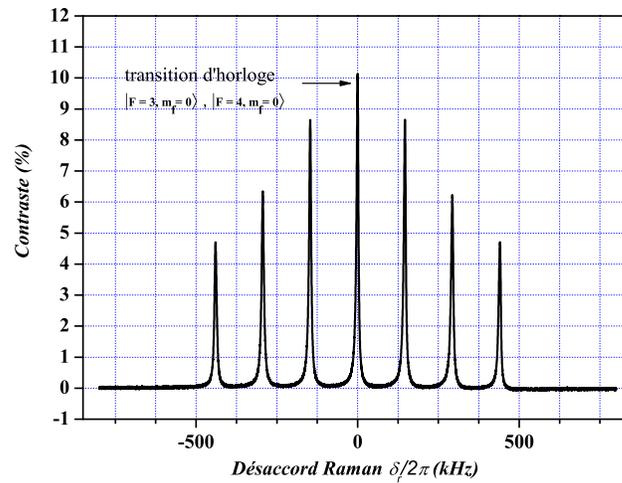


FIG. 4.8 – *Spectre Zeeman expérimental en configuration  $lin \perp lin$  des résonances noires avec le niveau intermédiaire  $F' = 4$ . (Moyennage 16).*

avec  $\mathbf{D}$  l'élément de matrice dipolaire électrique correspondant au couplage entre niveau hyperfins. On rappelle les propriétés remarquables de cet élément de matrice :

$$\begin{aligned} -(D_{-1})_{i,j} &= +(D_1)_{j,i} \\ -(D_{-1})_{j,i} &= +(D_1)_{i,j} \end{aligned} \quad (4.6)$$

**Cas 1 :  $E_1 \parallel E_2$**

Les champs laser sont définis par  $\mathbf{E}_1 \parallel \text{Ox}$  parallèle à  $\mathbf{E}_2 \parallel \text{Oy}$ . On peut réécrire le couplage sous la forme :

$$\begin{aligned} \mathbf{V} &= \frac{1}{2\sqrt{2}} \{E_{1,0} \exp(-i\omega_1 t) + E_{2,0} \exp(-i(\omega_2 + \varphi)t) \\ &\quad \times (\Sigma_{i,j} (|i\rangle \langle i| D_1 - D_{-1} |j\rangle \langle j|)) + cc\} \end{aligned} \quad (4.7)$$

Après passage dans le référentiel tournant et en négligeant les termes exponentiels en  $\omega_2 - \omega_1$  qui évoluent beaucoup plus vite, on obtient l'hamiltonien d'interaction en représentation des ondes tournantes (RWA) :

$$\tilde{\mathbf{V}} = \frac{1}{2\sqrt{2}} \{ \Omega_{41} |4\rangle \langle 1| + \Omega_{42} |4\rangle \langle 2| - \Omega_{31} |3\rangle \langle 1| - \Omega_{32} |3\rangle \langle 2| + cc \} \quad (4.8)$$

avec le fréquence de Rabi angulaire  $\Omega_{ij} = -\langle i | \mathbf{D} | j \rangle E_{j,0} / \hbar$ . **Dans le cas des polarisations parallèles, il n'existe pas d'état noir à la fois pour le niveau  $|3\rangle$  et le niveau  $|4\rangle$ .**

**Cas 2 :  $E_1 \perp E_2$**

Les champs laser sont définis par  $\mathbf{E}_1 \parallel \text{Ox}$  orthogonal à  $\mathbf{E}_2 \parallel \text{Oy}$ . Le couplage s'écrit, cette fois-ci, pour chaque opérateur  $V_1$  et  $V_2$  :

$$\begin{aligned} V_1 &= \frac{1}{2\sqrt{2}} \{E_{1,0} \exp(-i\omega_1 t) (D_1 - D_{-1}) + cc\} \\ V_2 &= -i \frac{1}{2\sqrt{2}} \{E_{2,0} \exp(-i(\omega_2 + \varphi)t) (D_1 + D_{-1}) + cc\} \end{aligned} \quad (4.9)$$

Le couplage total d'interaction s'écrit alors :

$$V = \Sigma_{i,j} |i\rangle V_{i,j} \langle j| \quad (4.10)$$

Au final, nous obtenons l'hamiltonien suivant :

$$\tilde{\mathbf{V}} = \frac{1}{2\sqrt{2}} \{ \Omega_{41} |4\rangle \langle 1| - i\Omega_{42} |4\rangle \langle 2| - \Omega_{31} |3\rangle \langle 1| - i\Omega_{32} |3\rangle \langle 2| + cc \} \quad (4.11)$$

**On peut dans ce cas trouver un état noir  $\Psi_{NC}$  pour les deux états hyperfins intermédiaires de couplage  $|3\rangle$  et  $|4\rangle$ .** Cet état doit obéir au rapport des coefficients de couplage sur chaque transition (coefficients de Clebsch-Gordan) :

$$\frac{\Omega_{42}}{\Omega_{41}} = -\frac{\Omega_{32}}{\Omega_{31}} \quad (4.12)$$

L'état noir  $|\Psi_{NC}\rangle$  n'est pas couplé aux champs laser de telle sorte que  $\tilde{V}|\Psi_{NC}\rangle = 0$ . Utilisant Eq. (4.10) et Eq. (4.12), son expression est par exemple :

$$|\Psi_{NC}\rangle = \frac{\Omega_{42}}{\sqrt{\Omega_{42}^2 + \Omega_{41}^2}}|1\rangle - i\frac{\Omega_{41}}{\sqrt{\Omega_{42}^2 + \Omega_{41}^2}}|2\rangle \quad (4.13)$$

ou

$$|\Psi_{NC}\rangle = \frac{\Omega_{32}}{\sqrt{\Omega_{32}^2 + \Omega_{31}^2}}|1\rangle + i\frac{\Omega_{31}}{\sqrt{\Omega_{32}^2 + \Omega_{31}^2}}|2\rangle \quad (4.14)$$

Ces deux superpositions d'états sont noires à la fois pour  $|3\rangle$  et  $|4\rangle$ . Pour les sous niveaux Zeeman  $m_F \neq 0$ , les superpositions d'état noir sont limitées en contraste par des processus de fuite sur les niveaux voisins. Le schéma ( $\Lambda\Lambda$ ) n'est pas nouveau puisque certains auteurs [143, 144] avaient déjà envisagé un tel système à 4 niveaux pour le laser sans inversion de population ou encore les processus de mélange à 4 ondes dans une vapeur atomique. Le schéma  $\Lambda\Lambda$  est équivalent à un système à 3 niveaux en simple  $\Lambda$  en écrivant l'hamiltonien Eq. 4.11 d'interaction comme :

$$\tilde{V} = \frac{1}{2\sqrt{2}}\{\sqrt{\Omega_{41}^2 + \Omega_{31}^2}|e\rangle\langle 1| - i\sqrt{\Omega_{42}^2 + \Omega_{32}^2}|e\rangle\langle 2|\} \quad (4.15)$$

où :

$$|e\rangle = \frac{1}{\sqrt{\Omega_{41}^2 + \Omega_{31}^2}}\{\Omega_{41}|4\rangle - \Omega_{31}|3\rangle\} \quad (4.16)$$

Les nouvelles fréquences de Rabi s'écrivent maintenant :

$$\Omega_1 \equiv \frac{\sqrt{\Omega_{41}^2 + \Omega_{31}^2}}{2\sqrt{2}} \quad \Omega_2 \equiv -i\frac{\sqrt{\Omega_{42}^2 + \Omega_{32}^2}}{2\sqrt{2}} \quad (4.17)$$

Dans la suite, nous ne considérons plus que deux fréquences de Rabi notées  $\Omega_1$  et  $\Omega_2$  afin de comparer les modèles théoriques et les résultats expérimentaux.

### 4.3.2 Comparaison du profil de la résonance avec le modèle de la matrice densité

Notre modèle stationnaire permet de reproduire avec une bonne précision le profil des résonances noires observées. Après avoir introduit les changements de variables adéquates  $\Gamma_{31} = \Gamma_{32} = \gamma_{c1} = \gamma_{c2} = \frac{\Gamma^*}{2}$  et la présence du gaz tampon avec  $\gamma_c$ , le balayage par verrouillage de phase appliqué sur notre dispositif est défini par :

$$\begin{aligned} \Delta_1 &= \Delta_0 \\ \Delta_1 &= \Delta_0 - \delta_r \end{aligned} \quad (4.18)$$

On détecte la somme des deux parties imaginaires des cohérences optiques  $Im\{\rho_{13}^{stat}\} + Im\{\rho_{23}^{stat}\}$  avec ( $i = 1, 2$ ) :

$$Im\{\rho_{i,3}\}^{stat} = -S\Lambda \frac{\Gamma^{3,i*}}{2\Omega_i} \times \frac{(\delta_r)^2 + \gamma_c^2 + 2\gamma_c(\Gamma^*)S^*}{\delta_r(\delta_r - \Delta_f) + \Gamma_{eff}^2} \quad (4.19)$$

Les expressions de  $\Delta_f$  et de  $\Gamma_{eff}$  sont données dans l'annexe C. Le profil de raie de la transition d'horloge est donnée par la figure Fig. 4.9. La comparaison des courbes théoriques

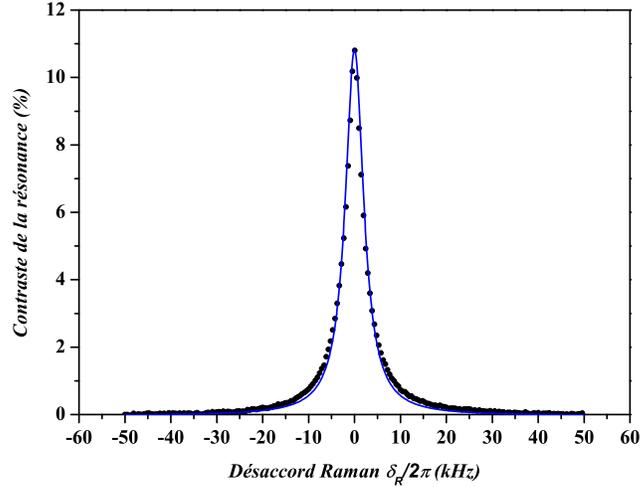


FIG. 4.9 – Profil expérimental (points  $\bullet$ ) et théorique (courbe solide) obtenue à partir de l'équation Eq. 4.19 de la transition d'horloge  $|F = 3, m_f = 0\rangle \leftrightarrow |F = 4, m_f = 0\rangle$ . (Moyennage 16).

et expérimentales est uniquement réalisée à partir des fréquences de Rabi de chaque laser et de l'ajustement des courbes sur la largeur à mi-hauteur des spectres.

Le bon accord entre la courbe théorique et le signal expérimental montre que le profil de distribution d'intensité dans la cellule est bien homogène. On peut remarquer toutefois un léger désaccord entre les courbes sur les ailes des résonances. Il est possible que la distribution réelle en intensité dans le col des faisceaux lasers soit de type gaussienne et responsable de ce léger écart.

### 4.3.3 Largeur de raie des résonances noires en fonction de la saturation

La largeur de raie de la résonance dépend explicitement de l'intensité laser traversant la cellule. On montre ici que l'élargissement de la résonance avec la saturation (ou les fréquences de Rabi) est bien toujours linéaire à faible intensité.

On rappelle que le modèle de la matrice densité nous permet de déterminer la largeur à mi-hauteur de cette résonance noire. Cette largeur de raie peut être approximée à faible saturation par la formule :

$$\Delta\omega = \frac{2\gamma_c}{\sqrt{1+S}} \sqrt{\left(1 + 3S + \frac{\Gamma^*}{\gamma_c} S^*\right) \left(1 + \frac{\Gamma^*}{\gamma_c} S^*\right)} \quad (4.20)$$

avec  $\gamma_c/2\pi \sim 30$  Hz,  $\Gamma/2\pi \sim 800$  MHz est le taux de relaxation par émission spontanée élargi par les collisions avec le gas tampon. Dans l'équation Eq. (4.20), on retrouve

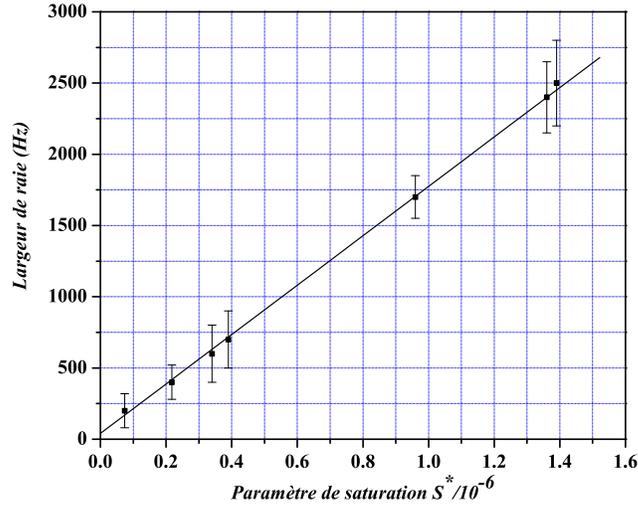


FIG. 4.10 – *Largueur expérimentale à mi-hauteur de la transition d'horloge en fonction du paramètre de saturation laser  $S^*$ .*

l'expression des taux de saturation  $S$  et  $S^*$  :

$$S = \frac{\Omega_1^2 \Omega_2^2}{(\Omega_1^2 + \Omega_2^2) \cdot (\Gamma^*)^2 / 4} \quad S^* = \frac{(\Omega_1/2)^2 + (\Omega_2/2)^2}{(\Gamma^*)^2} \quad (4.21)$$

où  $\Omega_1$  et  $\Omega_2$  sont les fréquences de Rabi associées aux couplages optiques. Pour de grands  $\Gamma^*/\gamma_c$ , l'intensité de saturation de la résonance CPT est très faible  $\sim 1 \mu\text{W}/\text{cm}^2$  et entraîne une dépendance linéaire avec le paramètre  $S^*$  ( $S \ll 1$ ) [68, 66].

#### 4.3.4 Schéma de polarisation et contraste des résonances noires

Le point important du système  $\Lambda\Lambda$  repose sur les couplages non destructifs de tous les sous niveaux Zeeman par l'intermédiaire des transitions  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$ . Il y a alors un phénomène de repompage des atomes sur les transitions CPT réduisant fortement la présence des atomes dans les niveaux pièges en configuration simple  $\Lambda$ . Nous avons donc comparé le contraste des deux configurations de polarisation de la transition d'horloge en fonction de l'intensité des champs lasers appliqués sur le système atomique.

Le contraste atteint une limite asymptotique avec le pompage laser autour de 12% pour une configuration lin $\perp$ lin tandis que le contraste en circulaire  $\sigma$  passe par un maximum autour de 3% avant de chuter à cause du pompage dans les états pièges (Voir Fig. 4.11). L'élargissement de la raie en fonction de la saturation est un problème pour une application spectroscopique de bonne résolution ( $\sim 100$  Hz). Les applications métrologiques habituelles des résonances noires (Horloge à CPT) en polarisation circulaire (simple  $\Lambda$ ) utilisent une

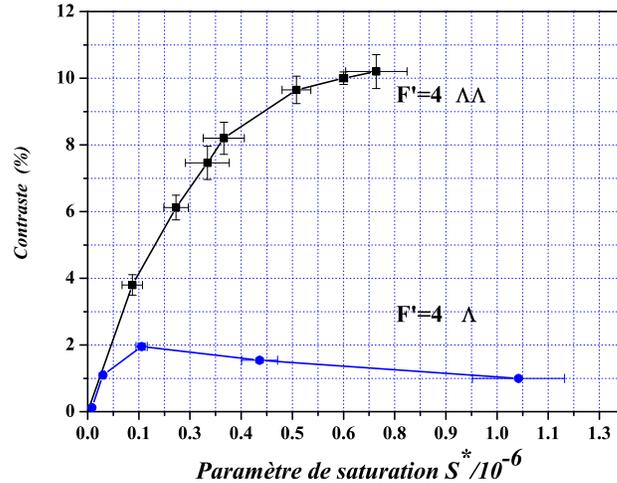


FIG. 4.11 – *Contraste de la transition d’horloge en fonction de l’intensité laser. la configuration  $lin \perp lin$  est notée  $\Lambda\Lambda$  et la configuration circulaire  $\sigma$  est notée  $\Lambda$ .*

très faible saturation afin de réaliser des largeurs inférieurs à 100-400 Hz mais avec souvent un mauvais contraste (quelques %) [66, 119]. Les largeurs ultimes produites en régime stationnaire sont toutefois impressionnantes puisque le groupe de Wynands a observé une largeur  $< 50$  Hz de faible contraste avec un système identique au nôtre mais sur la raie D2 du Cs [81]. Merimaa *et.al* ont reporté une largeur de 17 Hz mais avec un très mauvais rapport signal sur bruit (de l’ordre de 100-200) [130]. Plusieurs techniques ont été développées ces dernières années afin d’améliorer le contraste. En utilisant un interféromètre de type Mach-Zehnder modulé sur une voie par un piézo-electrique et un modulateur electro-optique afin de générer des bandes latérales à partir d’une source laser, le groupe de William Happer a réalisé l’équivalent de notre système  $Lin \perp Lin$  en alternant rapidement à 9.2 GHz les polarisations circulaires  $\sigma^+\sigma^+$  et  $\sigma^-\sigma^-$  [145]. Le contraste obtenu sur une vapeur de Rb 87 avec un gaz tampon de pression 35 Torr est ainsi d’environ 15 %. Citons enfin les travaux des références [146, 147] qui ont réalisé des contrastes similaires à partir de deux faisceaux CPT contra-propageants réduisant aussi le pompage dans les niveaux pièges. Toutefois, la géométrie contra-propageante impose alors une contrainte sur la longueur de la cellule pour observer le phénomène. De récents développements théoriques [76] ont suivi de près les résultats expérimentaux obtenus en configuration  $Lin \perp Lin$  sur la raie D1 du Césium et du Rubidium [148, 145].

Aucune autre expérience n’a pour l’instant combinée un tel schéma de pompage optique avec la méthode des impulsions CPT. La combinaison de faisceaux lasers polarisés orthogonalement au champ magnétique directeur implique rigoureusement un couplage complexe de toutes les transitions hyperfines micro-ondes avec les sous niveaux atomiques  $^2P_{1/2}$ . Dans un champ magnétique de 20  $\mu$ T, la transition d’horloge  $|F = 3, m_f = 0\rangle \leftrightarrow |F = 4, m_f = 0\rangle$

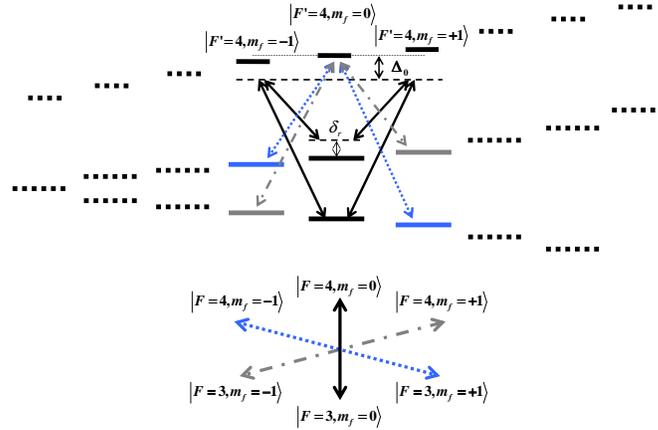


FIG. 4.12 – Schéma de couplage possible des transitions voisines de 9,2 GHz.

n'est en réalité pas la seule. La figure Fig. 4.12 montre qu'il y a 2 autres transitions possibles voisines de 9.2 GHz qui participent au signal détecté. Avec un champ magnétique de 200 mG et un déplacement de -351 kHz/G pour le niveau  $|F = 3, m_f = \pm 1\rangle$  et +350 kHz/G pour le niveau  $|F = 4, m_f = \pm 1\rangle$ , les transitions hyperfines croisées  $|F = 3, m_f = -1\rangle \leftrightarrow |F = 4, m_f = +1\rangle$  et  $|F = 3, m_f = +1\rangle \leftrightarrow |F = 4, m_f = -1\rangle$  ne sont décalés que de 200 Hz environ autour de la transition d'horloge. Comme la résonance observée est élargie par effet de saturation (typiquement de 10 à 12 kHz), les résonances croisées ne sont pas résolues. Si le champ magnétique était augmenté ou la saturation réduite, les transitions devraient se manifester de par et d'autre de la transition  $|F = 3, m_f = 0\rangle \leftrightarrow |F = 4, m_f = 0\rangle$ . Soit  $\nu(m_3, m_4)$  la fréquence de la transition entre les sous niveaux  $|F = 3, m_f = m_3\rangle$  et  $|F = 4, m_f = m_4\rangle$  du niveau fondamentale. D'après la formule de Breit-Rabi [127] :

$$\nu(m_3, m_4) = \frac{\nu_0}{2} \left( \sqrt{1 + \frac{m_3}{2}X + X^2} + \sqrt{1 + \frac{m_4}{2}X + X^2} \right) + g_I \frac{\mu_B B}{h\nu_0} \quad (4.22)$$

où  $\nu_0$  est la fréquence correspondant à l'écart hyperfin en champ nul. On rappelle que :

$$X = \frac{(g_J - g_I)\mu_B B}{h\nu_0} \quad (4.23)$$

Comme le champ magnétique appliqué est petit, l'équation Eq. 4.22 devient :

$$\nu(m_3, m_4) = \nu_0 \left[ 1 + \frac{(m_3 + m_4)X}{8} + \left( 1 - \frac{(m_3 + m_4)}{32} \right) \frac{X^2}{2} \right] + g_I \frac{\mu_B B}{h} (m_4 - m_3) \quad (4.24)$$

L'écart de fréquence entre la transition  $|F = 3, m_f = m_3\rangle \leftrightarrow |F = 4, m_f = m_4\rangle$  et la

transition  $|F = 3, m_f = 0\rangle \leftrightarrow |F = 4, m_f = 0\rangle$  est donc égale à :

$$\begin{aligned} \nu_D(m_3, m_4) = \nu(m_3, m_4) - \nu_{00} = \nu_0 & \left[ \frac{(m_3 + m_4)X}{8} + \left( \frac{(m_3 + m_4)}{32} \right) \frac{X^2}{2} \right] \\ & + g_I \frac{\mu_B B}{h} (m_4 - m_3) \end{aligned} \quad (4.25)$$

Pour les transitions  $\Lambda$  croisées telles que  $\Delta m = 2$ , nous avons donc :

$$\nu_D(\mp 1, \pm 1) = \nu_0 \frac{X^2}{32} \pm 2g_I \frac{\mu_B B}{h} \quad (4.26)$$

On constate donc que les deux transitions ne s'écartent pas de façon symétrique par rapport à la transition d'horloge. L'écart entre les deux vaut :

$$\begin{aligned} \nu_D &= \nu_D(-1, +1) - \nu_D(+1, -1) = 4g_I \frac{\mu_B B}{h} \\ \nu_D &= 2, 23298 \times 10^7 B \end{aligned} \quad (4.27)$$

soit un écart de 22,3 Hz/ $\mu$ T ou encore 2,232 kHz/Gauss. le centre des deux transitions se déplace par rapport à la transition d'horloge de :

$$\delta \nu_D = \nu_0 \frac{X^2}{32} = 2, 66946 \times 10^9 B^2 \quad (4.28)$$

soit un déplacement de  $2,669 \times 10^{-3}$  Hz/ $(\mu$ T) $^2$ .

## 4.4 Observation du régime impulsionnel

Contrairement au cas idéal d'un système à 2 niveaux de durée de vie infinie où l'on contrôle totalement le transfert de population, les processus de relaxation comme l'émission spontanée forcent le dipôle atomique vers une valeur stationnaire entraînant une différence de population quasi nulle. Durant l'évolution transitoire des variables atomiques, les variables temporelles peuvent atteindre en fait des quantités plus élevées que la valeur obtenue en régime stationnaire. Si l'on parvient à détecter ces transitoires par la mesure de l'absorption ou les populations, le contraste peut être nettement plus important. L'application d'impulsions lasers sur un système à 3 niveaux présente, comme nous allons le voir, de grandes similitudes avec les phénomènes observés par Bloch et Torrey dans les années 1940 en RMN [37, 54]. Ces transitoires peuvent être étudiés de différentes façons : Une approche adiabatique durant laquelle toutes les observables sont asservies sur l'évolution lente des populations. Cela signifie alors que les cohérences optiques atteignent beaucoup plus rapidement l'état stationnaire au cours du phénomène transitoire que les populations. Une approche perturbative autour de la condition de résonance permet de déterminer rapidement des solutions même en présence de champs électromagnétiques élevés bien que la plage d'étude en fréquence soit alors relativement faible.

### 4.4.1 Transitoire de la transmission optique après une impulsion CPT.

Le régime transitoire peut être observé en étudiant par exemple l'évolution de la transmission optique des faisceaux lasers en fonction du temps pour différentes valeurs du désaccord

Raman  $\delta_r$  (Fig. 4.14). A  $t=0$  et pour des fréquences de Rabi supposées identiques  $\Omega_1 = \Omega_2$ , la vapeur atomique est dans la superposition d'états atomiques  $\frac{1}{\sqrt{2}}(|F=4, m_f=0\rangle + |F=3, m_f=0\rangle)$ . On applique alors rapidement un saut de fréquence sur le laser maître afin de modifier de façon brusque le désaccord Raman. Les atomes, initialement dans la superposition d'états se retrouvent hors résonance et retournent alors rapidement vers un état stationnaire par un processus d'oscillations amorties au cours du temps (équivalent Free Induction Decay, Optical Nutation [149, 150, 151, 152]). On vérifie que la période des oscillations est

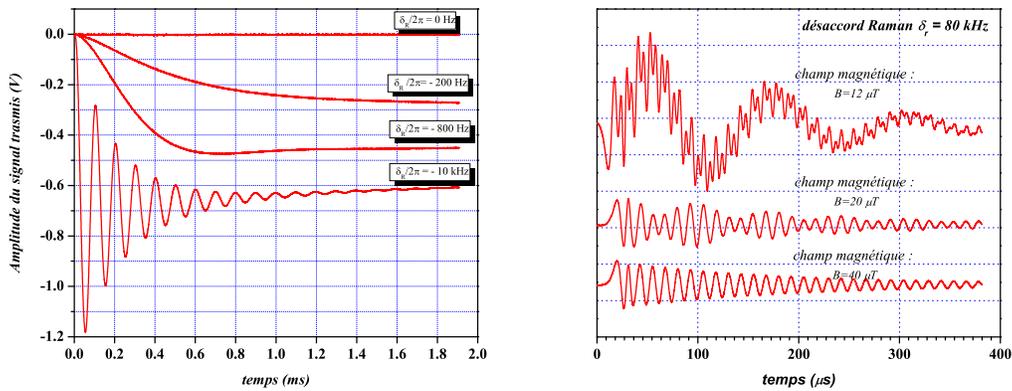


FIG. 4.13 – (a) Transmission optique en fonction du temps pour différents désaccords Raman  $\delta_r$ . (b) Battement entre différentes cohérences Zeeman en fonction du champ magnétique appliqué dans la cellule.

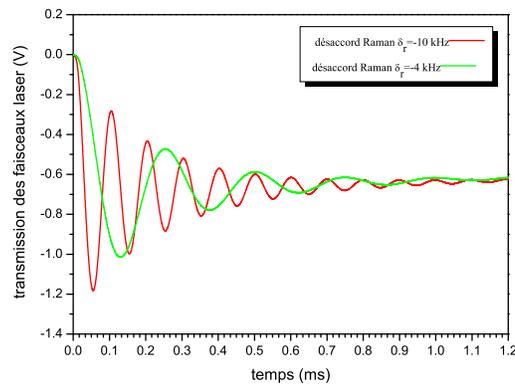


FIG. 4.14 – Transmission optique en fonction du temps pour différents désaccords Raman négatifs  $\delta_r \leq 0$ .

bien inversement proportionnelle au désaccord Raman  $2\pi/\delta_r$ . L'approche du chapitre 2 avec l'hypothèse que  $\Upsilon = 0(\Gamma_{31} = \Gamma_{32})$  entraîne que le taux de pompage entre l'état couplé  $|\Psi_+\rangle$  et l'état non couplé  $|\Psi_{NC}\rangle$  est égal au taux d'amortissement radiatif de la cohérence Raman  $\tau_P = \tau_{osc}$  et implique que la transmission optique ne dépend que de l'inverse du désaccord Raman<sup>1</sup>.

#### 4.4.2 "Méthode des wiggles" : mesure du temps de vie de la cohérence Raman en présence de lumière

Le second processus transitoire que l'on peut étudier est le phénomène des "wiggles". Ce phénomène a été discuté par Jacobsohn et Wangness [153] en 1948 pour la RMN, étudié sur une vapeur atomique de  $^{87}\text{Rb}$  avec un gaz tampon excitée par de la micro-onde [154], et plus récemment observé à l'aide de faisceaux CPT [110] sur une vapeur atomique de Rubidium. Dans un système à 2 niveaux, les "wiggles" correspondent au balayage rapide de la fréquence du laser maître autour de la condition de résonance et peut-être à l'origine d'une inversion de population quasi-complète de population si ce temps de balayage est plus court que le temps de relaxation du milieu atomique [38]. Dans notre situation, lorsque la condition de résonance Raman  $\delta_r$  est balayée de manière linéaire pendant un temps beaucoup plus court que le temps nécessaire pour atteindre l'état stationnaire, un processus de battement se produit entre la transmission du laser hors résonance et la cohérence Raman (ou cohérence hyperfine) créée à résonance. Des oscillations amorties apparaissent alors toujours après la formation de la résonance noire (Fig. 4.15). La référence [153] applique

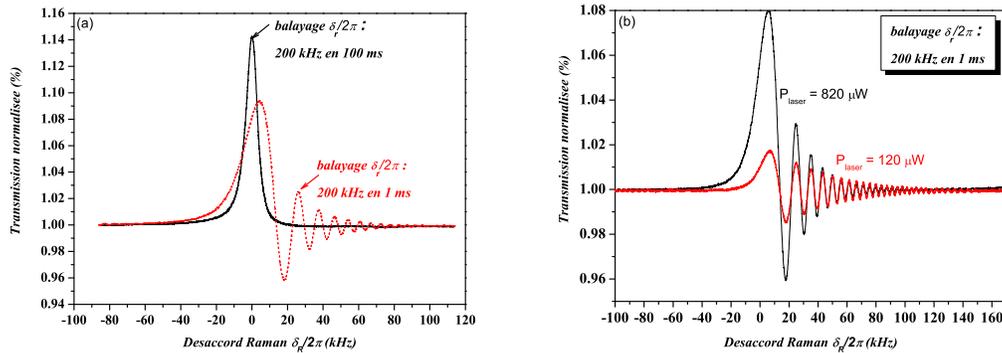


FIG. 4.15 – (a) "Wiggles" sur la transmission optique pour deux vitesses de balayage de la condition de résonance Raman  $\delta_r$ . (b) "Wiggles" pour 2 puissances laser.

un calcul analytique approché pour une configuration à 2 niveaux afin de déterminer les solutions transitoires obtenues selon un balayage linéaire du désaccord Raman. Les auteurs montrent notamment que selon la condition  $(\frac{\delta_r}{\Delta t})^{1/2} \cdot t_{eff}$  avec  $\frac{\delta_r}{\Delta t}$  la vitesse de balayage en

<sup>1</sup>La modélisation de la transmission optique par les équations de Bloch optiques doit prendre en compte l'existence d'une polarisation du milieu non nul à  $t=0$  puisque les lasers ont créé une cohérence hyperfine dans son état stationnaire

kHz/s et  $t_{eff}$  l'inverse du taux de relaxation  $\Gamma_{eff}$  de la cohérence Raman, on peut déterminer l'instant à partir duquel les oscillations se forment. Lorsque  $\left(\frac{\delta_r}{\Delta t}\right)^{1/2} \cdot t_{eff} \leq \frac{1}{2}$ , les oscillations sont complètement amorties et on peut mesurer  $t_{eff} = 1/\Gamma_{eff}$  avec une bonne précision. C'est une idée potentiellement intéressante pour mesurer le taux de relaxation total de la cohérence Raman en présence de la saturation optique. Dans notre cas, nous avons trouvé que les oscillations étaient amorties en dessous de  $\frac{\delta_r}{\Delta t} = 2\pi \cdot 200 \text{ kHz}$  en  $\Delta t = 4 \text{ ms}$ . Ce qui donne un taux de relaxation  $\Gamma_{eff}$  de l'ordre de  $2\pi \cdot 6 \text{ kHz}$  en accord avec la largeur de raie expérimentale.

### 4.4.3 Impulsion CPT

L'application d'une impulsion CPT sur la vapeur atomique en régime Dicke doit permettre de valider les développements théoriques effectués dans le chapitre 2. L'observation des différents régimes d'interaction entre la lumière CPT et les atomes devrait démontrer la validité du modèle de la matrice densité décrivant la formation de la résonance au cours du temps (régime limité par le temps de transit des atomes à travers le faisceau laser pendant l'application d'impulsions courtes et le régime stationnaire). Une propriété remarquable est la création d'une superposition d'états même en absence de préparation atomique. Le

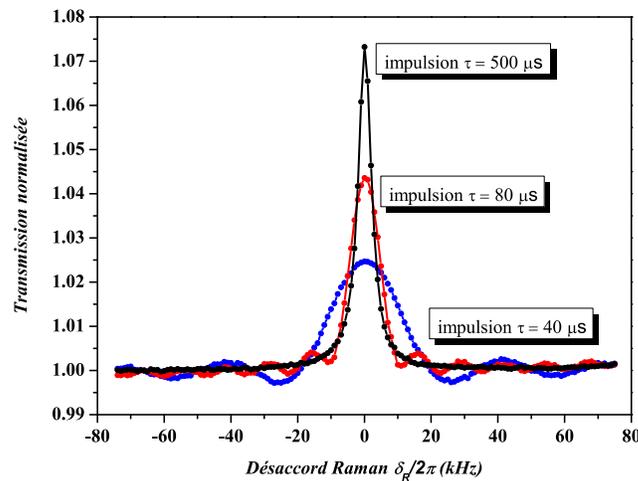


FIG. 4.16 – *Formation de la résonance noire après une impulsion CPT de durée variable.* Les durées sont respectivement  $\tau = 40 \mu\text{s}$ ,  $\tau = 80 \mu\text{s}$  et enfin  $\tau = 500 \mu\text{s}$ . Chaque résonance peut-être étudiée à l'aide du modèle de la matrice densité en régime stationnaire ou en régime dynamique. Les fréquences de Rabi sont de l'ordre de  $\Omega_1 = \Omega_2 = 2\pi \cdot 500 \text{ kHz}$

processus de pompage optique force les atomes dans l'état noir indépendamment de toute condition initiale de préparation des états d'horloge. Expérimentalement, on détecte la transmission des faisceaux après traversée de la cellule. L'application d'une impulsion génère une résonance noire dont les ailes peuvent osciller. Dans ce cas, l'interaction entre les atomes

et le pulse CPT n'est pas assez longue pour avoir atteint un état stationnaire du système. Toutefois, lorsque le pompage complet des atomes dans l'état noir est pratiquement atteint, les oscillations des ailes de la résonances sont rapidement amorties et la matrice densité doit prendre en compte l'existence d'un état stationnaire (modèle de du chapitre 2). En régime d'impulsion longue, le pompage optique sature la transition Raman. Comme on peut le constater expérimentalement, la largeur à mi-hauteur  $\Delta\omega$  est déterminée par l'inverse de la durée de l'impulsion CPT soit  $1/\tau$  pour des temps d'interaction suffisamment courts. Des que  $\tau \gg 1/\Gamma_{eff} \sim 500 \mu s$ , la saturation optique limite la résolution en fréquence que l'on peut atteindre par la méthode de Rabi. Il faut alors diminuer la saturation pour affiner la résonance. C'est ce type de résonance en régime stationnaire qui sert habituellement de discriminateur de fréquence afin de réaliser des horloges CPT de faible dimension (Voir la référence [10]). Les stabilités court-termes réalisées par ces appareils s'étalent entre quelques  $10^{-10}\tau^{-1/2}$  sur 100 secondes pour les horloges miniatures [155, 156] jusqu'à  $3.2 \cdot 10^{-12}\tau^{-1/2}$  pour le maser CPT [157] et  $3.5 \cdot 10^{-11}\tau^{-1/2}$  pour  $1 s < \tau < 2000 s$  par une détection en transmission [130]. La faible saturation optique appliquée dans les horloges (typiquement  $\sim 1 - 10 \mu W/cm^2$ ) permet d'obtenir des largeurs de raie inférieures à 200-400 Hz mais avec un faible rapport signal à bruit et des contrastes n'excédant pas quelques %. Nous allons voir que la création d'une résonance noire en régime stationnaire suivie par un temps de libre évolution T et une détection par une impulsion de très courte durée permet de réaliser l'équivalent de la méthode de Ramsey. La largeur de cette résonance ne dépend plus de la saturation puisque celle-ci passe la plus grande partie de son temps en absence de lumière. Elle se comporte comme la loi de Ramsey en  $1/2T$ .

## 4.5 Impulsions CPT séparées temporellement

Comme le piégeage cohérent de population réalise la superposition d'états au même titre qu'une impulsion de  $\pi/2$  de Rabi, la tentation est naturelle d'appliquer la même méthode que celle utilisée dans la technique de Ramsey avec des impulsions CPT. Cette idée, motivée aussi par le souci d'éliminer le phénomène de saturation de la résonance noire, est en grande partie inspirée par les travaux du groupe du MIT [73, 74] sur une horloge Raman stimulée à jet thermique entre 1980 et 1991. La séquence temporelle que nous avons appliquée est analogue à la séquence de Ramsey. Elle consiste en deux impulsions CPT de même durée  $\tau$  et séparées par un temps de libre évolution T. La mesure de l'amplitude de la transmission optique est réalisée pendant l'application de la seconde impulsion à un instant de lecture appelée  $\tau_m$  qui peut-être arbitrairement choisi entre le début et la fin de celle-ci (voir figure Fig. 4.17).

Dans le régime dit de temps de transit, les durées doivent être plus courtes que le temps de pompage  $\tau_p$ . Cette séquence permet de valider le modèle développé à partir de la fonction d'onde complexe (cf chapitre 3). Ce modèle repose sur la détermination des amplitudes de transition d'une fonction d'onde à 3 niveaux d'énergie. L'hamiltonien d'interaction contient des énergies complexes qui traduisent l'instabilité radiative des niveaux atomiques. Nous appliquons ensuite une seconde séquence avec des temps d'interaction suffisamment longs pour que l'état stationnaire soit atteint à la fin de la première impulsion. Il suffit alors de mesurer pendant la seconde impulsion, à l'instant  $\tau_m$ , l'amplitude transmise pour observer le transfert complet des populations entre l'état  $|\Psi_+\rangle$  et l'état  $|\Psi_{NC}\rangle$ .

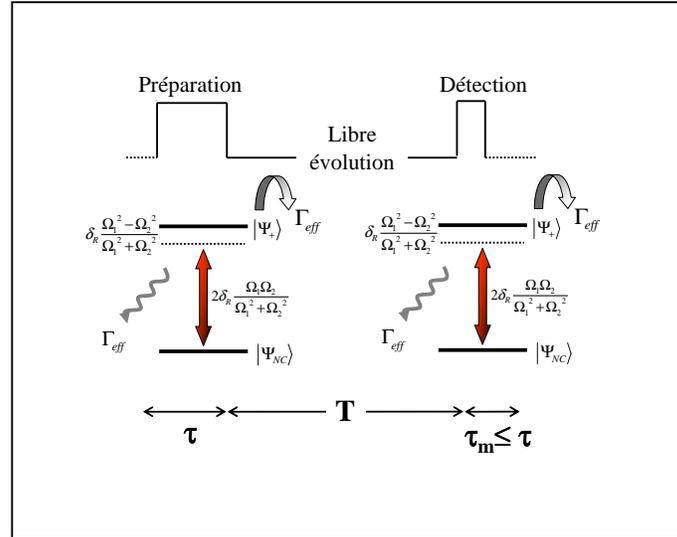


FIG. 4.17 – Séquence d'impulsions CPT pour l'interrogation de la transition d'horloge.

#### 4.5.1 Impulsions courtes devant le temps de pompage $\tau_p$ : observation des franges Raman-Ramsey

On peut maintenant appliquer la séquence temporelle de deux impulsions CPT de durée  $\tau \ll \tau_p$  séparés par le temps de libre évolution  $T$ . La détection de la transmission des faisceaux lasers est réalisée en sortie de la cellule par une photodiode. Les figures Fig. 4.18, Fig. 4.19, et Fig. 4.20 sont les enregistrements effectués pendant l'application de la séquence d'interrogation de la transition d'horloge. Les franges sont obtenues pour des intensités inférieures à  $100 \mu W/cm^2$  pour les figures Fig. 4.18 et Fig. 4.19 et pour des instants de lecture  $\tau_m$  différents. On constate alors que la largeur à mi-hauteur est indépendante de l'instant  $\tau_m$  et suit la largeur à mi-hauteur donnée par la loi de Ramsey  $1/2T$ . La largeur mesurée de 500 Hz correspond parfaitement à une durée d'interrogation de 1 ms. Le profil de l'enveloppe des franges Raman-Ramsey dépend de l'instant de lecture comme le montre les trois figures. La largeur de cette enveloppe est bien déterminée par l'inverse de la durée  $\tau$  de l'interaction entre la vapeur et les faisceaux CPT. On trouve une largeur de l'ordre de 12,5 kHz. La comparaison des figures Fig. 4.19 et Fig. 4.20 permet de mettre en évidence le rôle de la saturation optique sur l'allure de l'enveloppe des franges. La séquence temporelle des deux figures est identique mais l'intensité change de  $100 \mu W/cm^2$  (Fig. 4.19) à  $500 \mu W/cm^2$  (Fig. 4.20). La largeur à mi-hauteur n'est pas affectée par la saturation du milieu atomique et constitue notre second résultat expérimental après le choix des polarisations.

Bien qu'il y ait équipartition des atomes sans cohérence atomique initiale entre les deux états d'horloge, le signal en transmission peut toujours se décrire par l'évolution de la fonction d'onde en moyennant l'ensemble de la fonction d'onde sur tous les déphasages atomiques. On retrouve alors la situation d'un ensemble atomique<sup>2</sup> sans cohérence initiale à  $t=0$ . L'hypothèse du régime dit de temps de transit où l'atome n'a pas atteint l'état stationnaire est donc bien reproduit par la fonction d'onde.

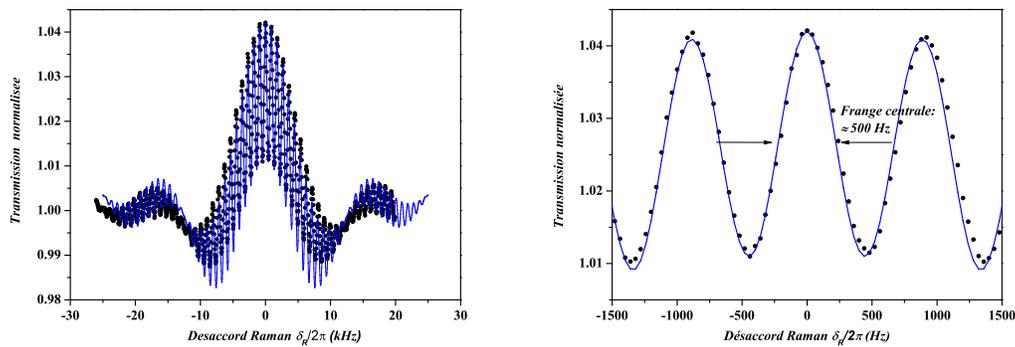


FIG. 4.18 – *Franges Raman-Ramsey à faible saturation.* La durée de la première impulsion est  $\tau = 80 \mu s$  et l'instant de mesure est  $\tau_m = \tau = 80 \mu s$ . Le taux de relaxation de la cohérence Raman est  $\gamma_c = 40 \text{ Hz}$ . L'intensité laser totale est inférieure à  $100 \mu W/cm^2$ . La courbe théorique est obtenue par le modèle de la fonction d'onde.

On remarque sur la figure Fig. 4.18 un mauvais accord sur les ailes entre théorie et résultat expérimentale. Cette différence peut s'expliquer par un contrôle non rigoureux de la quantité de lumière restante pendant  $T$  due à la mauvaise extinction de l'accousto-optique. La valeur de la relaxation  $\gamma_c$  est certainement responsable de cet écart entre la courbe théorique et les points expérimentaux. La figure Fig. 4.18 présente donc l'avantage sur la figure Fig. 4.19 de faire apparaître le rôle joué par la relaxation phénoménologique (lumière, fuites collisions...) qui limite la durée de vie de la cohérence Raman. Enfin le contraste des franges est plus petit que le contraste obtenu en régime stationnaire puisque tous les atomes n'ont pas été pompés dans l'état noir.

Bien que la fonction d'onde soit une approche élégante pour déterminer le profil des franges, la situation du régime stationnaire ne peut en aucun cas être décrite sans les relations de fermeture du système par pompage optique (conservation de la population). Le modèle de la matrice densité devient donc obligatoire et conduit à l'observation des franges de résonance noire combinées à un doublage du contraste et une largeur identique à celle de Ramsey lorsque  $\tau \ll T$ .

<sup>2</sup>On pourrait toutefois imposer la préparation d'un des deux états d'horloge tel que  $c_1(0) = 1$  et  $c_2(0) = 0$ , le résultat serait le même, donc indépendant de la préparation atomique initiale

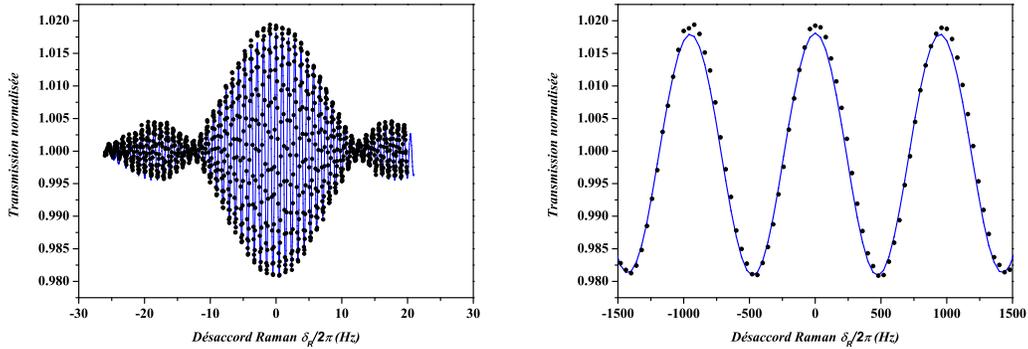


FIG. 4.19 – *Franges Raman-Ramsey à faible saturation.* La durée de la première impulsion est  $\tau = 80 \mu\text{s}$  et l'instant de mesure est maintenant  $\tau_m = 10 \mu\text{s}$ . Le taux de relaxation de la cohérence Raman est  $\gamma_c = 40 \text{ Hz}$ . L'intensité laser totale est toujours inférieure à  $100 \mu\text{W}/\text{cm}^2$ . La courbe théorique est obtenue par le modèle de la fonction d'onde.

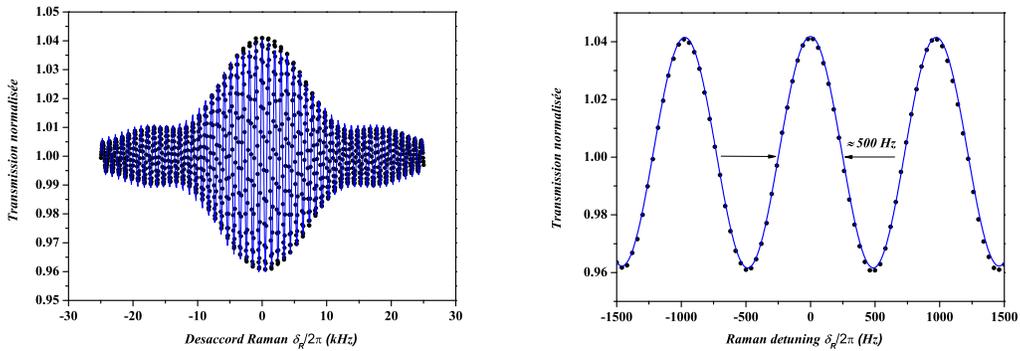


FIG. 4.20 – *Franges Raman-Ramsey à forte saturation.* La durée de la première impulsion est  $\tau = 80 \mu\text{s}$  et l'instant de mesure est encore  $\tau_m = 10 \mu\text{s}$ . Le taux de relaxation de la cohérence Raman est  $\gamma_c = 40 \text{ Hz}$ . L'intensité laser totale est maintenant de l'ordre de  $500 \mu\text{W}/\text{cm}^2$ . La courbe théorique est obtenue à l'aide du modèle de la matrice densité.

#### 4.5.2 Impulsions plus longues que le temps de pompage $\tau_p$ : observation des franges de résonance noire

Nous avons vu au chapitre 2 que le contraste maximal de la résonance noire (ou la transition d'horloge) est atteint lorsque la durée de l'impulsion  $\tau$  est plus grande que le temps caractéristique de pompage  $\tau_p$ . On retrouve alors le profil stationnaire de la résonance noire obtenue par une interrogation continue des atomes avec la lumière CPT. Lorsque la durée de

l'impulsion est assez longue, le pompage optique force les atomes à retomber rapidement sur les deux niveaux d'horloge. Cela entraîne une modification importante de la distribution des atomes sur les états d'horloge tout en changeant l'enveloppe des oscillations sur les ailes de la résonance noire. Le modèle de la matrice densité permet d'introduire naturellement une équirépartition des atomes sur chaque niveau d'horloge sans cohérence atomique initiale. On montre que l'utilisation du modèle de la matrice densité sur un système à 3 niveaux supposé fermé tel que celui développé au chapitre 2 permet de réaliser une comparaison théorique et expérimentale des courbes en régime de temps de transit mais aussi la modélisation des franges en présence du régime stationnaire atteint à la fin de la première impulsion. Le modèle adiabatique de l'atome habillé montre que l'on réalise, même en absence de préparation atomique, une inversion de population entre les états  $|\Psi_{NC}\rangle$  et  $|\Psi_{+}\rangle$ .

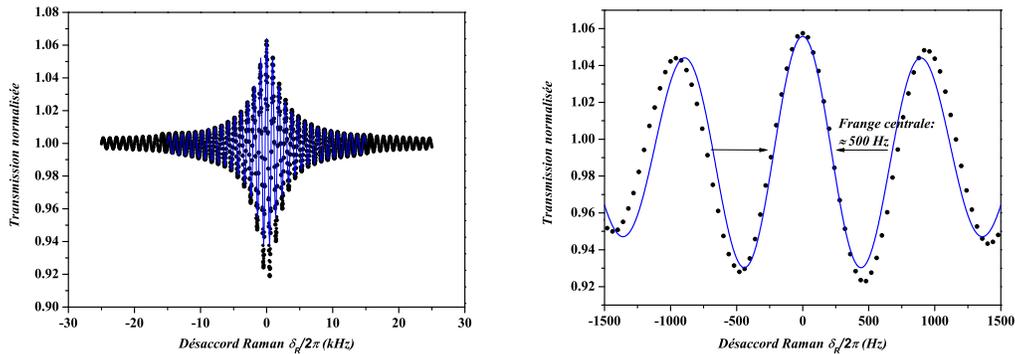


FIG. 4.21 – *Franges de résonance noire.* La durée des deux impulsions est  $\tau = 5$  ms et l'instant de lecture est  $\tau_m = 10$   $\mu$ s.

Comme le pompage est piloté l'intensité appliquée dans la vapeur atomique, la durée de la seconde impulsion doit être la plus courte possible afin de mesurer l'amplitude maximale de transfert de population de  $|\Psi_{+}\rangle$  vers  $|\Psi_{NC}\rangle$ . Si la mesure est effectuée après une seconde impulsion aussi longue que la première, nous aurons rechargé un nouvel état noir. Ce système est en réalité l'équivalent du système à 2 niveaux de Ramsey désormais soumis à une fréquence de Rabi effective elle-même proportionnelle au désaccord Raman  $\delta_r$ . Lorsque  $\delta_r = 0$ , le champ de couplage disparaît annulant l'excitation des atomes vers  $|\Psi_{+}\rangle$ . Les atomes restent donc piégés. L'enveloppe des franges est identique au profil de raie obtenue pour une interrogation continue tout en réalisant l'oscillation de Rabi des atomes à l'intérieur de l'enveloppe. L'enregistrement présenté par la figure Fig. 4.21 est effectué pour des durées impulsionnelles  $\tau = 5$  ms. L'instant de lecture  $\tau_m$  est appliquée 10  $\mu$ s après le début de la seconde impulsion. On constate que l'on observe un quasi doublage du contraste par rapport à une détection continue de la résonance noire. On constate aussi une légère asymétrie de la frange centrale. Cette asymétrie reste aujourd'hui inexpliquée. Une éventuelle présence de résonances du type  $|\pm 1, \mp 1\rangle$  (voir paragraphe 4.3.4) déplacées de manière asymétrique autour de la frange d'horloge pourrait conduire à l'équivalent d'un Rabi Pulling. Ces transitions parasites ne seront manifestement résolues qu'en présence d'un champ magnétique plus élevé.

## 4.6 Caractérisation de la séquence d'interrogation

Afin de déterminer les caractéristiques principales de la séquence d'impulsions CPT, nous avons réalisé la mesure du contraste de la frange centrale en fonction de la durée de l'impulsion de préparation  $\tau$ , de l'instant de mesure durant la seconde impulsion notée  $\tau_m$  et du temps de libre d'évolution  $T$  de la cohérence Raman. L'étude du contraste en fonction de ces paramètres démontrent clairement que la séquence n'a rien de similaire avec celle de Ramsey.

### 4.6.1 Contraste en fonction de la durée $\tau$ de la première impulsion

Lors d'une séquence de Ramsey, la durée de chaque impulsion est choisie pour rendre maximale le transfert de population à la fin de la séquence. Dans notre cas, cette inversion est maximale dans la base habillée des atomes et est atteint à la fin du régime stationnaire.

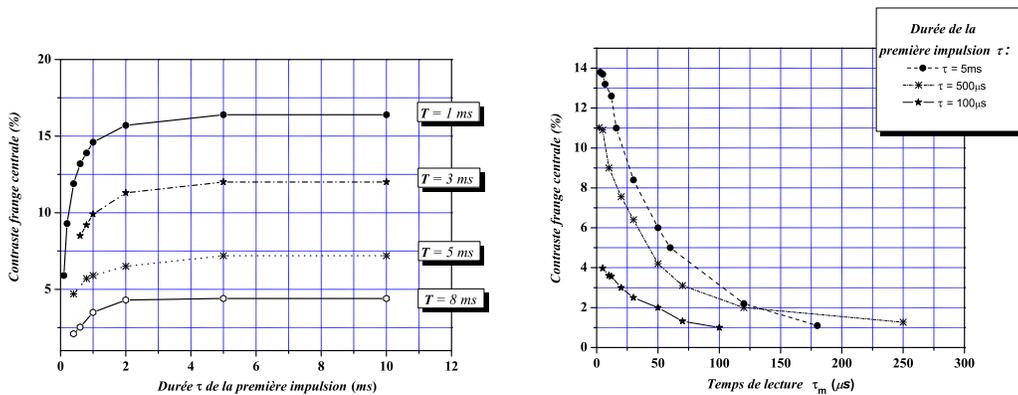


FIG. 4.22 – (a) Evolution du contraste de la frange centrale en fonction de la durée de la première impulsion  $\tau$  avec  $\tau_m = 10 \mu$ s. (b) Evolution du contraste de la frange centrale en fonction de la durée de la seconde impulsion de detection  $\tau_m$  pour  $\tau = 5$  ms.

C'est un processus de pompage optique qui assure la formation de l'état noir. Il suffit donc d'attendre un temps plus long que  $\tau_p$ , comme on avait déjà pu le constater pour une impulsion, afin d'obtenir le contraste maximal (voir Fig. 4.22). Nous avons enregistré le profil expérimental des franges pour chaque durée de la première impulsion (Fig. 4.23). Le contraste passe successivement de 4% à 14% pour des durées de préparation de  $\tau = 40 \mu$ s à  $\tau = 5$  ms.

### 4.6.2 Contraste en fonction de l'instant de lecture $\tau_m$

Nous étudions ensuite l'effet de l'instant de lecture  $\tau_m$  pendant la seconde impulsion. La figure Fig. 4.22 montre clairement que le contraste chute dès que cet instant de mesure  $\tau_m$  dépasse quelques micro-secondes. Toutefois, notre expérience, limitée par le temps de la carte d'acquisition Agilent et le temps caractéristique de coupure du modulateur accousto-optique

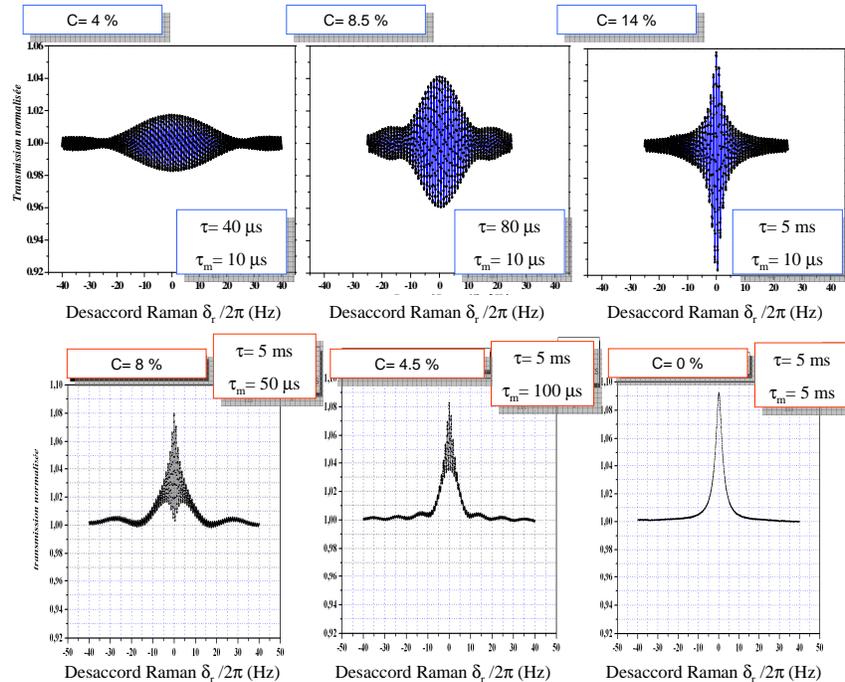


FIG. 4.23 – *Evolution temporelle expérimentale des franges de résonance noire pour différentes impulsions de préparation et de détection. Le contraste est défini par le rapport entre l'amplitude du signal sur le fond.*

(MAO), n'a pu permettre de déterminer le temps nécessaire au contraste optimal que nous savons être théoriquement de quelques de nano-secondes. La séquence d'interrogation des résonances noires en régime impulsif est donc constituée habituellement par une durée  $\tau \gg \tau_p$  de l'impulsion de préparation, suivie par un temps de libre évolution  $T$  et d'un très court instant de lecture  $\tau_m$  pour la détection de l'amplitude du signal. La séquence est donc totalement différente de la séquence de Ramsey où la mesure s'effectue dans le noir toujours après la fin de la seconde impulsion. Nous donnons l'évolution expérimentale des profils de franges détectés en fonction du l'instant de mesure (voir Fig. 4.23). Le doublage du contraste est parfaitement mis en évidence entre les enregistrements du signal transmis sur la seconde impulsion à  $\tau_m = 5$  ms et à  $\tau_m = 10 \mu s$ .

### 4.6.3 Contraste en fonction du temps d'évolution $T$

Le point important est le rôle perturbateur joué par la présence du gaz tampon avec la vapeur atomique. Le contraste des franges est tracé en fonction de ce temps  $T$  (figure Fig. 4.24). Il y a bien une décroissance exponentielle de ce contraste qui limite donc la résolution en fréquence que l'on peut atteindre.

On constate que la méthode des impulsions CPT séparées temporellement permet de

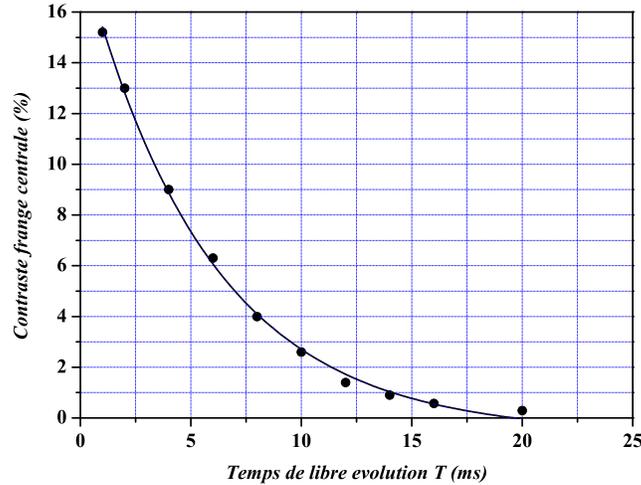


FIG. 4.24 – *Contraste de la frange centrale en fonction du temps T. La valeur du taux de relaxation de la cohérence estimée par une variation exponentielle du contraste est de l'ordre de  $\gamma_c/2\pi = 27$  Hz.*

mesurer précisément le taux de relaxation  $\gamma_c$  de la cohérence hyperfine (ou cohérence Raman). Cette technique est plus efficace que l'extrapolation à puissance nulle de la largeur à mi-hauteur de la résonance noire (voir Fig. 4.10). La figure Fig. 4.24 montre bien la variation exponentielle du contraste des franges lorsque le temps T devient de plus en plus grand. Cette réduction limite donc la résolution en fréquence que l'on peut appliquer pour mesurer avec précision la position de la transition d'horloge. La possibilité de réaliser une horloge atomique de bonne stabilité court terme avec des impulsions CPT est donc principalement limitée par les collisions avec le gaz tampon. Il y a donc un compromis entre la largeur ultime que l'on peut obtenir avec cette méthode et la perte de contraste obtenu pour un temps T d'interrogation de plus en plus long. Le produit  $C \cdot T$  caractérise ce compromis, c'est à dire la pente d'asservissement qui permet de corriger efficacement les dérives en fréquence de l'oscillateur local.

## 4.7 La méthode expérimentale du train d'impulsions CPT

La séquence d'impulsions CPT permet de réaliser à la fois la préparation et de détection du signal d'horloge à travers les impulsions CPT. La superposition d'états n'est donc jamais détruite lors de la mesure comme le serait celle réalisée sur un système à 2 niveaux métastable. Cependant, nous avons remarqué que si la mesure est effectuée trop tard sur la seconde impulsion, les franges disparaissent et une nouvelle cohérence hyperfine est créée. Afin de réaliser une horloge atomique à impulsions CPT, nous avons choisi de développer une

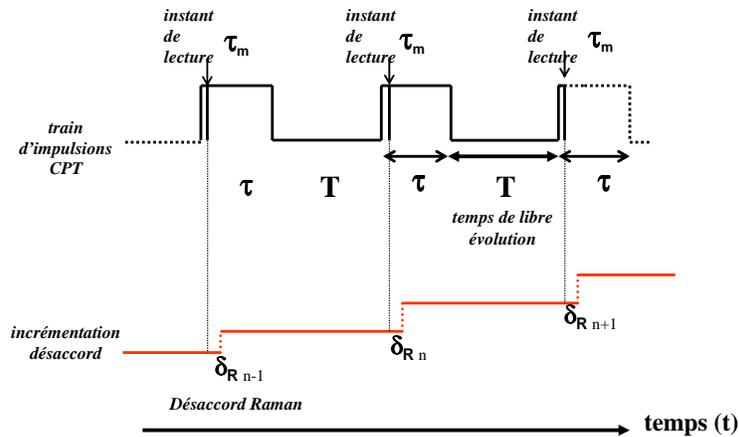


FIG. 4.25 – *Train d'impulsions CPT avec balayage linéaire du désaccord Raman  $\delta_r$ . Chaque fin d'impulsion précédente prépare une nouvelle cohérence pour la détection sur le début de l'impulsion suivante.*

méthode originale qui exploite complètement le phénomène de préparation et de recréation de l'état noir : la méthode du train d'impulsions CPT.

Cette méthode originale a entre autre fait l'objet d'un [dépôt de brevet \(n°05744396.2-FR2005000754\)](#) auprès de l'office européen des brevets. Le train d'impulsions de la figure Fig. 4.25 permet de réaliser la construction du signal de franges très rapidement en utilisant la fin de l'impulsion précédente pour créer une nouvelle cohérence mesurée sur le tout début de l'impulsion suivante. Le changement de fréquence Raman  $\delta_r$  doit se faire sur chaque impulsion juste après la lecture du signal transmis. Le transitoire qui suit ce brusque changement de désaccord (voir figure Fig. 4.14 du paragraphe 4.4.1) peut-être rapidement amorti par l'application d'une intensité laser suffisamment forte. D'autre part, l'utilisation de fortes intensités permet d'établir plus rapidement chaque cohérence et donc de réduire encore la durée de l'impulsion de référence. Le fonctionnement en mode horloge doit optimiser la pente proportionnel au rapport entre le contraste de la résonance notée  $C$  et la largeur à mi-hauteur du signal  $1/2T$  pour des corrections efficaces des fluctuations de la fréquence utilisée comme référence atomique :

$$C/\Delta\nu = e^{-\gamma_c T} * 2T \quad (4.29)$$

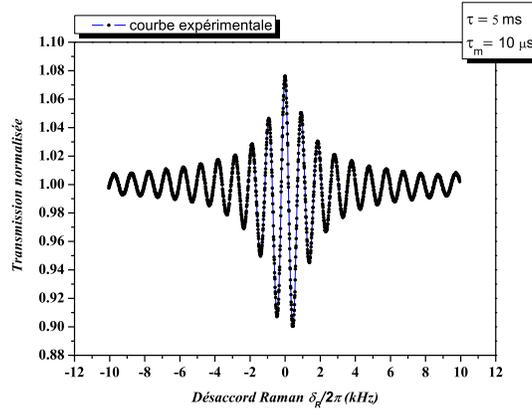


FIG. 4.26 – *Franges expérimentales obtenues avec le train d'impulsions CPT. Les impulsions durent chacune  $\tau = 5$  ms. L'instant de  $\tau_m$  est appliquée toutes les  $10 \mu\text{s}$  après le début de chaque impulsion. Pas de moyennage.*

On calcule à l'aide de la dérivée la valeur pour laquelle la pente est la plus importante soit :

$$\frac{d}{dt}(C/\Delta\nu) = -\gamma_c e^{-\gamma_c T} * 2T + 2 * e^{-\gamma_c T} = 0 \quad (4.30)$$

$$2e^{-\gamma_c T} (-\gamma_c T + 1) = 0$$

La pente est maximale pour  $T = 1/\gamma_c$ , environ 6 ms (27 Hz) pour une pression de remplissage de gaz tampon mesurée de l'ordre de 23 Torr. La figure Fig. 4.31 représente les franges Raman-Ramsey obtenues par balayage rapide du désaccord Raman. La reconstruction du signal en fonction du désaccord  $\delta_r$  prend moins de 1 ms. On remarque que le profil des franges est identique à celui de la figure Fig. 4.21 lorsque la séquence d'interrogation est appliquée de manière habituelle à l'aide de paires d'impulsions CPT séparées par un temps de l'ordre de 100 ms (nécessaire pour éliminer toute cohérence résiduelle entre chaque séquence d'interrogation). Une étude plus poussée du train d'impulsions CPT devrait à terme permettre la réalisation d'une horloge à la cadence de cycle très élevée par rapport aux horloges à atomes froids dont les temps morts nécessaires à la préparation et aux refroidissements atomiques sont incontournables.

## 4.8 Discussion des résultats expérimentaux

L'utilisation d'une cellule de vapeur contenant un gaz tampon et le Cs a permis de réaliser des temps d'interrogation allant jusqu'à 10-20 ms. le contraste de la frange centrale diminue bien de manière exponentielle avec la durée d'interrogation  $T$  (Fig. 4.24) et limite donc la résolution en fréquence que l'on peut atteindre. Toutefois, la méthode impulsionnelle est, d'un point de vue spectroscopique, plus efficace que l'interaction continue. Le taux de relaxation  $\gamma_c$  de la cohérence peut être mesuré avec précision dans le noir. Le contraste du signal est toujours plus élevé en régime impulsionnel tant que la durée de l'interrogation

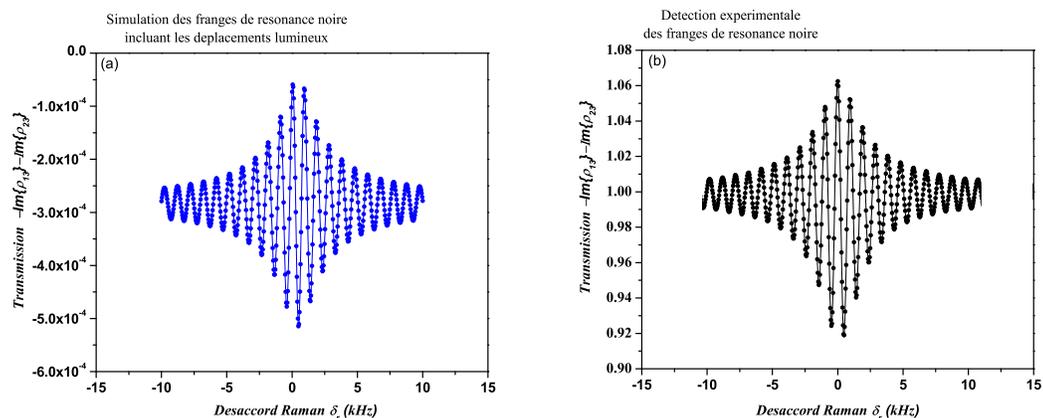


FIG. 4.27 – (a) *Simulation des franges de résonance noire avec présence de déplacements lumineux  $\eta_1$  et  $\eta_2$  affectant les transitions optiques.* (b) *Détection expérimentale des franges en régime quasi-stationnaire.*

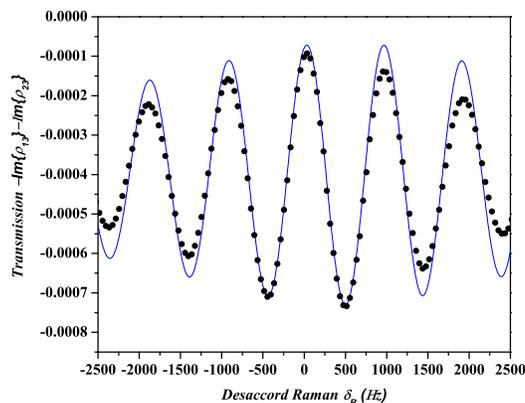


FIG. 4.28 – *Comparaison entre les franges expérimentales et le signal théorique. On remarque par rapport à la figure Fig. 4.21 que le déphasage progressif des ailes est pratiquement éliminé.*

n'excede pas l'inverse du taux de relaxation  $\gamma_c^{-1}$ . Dans notre cas, une interrogation de 5 à 6 ms pour une pression de 23 Torr de gaz rare semble réaliste. Soulignons que la largeur devient indépendante des effets de saturation optique et ne devrait plus limiter le facteur de qualité de la résonance et le contraste du signal. En revanche, la forte asymétrie des signaux suggère la présence d'importants déplacements lumineux. Une recherche approfondie des effets systématiques devrait permettre d'évaluer avec exactitude la correction en fréquence

apportée par ces couplages non résonnants (difficile à réaliser sans une stabilisation de la température de la cellule au moins au niveau du mK). Une estimation rapide de l'influence du niveau voisin séparé de 1.168 GHz (raie D1) et des pulsations de Rabi appliquées de l'ordre de 100  $kHz$  conduisent immédiatement à des corrections de fréquence de plusieurs dizaines de Hz. En introduisant l'influence des couplages non résonnants dans la définition des désaccords optiques tel que  $\Delta_1 = \Delta_0 + \eta_1$  et  $\Delta_2 = \Delta_0 + \eta_2 + \delta_r$ , nous avons tenté d'évaluer simplement ces effets en modélisant les franges de résonance noire en fonction du désaccord Raman  $\delta_r$  sur les figures Fig. 4.27(a) et (b). Le résultat préliminaire est reporté sur la figure Fig. 4.28 et montre que la légère asymétrie semblerait bien provenir de la présence de déplacements lumineux.





# Conclusions et perspectives : *Vers un nouveau type d'horloge EIT en régime impulsionnel*

*‘ Je n'ai pas échoué, j'ai trouvé dix mille moyens qui ne fonctionnent pas. ’*

Thomas Alva Edison ou Albert Einstein.

La méthode d'interrogation d'une transition atomique de longue durée de vie reposant sur deux impulsions CPT a permis de réunir la méthode d'interrogation de Ramsey avec une préparation de superpositions d'états quantiques réalisées par un processus d'interférences quantiques entre couplages lasers. Bien que les superpositions d'états réalisées à la fin de l'interaction soient équivalentes à celles obtenues après une impulsion égale à  $\pi/2$ , la distribution des populations sur chaque état atomique obéit à un mécanisme de pompage optique couplant excitation cohérente et processus de relaxation par émission spontanée. On a démontré que le contraste de la résonance peut être découplé de sa largeur en fréquence devenant ainsi indépendante de la saturation optique vue par le milieu atomique. La méthode, développée sur une vapeur thermique de Césium en régime Lamb-Dicke, combine le profil de résonance obtenu pendant une interaction impulsionnelle des atomes avec la lumière CPT et les oscillations entre l'état noir  $|\Psi_{NC}\rangle$  et l'état couplé  $|\Psi_+\rangle$  qui définissent les états propres de l'hamiltonien d'interaction entre les atomes et la lumière laser. Nous avons montré que l'application d'une forte intensité laser conduit à une réduction du temps nécessaire à la préparation atomique de la superposition d'états et à une fréquence de cycle d'interrogation de l'horloge plus rapide. De plus, si l'on introduit les déplacements lumineux provenant des couplages lasers non résonnants avec la configuration à 3 niveaux, il faut alors tenir compte du déplacement de fréquence que subit la transition d'horloge. La durée caractéristique  $\tau_p$  du pompage dans l'état noir dépend de la saturation optique du milieu atomique. Ce temps de pompage optique a pour expression générale lorsque les pulsations de Rabi sont faibles devant le taux de relaxation de la population excitée et des cohérences

optiques  $\Omega_1, \Omega_2 \lesssim \Gamma_{31}, \Gamma_{32}, \gamma_{c1}, \gamma_{c2}$  :

$$\tau_p^{-1} \sim \left( \frac{\Omega_1^2 \gamma_{c1}}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} + \frac{\Omega_2^2 \gamma_{c2}}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} \right) \left[ 1 + \tilde{\Upsilon} \frac{\frac{\Omega_2^2 \gamma_{c2}}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} - \frac{\Omega_1^2 \gamma_{c1}}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2}}{\frac{\Omega_1^2 \gamma_{c1}}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} + \frac{\Omega_2^2 \gamma_{c2}}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2}} \right]$$

avec la différence normalisée des rapports de branchement par émission spontanée :

$$\tilde{\Upsilon} = \frac{\frac{3\Omega_1^2 \gamma_{c1}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)} - \frac{3\Omega_2^2 \gamma_{c2}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)} + \frac{\Gamma_{31} - \Gamma_{32}}{\Gamma_{31} + \Gamma_{32}}}{\frac{3\Omega_2^2 \gamma_{c2}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)} + \frac{3\Omega_1^2 \gamma_{c1}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)} + 1}$$

Il est donc important de souligner que l'on peut se placer dans 2 régimes de fonctionnement de la séquence temporelle d'interrogation définie par la durée des impulsions laser telle que  $\tau \ll \tau_p$  ou  $\tau \gg \tau_p$  :

- Si la durée de l'impulsion de préparation est plus courte que le temps de pompage optique  $\tau \ll \tau_p$ , le saut statistique par émission spontanée dans l'état noir peut-être décrit comme une fuite vers un niveau piège à l'aide du formalisme de la fonction d'onde. Il suffit de remplacer les énergies par des quantités complexes. Cette description en terme de fonction d'onde atomique complexe permet de déterminer les déphasages optiques liés aux déplacements lumineux des niveaux d'énergies.

- Si la durée des impulsions est plus longue que ce temps de pompage optique  $\tau \gg \tau_p$ , la première impulsion ou impulsion de préparation porte l'intégralité des atomes dans l'état noir (état stationnaire). On mesure alors l'équipartition des atomes entre les deux états d'horloge en fonction du désaccord Raman.

Une étude plus détaillée du régime stationnaire a permis de montrer que la prise en compte d'une relaxation de la cohérence Raman entraine un recouplage de l'état noir avec l'interaction laser et l'apparition en *régime stationnaire d'un déplacement de la fréquence d'horloge* associé au désaccord des fréquences lasers par rapport au niveau relais :

$$\delta\nu_{33} \approx \frac{\gamma_c(\gamma_c + 2(\gamma_{c1} + \gamma_{c2})S^*)}{\Gamma_{eff}^2 + \gamma_c(\gamma_c + 2(\gamma_{c1} + \gamma_{c2})S^*)} \Delta_f$$

où  $\Gamma_{eff}$  est la largeur effective de la résonance noire et  $S^*$  la saturation optique du milieu atomique (voir chapitre 2). Ce déplacement est directement proportionnel au déplacement de fréquence  $\Delta_f$  qui affecte la condition de résonance  $\Delta_1 - \Delta_2$  et au taux de relaxation  $\gamma_c$  de la cohérence Raman. Le modèle de la fonction d'onde complexe a permis de déterminer les expressions des déphasages accumulés par la fonction d'onde à 3 niveaux au cours de l'interaction avec les lasers. Ce modèle qui introduit une quantité complexe sur les positions en énergie des niveaux atomiques permet de calculer les déplacements de fréquence associés à ces déphasages. Enfin une comparaison avec le formalisme de la matrice densité valide l'approche par la fonction d'onde complexe pour des temps d'interaction très courts devant le temps de pompage optique dans l'état noir. On a pu établir exactement l'expression du *déphasage associé au déplacement de fréquence en régime transitoire de la frange Raman-Ramsey* ( $\tau, \tau_m \ll \tau_p$ ) ou de la *frange de résonance noire* ( $\tau \gtrsim \tau_p$  et  $\tau_m \ll \tau_p$ ) détectée par

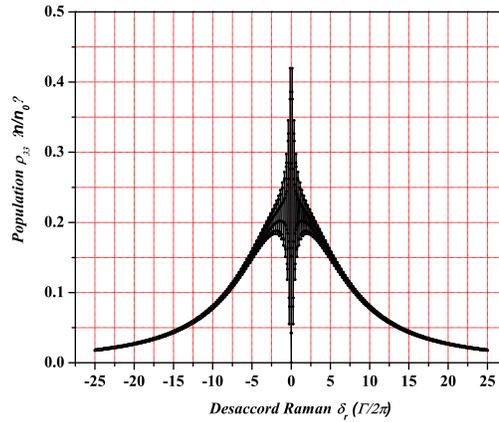


FIG. 4.29 – *Simulation de la résonance noire en régime de forte saturation à partir de la formule exacte  $\rho_{33}(\tau, T)$ .*

fluorescence ou absorption :

$$\delta\nu_{33} = \frac{\Phi_{33}(\tau, \tau_m)}{2\pi T(1 + \frac{\tau + \tau_m}{2T})} = \frac{\arctan \left[ \frac{\frac{\gamma_{c1}}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} + \frac{\gamma_{c2}}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} \operatorname{Im}\{\rho_{12}(\tau, \tau_m)\} - \frac{\Delta_1}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} - \frac{\Delta_2}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} \operatorname{Re}\{\rho_{12}(\tau, \tau_m)\}}{\frac{\gamma_{c1}}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} + \frac{\gamma_{c2}}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} \operatorname{Re}\{\rho_{12}(\tau, \tau_m)\} + \frac{\Delta_1}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} - \frac{\Delta_2}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} \operatorname{Im}\{\rho_{12}(\tau, \tau_m)\}} \right]}{2\pi T(1 + \frac{\tau + \tau_m}{2T})}$$

avec  $\Delta_1$  et  $\Delta_2$  les désaccords entre les fréquences optiques de chaque laser et le niveau excité. L'information sur le retard ou de l'avance de phase de la frange centrale est déterminée à partir des expressions des parties réelle et imaginaire de la cohérence Raman  $\rho_{12}(\tau, \tau_m)$ . L'expérience de démonstration des impulsions CPT séparées temporellement a été réalisée sur une vapeur thermique de Cs piégé à l'aide d'un gas tampon. Le régime de confinement Lamb-Dicke permet de s'affranchir des effets Doppler du premier ordre et de l'effet de recul sans faire appel à la technique des atomes refroidis par champ laser. La réalisation du couplage Lin $\perp$ Lin en configuration double lambda a permis de modifier la distribution des atomes entre les sous niveaux Zeeman du Cs et de réduire fortement le piégeage de population sur les sous niveaux extrêmes. Le spectre d'absorption est alors symétrique avec un contraste maximale sur la transition d'horloge. Ce travail se termine par la publication d'un article ([Physical Review Letters Vol 93, 193002, \(2005\)](#)) sur la première observation des franges de résonance noire combinant régime stationnaire et impulsion temporelle sur une vapeur thermique de Cs. L'expression exacte de la frange de résonance noire pour  $\tau \gtrsim \tau_p$  et  $\tau_m \mapsto 0$  s'écrit :

$$\rho_{33}(\tau, T) = \left( \frac{\frac{\Omega_2^2 \gamma_{c2} (\Delta n(\tau) + 1)}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)} - \frac{\Omega_1^2 \gamma_{c1} (\Delta n(\tau) - 1)}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)}}{1 + \frac{3\Omega_1^2 \gamma_{c1}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)} + \frac{3\Omega_2^2 \gamma_{c2}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)}} \right) \times \left( 1 - \frac{|\rho_{12}(\tau)| \sqrt{(\mu_{\gamma}^{33})^2 + (\mu_{\Delta}^{33})^2}}{\frac{\Omega_2^2 \gamma_{c2} (\Delta n(\tau) + 1)}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)} - \frac{\Omega_1^2 \gamma_{c1} (\Delta n(\tau) - 1)}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)}} e^{-\gamma_c T} \cos[\delta_r T - \Phi_{33}(\tau)] \right)$$

$$\text{avec } \mu_\gamma^{33} = \frac{2\Omega_1\Omega_2}{\Gamma_{31}+\Gamma_{32}} \left( \frac{\gamma_{c1}}{\Delta_1^2+\gamma_{c1}^2} + \frac{\gamma_{c2}}{\Delta_2^2+\gamma_{c2}^2} \right) \quad \mu_\Delta^{33} = \frac{2\Omega_1\Omega_2}{\Gamma_{31}+\Gamma_{32}} \left( \frac{\Delta_1}{\Delta_1^2+\gamma_{c1}^2} - \frac{\Delta_2}{\Delta_2^2+\gamma_{c2}^2} \right).$$

Différentes séquences d'impulsions conduisent expérimentalement à des profils de résonance aussi étroits que 60 Hz sur la fréquence de référence du Cs à 10 GHz. Enfin rappelons que les franges Raman-Ramsey peuvent être simplement décrites par le formalisme de la fonction d'onde complexe (IEEE, Vol 54, n°2, 776, (2005)) lorsque la durée de chaque impulsion est petite devant le temps de pompage optique  $\tau_p$ .

Les étalons de fréquences appliquent à l'heure actuelle une interaction continue du phénomène CPT sur des atomes thermiques [66, 10]. Ces horloges miniatures [156, 158] utilisent la résonance noire comme discriminateur de fréquence pour contrôler les dérives d'un oscillateur à quartz réalisant des stabilités relatives de fréquence de quelques  $10^{-11}\tau^{-1/2}$  à  $10^{-12}\tau^{-1/2}$ . L'application de la méthode impulsienne exposée dans ce mémoire devrait, en principe, permettre de gagner au moins un ordre de grandeur sur les performances actuelles de ces appareils et atteindre ainsi quelques  $10^{-13}\tau^{-1/2}$  sur plusieurs milliers de secondes. La possibilité de remplacer le gaz tampon par un milieu moins sensible aux fluctuations de température devrait permettre d'intégrer plus longtemps la mesure de la fréquence et d'en augmenter la résolution. L'utilisation des atomes froids ou l'application d'un revêtement anti-relaxant (wall coating) pourrait conduire avec des résonances de facteur de qualité plus élevé et à de meilleures stabilités sur le court-terme.

• **Un étalon de fréquence optique à transparence induite électromagnétiquement (EIT).** Les étalons de fréquence actuels les plus stables et les plus exactes sont les fontaines atomiques de Césium, dont la fréquence d'horloge est la transition hyperfine à 9.2 GHz. Le SYRTE possède depuis quelques années un ensemble de 2 fontaines (FO1-Césium et FO2-Rubidium/Césium) ainsi qu'un dispositif mobile (FOM) permettant la comparaison et à l'évaluation directe des horloges du laboratoire ainsi que des tests de physique fondamentale de très haute qualité. Les derniers progrès effectués sur ces dispositifs laissent entrevoir que la limite expérimentale de l'exactitude relative atteinte serait de  $10^{-16}$  avec une stabilité actuelle de  $10^{-14}$  sur la seconde. La limitation de cette exactitude provient essentiellement de la gravité terrestre : les atomes refroidis par laser tombent sous l'effet de la gravité. Dans un appareil de taille raisonnable, le temps d'observation des atomes est limité à 1 seconde et la largeur de raie correspondante à 1 Hz. Une solution consiste, pour les horloges terrestres à utiliser une transition atomique située non pas dans le domaine micro-onde mais dans le domaine optique. Pour une durée d'observation de 1 s limitée par la gravité, on gagne plusieurs ordres de grandeur sur le produit (fréquence de transition x durée d'observation) qui est le paramètre déterminant les performances ultimes d'une horloge. Ces transitions peuvent être faiblement permises ou interdites comme pour le Strontium Sr, le Mercure Hg, le Calcium Ca ou l'Ytterbium Yb. Cette solution a été renforcée par la proposition en 2001 de H. Katori de réaliser un piège dipolaire capable de conserver les atomes pendant des temps assez longs (jusqu'à plusieurs secondes) sans perturber la transition d'horloge [159]. On peut alors combiner les avantages des horloges à ion unique présentant les meilleures stabilités actuelles ( $5 \cdot 10^{-15}$  sur la seconde pour l'horloge à mercure du NIST  $^{199}\text{Hg}^+$ ) avec l'utilisation d'un grand nombre d'atomes neutres ( $10^7$  à  $10^8$ ) sans perturbation significative de leur structure interne. Depuis 2000, Le LNE-SYRTE s'est engagé dans la réalisation d'une horloge optique à atomes neutres de Strontium (Sr) et depuis récemment dans le développement d'une seconde horloge à atomes de Mercure (Hg) afin d'effectuer des comparaisons métrologiques. Ces deux projets ambitieux utilisent la pointe des technologies optoelectroniques disponibles actuellement (diodes laser, optiques de filtrage), nécessitent le développement de nouvelles sources

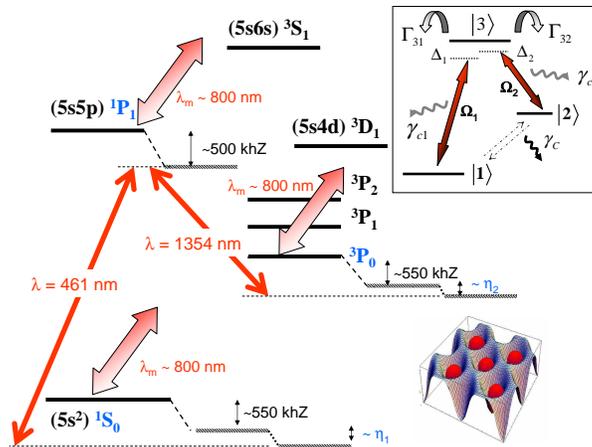


FIG. 4.30 – Configuration d'excitation EIT des atomes de  $^{88}\text{Sr}$  piégés dans un réseau optique par un laser à la longueur d'onde "magique"  $\lambda \sim 800 \text{ nm}$ .

lasers ultra-stables de très haute résolution spectrale afin de sonder les transitions d'horloges et la réalisation de lasers femto-seconde capables de transférer l'excellente performances des fontaines micro-onde au domaine optique. Le type d'interrogation appliquée sur ces transitions est un des nombreux objectifs étudiés par les laboratoires de recherche car elle doit perturber au minimum la fréquence d'horloge. On peut, dans le cas des pièges dipolaires, appliquer la méthode de Rabi ou de Ramsey à l'aide d'impulsions lasers ouvrant la voie à des facteurs de qualité atomiques uniquement limités par la largeur spectrale relative des lasers excitateurs. Les stabilités estimées seraient inférieures à quelques  $10^{-16}\tau^{-1/2}$  et l'exactitude projetée devrait atteindre quelques  $10^{-18}$ . Une nouvelle horloge pourrait être construite sur un principe similaire à l'aide d'un nuage d'atomes de Srontium 88 piégé dans un réseau optique. La transition interdite du boson  $^{88}\text{Sr}$  serait alors proposée comme référence atomique pour la réalisation d'un étalon de fréquence optique ultra stable. La méthode d'interrogation reposerait sur le phénomène de transparence induite électromagnétiquement (EIT) et du piégeage cohérent de population (CPT) en appliquant une approche impulsionnelle sur les transitions interdites possédant un rapport de branchement par émission spontanée très asymétrique ([Physical Review Letters, Vol 97, 233001 \(2006\)](#)).

• **Manipulation d'états EIT/CPT et réalisation d'une horloge solide à l'aide d'ions piégés dans une matrice cristalline.** Bien que le piégeage d'atomes dans un réseau optique non perturbateur présente de nombreux avantages métrologiques pour la réalisation d'oscillateurs optiques ultra-stables (grand nombre d'atomes et temps de piégeage de plusieurs secondes), une autre alternative repose sur les ions de terre rare piégés dans une matrice cristalline. Le milieu solide rend les ions quasiment immobiles dont le comportement devient similaire aux atomes refroidis par champ laser. En physique du solide, l'observation de résonances noires, le ralentissement de la lumière et le stockage de l'information sur des structures solides à partir de la manipulation des états atomiques internes est aujourd'hui fortement étudiée [161, 160]. Par exemple, un temps caractéristique de relaxation de 30 s de la cohérence hyperfine réalisée sur un cristal dopé au praséodyme  $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$  a été observé [162]. Les premières expériences de spectroscopie haute résolution et de ma-

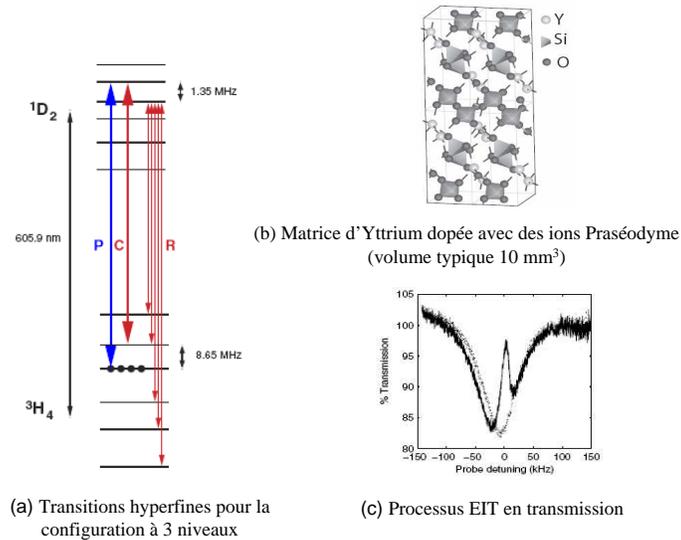


FIG. 4.31 – *Configuration à 3 niveaux pour le stockage de la lumière dans une matrice cristalline dopée par des ions de terre rare [160]. Effet EIT détecté en transmission dans un cristal  $Pr^{3+} : Y_2SiO_5$ .*

nipulation cohérente de la lumière réalisées sur des cristaux dopés par des ions ont été faites par P. Hemmer et S. Shahriar [163]. Les processus de ralentissement de la lumière à quelques dizaines de mètres par seconde [164], de mélange à 4 ondes [165] ou encore de stockage de l'impulsion lumineuse ouvrent à la voie au traitement de l'information quantique à travers le codage de qubits à plusieurs états. Avec la spectroscopie haute résolution par creusement de trou spectral (spectral hole burning), les premières raies optiquement fines de largeur homogène de quelques centaines de Hz à basse température ont été observées [166]. Les ions de terre rare piégés en matrice cristalline ont ainsi ouvert la voie aux standards secondaires de fréquence stabilisés par creusement de trou spectral [167]. Bien que les taux de relaxation rencontrés soient généralement importants [168] et nécessitent le refroidissement du cristal par un cryostat à quelques Kelvin, on pourrait, par exemple, imaginer un oscillateur ultra stable fonctionnant sur le principe du trou spectral et asservi en fréquence par des impulsions lasers CPT séparées temporellement.

*'S'il y a une meilleure façon de le faire... trouvez-la!'*

Thomas Alva Edison.

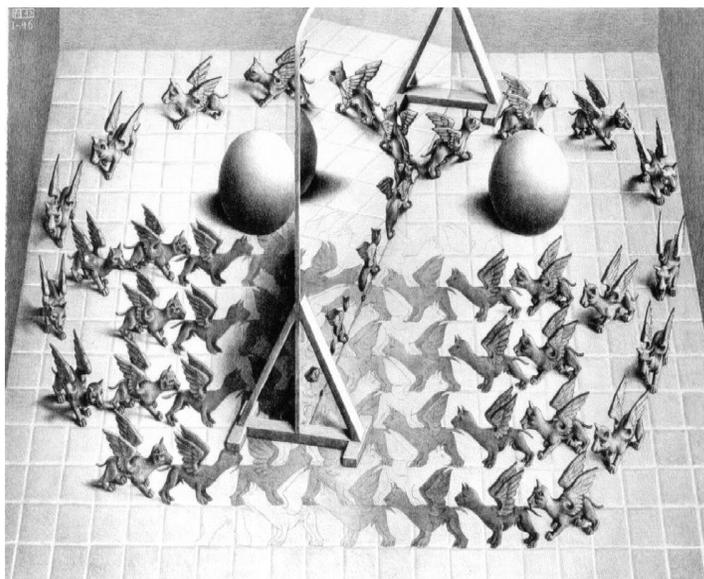


FIG. 4.32 – *Escher période hollandaise 1946 : Magic mirror.*



## Annexe A

# Fonction d'onde complexe à 2 niveaux d'énergie

Cette annexe introduit l'équation de Schrödinger et l'hamiltonien d'interaction semi-classique entre un atome et un champ laser. On explicite comment déterminer un hamiltonien d'interaction indépendant du temps à l'aide de la représentation des ondes tournantes (ou Rotating Wave Approximation RWA en anglais).

### A.1 Equations d'évolution : impulsion de Rabi

#### A.1.1 Evolution temporelle dans un référentiel tournant.

On définit un système à 2 niveaux d'énergie  $|1\rangle$  et  $|2\rangle$ . L'hamiltonien  $\widetilde{H}_0$  définit habituellement la position en énergie notée  $\omega_1$  et  $\omega_2$  de chaque état atomique dans la base  $\{|1\rangle, |2\rangle\}$  par la matrice d'interaction :

$$\widetilde{H}_0 = \hbar \begin{pmatrix} \omega_1 & 0 \\ 0 & \omega_2 \end{pmatrix} \quad (\text{A.1})$$

L'interaction entre l'atome et le champ électromagnétique se fait par l'intermédiaire du moment dipolaire de couplage atome-champ électromagnétique entre les états  $|1\rangle$  et  $|2\rangle$  qui peut être électrique de notation  $\vec{d}$  ou magnétique  $\vec{\mu}$ . Nous supposons ici que le champ est électrique (pour les alcalins, le moment est dipolaire magnétique lorsqu'on utilise des transitions hyperfines ou Zeeman). La pulsation de Rabi qui caractérise la force de couplage entre les niveaux atomiques et le champ laser  $\vec{E}_L = \vec{E}_0 e^{-i(\omega_L t)} + c.c$  est définie de la manière suivante par :

$$\widetilde{V}_{AL} = -\frac{\langle 1 | \vec{d} \cdot \vec{E}_L | 2 \rangle}{2\hbar} = -\frac{\Omega}{\hbar} (e^{-i(\omega_L t)} + e^{i(\omega_L t)}) \quad (\text{A.2})$$

où la pulsation de Rabi indépendante du temps est introduite par la définition<sup>1</sup> :

$$\Omega = -\vec{d} \cdot \vec{E}_0 / 2 \quad (\text{A.3})$$

---

<sup>1</sup>cette définition est double de celle introduite habituellement dans les ouvrages de mécanique quantique par Claude Cohen-Tannoudji

On suppose désormais dans la suite de l'annexe que la fréquence de Rabi est réelle. L'hamiltonien complet d'interaction du système devient :

$$\tilde{H} = \tilde{H}_0 + \tilde{V}_{AL} = \hbar \begin{pmatrix} \omega_1 & \Omega (e^{i\omega_L t} + e^{-i\omega_L t}) \\ \Omega (e^{-i\omega_L t} + e^{i\omega_L t}) & \omega_2 \end{pmatrix} \quad (\text{A.4})$$

L'évolution de la fonction d'onde<sup>2</sup> est alors décrite par l'équation de Schrödinger :

$$i\hbar \frac{d}{dt} |\Psi(t)\rangle = \tilde{H} |\Psi(t)\rangle \quad (\text{A.5})$$

La fonction d'onde est composée des coefficients  $\tilde{c}_1(t)$  et  $\tilde{c}_2(t)$  correspondant aux évolutions temporelles des états  $|1\rangle$  et  $|2\rangle$  des deux niveaux définissant la transition d'horloge :

$$\Psi(t) = \tilde{c}_1(t)|1\rangle + \tilde{c}_2(t)|2\rangle \quad (\text{A.6})$$

On obtient alors un ensemble d'équations différentielles couplées entre elles qui s'écrivent :

$$\begin{cases} i\dot{\tilde{c}}_1(t) = \Omega (e^{i\omega_L t} + e^{-i\omega_L t}) \tilde{c}_2(t) + \omega_1 \tilde{c}_1(t) \\ i\dot{\tilde{c}}_2(t) = \Omega (e^{-i\omega_L t} + e^{i\omega_L t}) \tilde{c}_1(t) + \omega_2 \tilde{c}_2(t) \end{cases} \quad (\text{A.7})$$

Il est impossible en pratique d'éliminer par une représentation adaptée toute dépendance temporelle des coefficients de la fonction d'onde (à cause des complexes hermitiques conjugués des fonctions oscillantes). On peut toutefois passer dans la représentation *des ondes tournantes* à l'aide d'un simple changement de référentiel de la définition en énergie. On pose par exemple :

$$c_1(t) = \tilde{c}_1(t)e^{i\omega_1 t} \quad c_2(t) = \tilde{c}_2(t)e^{i\omega_1 t} e^{i\omega_L t} \quad (\text{A.8})$$

On obtient alors :

$$\begin{cases} i\dot{c}_1(t) = \Omega (1 + e^{-2i\omega_L t}) c_2(t) \\ i\dot{c}_2(t) = \Omega (1 + e^{2i\omega_L t}) c_1(t) + (\omega_L - (\omega_2 - \omega_1)) c_2(t) \end{cases} \quad (\text{A.9})$$

L'*approximation séculaire* consiste à négliger les termes en  $e^{\pm 2i\omega_L t}$  qui tournent beaucoup plus vite. On obtient ainsi un ensemble d'équations dont l'hamiltonien est maintenant indépendant du temps :

$$\begin{cases} i\dot{c}_1(t) = \Omega c_2(t) \\ i\dot{c}_2(t) = \Omega c_1(t) + \delta c_2(t) \end{cases} \quad (\text{A.10})$$

avec le désaccord laser qui s'écrit :

$$\delta = \omega_L - (\omega_2 - \omega_1) \quad (\text{A.11})$$

On introduit aussi le nouvel hamiltonien indépendant du temps :

$$H = \hbar \begin{pmatrix} 0 & \Omega \\ \Omega & \delta \end{pmatrix} \quad (\text{A.12})$$

Soulignons que l'approximation séculaire fait disparaître un effet de couplage entre les niveaux d'énergies et le champ électromagnétique donnant lieu à un déplacement de fréquence de type Bloch-Siegert [49].

<sup>2</sup>l'équation de Schrödinger est mathématiquement équivalente à l'équation de l'onde pilote de la matrice densité en absence de toute relaxation

### A.1.2 Solution temporelle à partir de l'opérateur de Pauli

Les solutions temporelles du système précédent peuvent s'exprimer sous forme compacte à partir de l'opérateur vectoriel de Pauli  $\vec{\sigma}$ . Pour cela, on retranche à l'hamiltonien d'interaction précédent  $H$  la valeur  $\delta/2$  pour symétriser le problème. On a donc :

$$H = \hbar \begin{pmatrix} -\delta/2 & \Omega \\ \Omega & \delta/2 \end{pmatrix} = -\frac{\hbar}{2} (-2\Omega \cdot \hat{x} + \delta \cdot \hat{z}) \cdot \vec{\sigma} \quad (\text{A.13})$$

On rappelle que l'opérateur de Pauli est un ensemble de matrices définies par :

$$\vec{\sigma} = \begin{bmatrix} \sigma_x \\ \sigma_y \\ \sigma_z \end{bmatrix} \quad (\text{A.14})$$

avec :

$$\sigma_x = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \quad \sigma_y = \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix} \quad \sigma_z = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} \quad (\text{A.15})$$

On développe les solutions à partir de l'opérateur de Pauli  $\vec{\sigma}$ . L'équation de Schrödinger Eq. A.5 devient :

$$\frac{d}{dt} |\Psi(t)\rangle = i \frac{1}{2} (-2\Omega \cdot \hat{x} + \delta \cdot \hat{z}) \cdot \vec{\sigma} |\Psi(t)\rangle \quad (\text{A.16})$$

L'intégration de cette équation conduit à la solution formelle :

$$|\Psi(t)\rangle = \exp \left[ i \cdot \vec{\sigma} \frac{1}{2} (-2\Omega \cdot \hat{x} + \delta \cdot \hat{z}) (t - t_0) \right] |\Psi(t_0)\rangle \quad (\text{A.17})$$

En utilisant le fait que [?] :

$$\exp [i \vec{\sigma} \cdot A] = 1 \cos(|A|) + i \hat{\sigma} \frac{A}{|A|} \sin(|A|) \quad (\text{A.18})$$

On établit la solution temporelle de la fonction d'onde à partir de  $|\Psi(0)\rangle$  :

$$|\Psi(t)\rangle = \left[ \cos\left(\frac{\Omega_R}{2} t\right) + i \cdot \vec{\sigma} \left( \frac{-\delta \hat{z} + 2\Omega \hat{x}}{\Omega_R} \right) \sin\left(\frac{\Omega_R}{2} t\right) \right] |\Psi(0)\rangle \quad (\text{A.19})$$

avec la pulsation de Rabi effective :

$$\Omega_R = \sqrt{\delta^2 + 4\Omega^2} \quad (\text{A.20})$$

Nous obtenons la fonction d'onde à l'instant  $t$  en fonction des conditions initiales  $c_1(0)$  et  $c_2(0)$  :

$$\begin{aligned} |\Psi(t)\rangle = & \left[ c_1(0) \cos\left(\frac{\Omega_R}{2} t\right) + i \left( \frac{-\delta c_1(0) + 2\Omega c_2(0)}{\Omega_R} \right) \sin\left(\frac{\Omega_R}{2} t\right) \right] |1\rangle \\ & + \left[ c_2(0) \cos\left(\frac{\Omega_R}{2} t\right) + i \left( \frac{\delta c_2(0) + 2\Omega c_1(0)}{\Omega_R} \right) \sin\left(\frac{\Omega_R}{2} t\right) \right] |2\rangle \end{aligned} \quad (\text{A.21})$$

### A.1.3 Expression générale des solutions temporelles de la fonction d'onde à 2 niveaux

On peut aussi exprimer de manière générale les solutions temporelles d'un système à 2 niveaux à partir des coefficients  $c_1(t)$  et  $c_2(t)$  de la fonction d'onde associée [25] :

$$\begin{aligned} i\dot{c}_1(t) &= W_1 c_1 + b e^{i\omega t} c_2(t) \\ i\dot{c}_2(t) &= b e^{-i\omega t} c_1(t) + W_2 c_2(t) \end{aligned} \quad (\text{A.22})$$

Les solutions temporelles en fonction des conditions initiales  $c_1(t_0)$  et  $c_2(t_0)$  s'écrivent [25] :

$$\begin{aligned} c_1(t, t_0) &= \left[ \left( i \frac{\omega_0 - \omega}{\Omega_R} \sin\left(\frac{\Omega_R}{2} t\right) + \cos\left(\frac{\Omega_R}{2} t\right) \right) c_1(t_0) \right. \\ &\quad \left. - i \frac{2b}{\Omega_R} \sin\left(\frac{\Omega_R}{2} t\right) c_2(t_0) e^{i\omega t_0} \right] e^{i\left(\frac{1}{2}\omega - \frac{W_1 + W_2}{2}\right)t} \end{aligned} \quad (\text{A.23})$$

$$\begin{aligned} c_2(t, t_0) &= \left[ \left( -i \frac{\omega_0 - \omega}{\Omega_R} \sin\left(\frac{\Omega_R}{2} t\right) + \cos\left(\frac{\Omega_R}{2} t\right) \right) c_2(t_0) \right. \\ &\quad \left. - i \frac{2b}{\Omega_R} \sin\left(\frac{\Omega_R}{2} t\right) c_1(t_0) e^{-i\omega t_0} \right] e^{i\left(-\frac{1}{2}\omega - \frac{W_1 + W_2}{2}\right)t} \end{aligned} \quad (\text{A.24})$$

avec la pulsation de Rabi généralisée :

$$\Omega_R = \sqrt{(\omega_0 - \omega)^2 + (2b)^2} \quad \omega_0 = W_2 - W_1 \quad (\text{A.25})$$

## A.2 Coefficients complexes incluant les déplacements lumineux et le phénomène de relaxation par émission spontanée

### A.2.1 Introduction de l'émission spontanée : énergie complexe

L'introduction de l'émission spontanée est faite en incluant un terme imaginaire du type  $\omega_2 - i\frac{\Gamma}{2}$  sur la définition de l'énergie de l'état  $|2\rangle$  dans l'hamiltonien Eq. A.4. Cela conduit après transformation dans un nouveau référentiel tournant à un ensemble d'équations complexes de la forme :

$$\begin{cases} i\dot{c}_1(t) = \Omega c_2(t) \\ i\dot{c}_2(t) = \Omega c_1(t) + (\tilde{\delta} - i\frac{\Gamma}{2}) c_2(t) \end{cases} \quad (\text{A.26})$$

Les faibles déplacements lumineux  $\eta_1$  et  $\eta_2$  induits sur les positions en énergie  $\omega_1$  et  $\omega_2$  de chaque état atomique est finalement introduit sous la forme d'une correction différentielle dans la définition du désaccord :

$$\tilde{\delta} = \delta + \eta_2 - \eta_1 \quad (\text{A.27})$$

L'hamiltonien indépendant du temps devient :

$$H = \hbar \begin{pmatrix} 0 & \Omega \\ \Omega & \tilde{\delta} - i\frac{\Gamma}{2} \end{pmatrix} \quad (\text{A.28})$$

Dans la représentation de Schrödinger, l'introduction d'un terme imaginaire n'est pas satisfaisant puisqu'il conduit à la non conservation de l'ensemble de la population (analogue au système ouvert). En réalité, on ne peut pas écrire un hamiltonien complet d'interaction de cette manière car on ne décrit pas la totalité des processus de saut quantique [42]. Les amplitudes de transitions pour un tel système à 2 niveaux s'écrivent en représentation des ondes tournantes :

$$\begin{cases} i\dot{c}_1(t) = \Omega c_2(t) \\ i\dot{c}_2(t) = \Omega c_1(t) + \delta_r c_2(t) \end{cases} \quad (\text{A.29})$$

avec l'expression du désaccord complexe introduite par  $\delta_r = \tilde{\delta} - i\frac{\Gamma}{2}$  incluant les déplacements lumineux. Les solutions peuvent être écrites sous la forme d'une matrice  $2 \times 2$  couplant les états avant et après interaction avec le champ électromagnétique comme :

$$\begin{pmatrix} c_1(t) \\ c_2(t) \end{pmatrix} = \chi(t) \cdot \begin{pmatrix} M_+(t) & M_{\dagger}(t) \\ M_{\dagger}(t) & M_-(t) \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} c_1(t_0) \\ c_2(t_0) \end{pmatrix} \quad (\text{A.30})$$

avec les éléments de matrice obtenues à partir des solutions Eq. A.23 et Eq. A.24 :

$$\begin{aligned} M_+(t) &= \left\{ \cos\left(\frac{\Omega_R t}{2}\right) + i\frac{\delta_r}{\Omega_R} \sin\left(\frac{\Omega_R t}{2}\right) \right\} \\ M_-(t) &= \left\{ \cos\left(\frac{\Omega_R t}{2}\right) - i\frac{\delta_r}{\Omega_R} \sin\left(\frac{\Omega_R t}{2}\right) \right\} \\ M_{\dagger}(t) &= -i\frac{2\Omega}{\Omega_R} \sin\left(\frac{\Omega_R t}{2}\right) \end{aligned} \quad (\text{A.31})$$

On définit la pulsation complexe :

$$\Omega_R^2 = \delta_r^2 + 4\Omega^2 \quad (\text{A.32})$$

et le facteur de phase :

$$\chi(t) = \exp[-i\delta_r t/2] \quad (\text{A.33})$$

### A.2.2 Probabilité de Ramsey avec deux impulsions de durée différente

Cette approche est adaptée pour intégrer la présence d'éventuels déplacements de fréquence agissant sur la transition d'horloge  $\delta$  pendant l'interaction entre l'atome et le champ laser. L'application successive de deux interactions de durée  $\tau, \tau_m$  séparées par un temps mort  $T$  sans champ laser entraînent la formation des franges de Ramsey. Cette séquence s'écrit en décomposant chaque étape d'interaction :

-Première impulsion Rabi de durée  $\tau$  ( $\delta_r = \tilde{\delta} - i\frac{\Gamma}{2}$ ) :

$$\begin{pmatrix} c_1(\tau) \\ c_2(\tau) \end{pmatrix} = \chi(\tau) \cdot \begin{pmatrix} M_+(\tau) & M_{\dagger}(\tau) \\ M_{\dagger}(\tau) & M_-(\tau) \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} c_1(t_0) \\ c_2(t_0) \end{pmatrix} \quad (\text{A.34})$$

-Temps d'évolution  $T$  en absence de champ laser (pas de déplacements lumineux  $\delta_r = \delta - i\frac{\Gamma}{2}$ ) :

$$\begin{pmatrix} c_1(\tau, T) \\ c_2(\tau, T) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & \exp[-i(\delta - i\frac{\Gamma}{2})T] \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} c_1(\tau) \\ c_2(\tau) \end{pmatrix} \quad (\text{A.35})$$

-Seconde impulsion Rabi de durée  $\tau_m$  ( $\delta_r = \tilde{\delta} - i\frac{\Gamma}{2}$ ) :

$$\begin{pmatrix} c_1(2\tau, T, \tau_m) \\ c_2(2\tau, T, \tau_m) \end{pmatrix} = \chi(\tau_m) \cdot \begin{pmatrix} M_+(\tau_m) & M_{\dagger}(\tau_m) \\ M_{\dagger}(\tau_m) & M_-(\tau_m) \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} c_1(\tau, T) \\ c_2(\tau, T) \end{pmatrix} \quad (\text{A.36})$$

La solution finale est un produit de matrices qui dépend des conditions initiales sur les populations  $c_1(0)$  et  $c_2(0)$  et des temps d'interactions  $\tau$  et  $T$  :

$$\begin{pmatrix} c_1(\tau, T, \tau_m) \\ c_2(\tau, T, \tau_m) \end{pmatrix} = \chi(\tau)\chi(\tau_m) \cdot \begin{pmatrix} M_+(\tau)M_+(\tau_m) & M_{\dagger}(\tau_m)M_+(\tau) \\ +M_{\dagger}(\tau_m)M_{\dagger}(\tau) \exp\left[-i(\delta - i\frac{\Gamma}{2})T\right] & +M_{\dagger}(\tau_m)M_-(\tau) \exp\left[-i(\delta - i\frac{\Gamma}{2})T\right] \\ M_{\dagger}(\tau_m)M_+(\tau) & M_{\dagger}(\tau_m)M_{\dagger}(\tau) \\ +M_{\dagger}(\tau_m)M_-(\tau) \exp\left[-i(\delta - i\frac{\Gamma}{2})T\right] & +M_-(\tau_m)M_-(\tau) \exp\left[-i(\delta - i\frac{\Gamma}{2})T\right] \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} c_1(t_0) \\ c_2(t_0) \end{pmatrix} \quad (\text{A.37})$$

### A.2.3 Déphasage complexe $\Phi_{ii}(\tau, \tau_m)$ associé aux déplacements lumineux

On peut écrire les populations des niveaux  $|1\rangle$  et  $|2\rangle$  de manière astucieuse en séparant l'enveloppe des franges du terme de déphasage accumulé au cours de l'évolution libre de durée  $T$ . Pour cela, on introduit la notation suivante :

$$P_{ii}(\tau, T, \tau_m) = |\alpha_{ii}(\tau, \tau_m)|^2 \cdot \left| 1 + \beta_{ii}(\tau, \tau_m) e^{-\frac{\Gamma}{2}T} e^{-i(\delta T - \Phi_{ii}(\tau, \tau_m))} \right|^2 \quad (\text{A.38})$$

On peut identifier notamment l'enveloppe des franges  $|\alpha_{ii}(\tau, \tau_m)|^2$  et le facteur de phase  $\Phi_{ii}(\tau, \tau_m)$ . Les solutions s'écrivent :

population  $P_{11}$  :

$$\alpha_{11}(\tau, \tau_m) = [M_+(\tau)M_+(\tau_m)c_1(0) + M_{\dagger}(\tau)M_+(\tau_m)c_2(0)] \chi(\tau)\chi(\tau_m) \quad (\text{A.39})$$

et

$$\begin{aligned} \beta_{11}(\tau, \tau_m) e^{i\Phi_{11}(\tau, \tau_m)} &= \frac{M_{\dagger}(\tau_m)}{M_+(\tau_m)} \cdot \frac{M_{\dagger}(\tau)c_1(0) + M_-(\tau)c_2(0)}{(M_+(\tau)c_1(0) + M_{\dagger}(\tau)c_2(0))} \\ \beta_{11}(\tau, \tau_m) &= \left| \frac{M_{\dagger}(\tau_m)}{M_+(\tau_m)} \cdot \frac{M_{\dagger}(\tau)c_1(0) + M_-(\tau)c_2(0)}{(M_+(\tau)c_1(0) + M_{\dagger}(\tau)c_2(0))} \right| \end{aligned} \quad (\text{A.40})$$

population  $P_{22}$  :

$$\alpha_{22}(\tau, \tau_m) = [M_+(\tau)M_{\dagger}(\tau_m)c_1(0) + M_{\dagger}(\tau)M_{\dagger}(\tau_m)c_2(0)] \chi(\tau)\chi(\tau_m) \quad (\text{A.41})$$

et

$$\begin{aligned}\beta_{22}(\tau, \tau_m)e^{i\Phi_{22}(\tau, \tau_m)} &= \frac{M_-(\tau_m)}{M_{\dagger}(\tau_m)} \cdot \frac{M_{\dagger}(\tau)c_1(0) + M_-(\tau)c_2(0)}{(M_+(\tau)c_1(0) + M_{\dagger}(\tau)c_2(0))} \\ \beta_{22}(\tau, \tau_m) &= \left| \frac{M_-(\tau_m)}{M_{\dagger}(\tau_m)} \cdot \frac{M_{\dagger}(\tau)c_1(0) + M_-(\tau)c_2(0)}{(M_+(\tau)c_1(0) + M_{\dagger}(\tau)c_2(0))} \right|\end{aligned}\quad (\text{A.42})$$

En introduisant une meilleure estimation de la largeur de la frange centrale de Ramsey pour des durées d'interaction différente  $\tau$  et  $\tau_m$  en remplaçant la période  $1/2T$  des oscillations par l'approximation  $1/2T(1 + \frac{\tau + \tau_m}{2T})$ , les déphasages complexes  $\Phi_{ii}(\tau, \tau_m)$  associés aux fonctions d'onde de chaque état atomique induisent un déplacement de fréquence de la frange centrale  $\delta\nu_{ii}$  avec  $i = 1, 2$  tels que :

$$\delta\nu_{ii} \approx \frac{\Phi_{ii}(\tau, \tau_m)}{2\pi T \left(1 + \frac{\tau + \tau_m}{2T}\right)} = \frac{\arctan \left[ \frac{\text{Im}\{\beta_{ii}(\tau, \tau_m)e^{i\Phi_{ii}(\tau, \tau_m)}\}}{\text{Re}\{\beta_{ii}(\tau, \tau_m)e^{i\Phi_{ii}(\tau, \tau_m)}\}} \right]}{2\pi T \left(1 + \frac{\tau + \tau_m}{2T}\right)} \quad (\text{A.43})$$

Si on remplace le système atomique à 2 niveaux par une configuration à 3 niveaux d'énergie couplés à 2 champs lasers, ces déplacements de fréquence de la frange centrale dépendent directement de la condition de résonance avec le niveau intermédiaire ou niveau relais.

14 ANNEXE A. FONCTION D'ONDE COMPLEXE À 2 NIVEAUX D'ÉNERGIE

## Annexe B

# Méthode des matrices de Jaynes

On développe dans cette annexe la représentation matricielle des équations de Bloch optiques établies au chapitre 1. Ce formalisme permet de calculer exactement les solutions analytiques temporelles des populations lorsque les relaxations des variables atomiques sont introduites de manière phénoménologique. Le formalisme est établi dans les références [45] et [39].

### B.1 Représentation matricielle des équations de Bloch-optique à 2 niveaux

On peut toujours décrire l'évolution temporelle des variables atomiques d'un système à 2 niveaux sous la forme d'un opérateur agissant sur une matrice tel que :

$$\frac{dM(t)}{dt} = R \cdot M(t) + A \quad (\text{B.1})$$

avec :

$$M(t) = \begin{pmatrix} U(t) \\ V(t) \\ W(t) \end{pmatrix} \quad R = \begin{pmatrix} R_{11} & R_{12} & R_{13} \\ R_{21} & R_{22} & R_{23} \\ R_{31} & R_{32} & R_{33} \end{pmatrix} \quad A = \begin{pmatrix} A_{11} \\ A_{21} \\ A_{31} \end{pmatrix} \quad (\text{B.2})$$

L'opérateur de rotation  $R$  inclut les effets de la relaxation et l'interaction cohérente avec le champ électromagnétique. En multipliant le membre de gauche et de droite de l'équation Eq. B.1 par  $e^{-R \cdot t}$ , on obtient :

$$e^{-R \cdot t} \frac{dM(t)}{dt} - R \cdot M(t) e^{-R \cdot t} = A e^{-R \cdot t} \quad (\text{B.3})$$

On a alors :

$$\frac{d}{dt} [e^{-R \cdot t} M(t)] = A e^{-R \cdot t} \quad (\text{B.4})$$

On peut alors intégrer entre  $t$  et  $t_k$  l'équation précédente. On trouve après détermination de la constante d'intégration, la solution  $M(t)$  [45] :

$$M(t) = e^{R \cdot (t-t_k)} M(t_k) + [1 - e^{R \cdot (t-t_k)}] (-R)^{-1} A \quad (\text{B.5})$$

La solution stationnaire est déterminée lorsque  $t \rightarrow \infty$  soit :

$$M(\infty) \equiv M^{stat} = \begin{pmatrix} U^{stat} \\ V^{stat} \\ W^{stat} \end{pmatrix} = (-R)^{-1}A \quad (\text{B.6})$$

On peut donc écrire l'ensemble des équations différentielles sous la forme générale :

$$\boxed{M(t) = e^{R \cdot (t-t_k)} (M(t_k) - M^{stat}) + M^{stat}} \quad (\text{B.7})$$

## B.2 Expression de l'opérateur matriciel de rotation

Afin de déterminer des solutions analytiques des régimes transitoire et stationnaire, On établit les matrices  $R, A$  dans le cas d'un système fermé à deux niveaux, c'est à dire pour  $\gamma_1 = \gamma_2 = 0$  et la conservation de la population  $\rho_{11}(t) + \rho_{22}(t) = 1$ . La matrice  $R$  de rotation et la matrice  $A$  s'écrivent dans ce cas :

$$R = \begin{pmatrix} -\gamma_c & \tilde{\delta} & 0 \\ -\tilde{\delta} & -\gamma_c & -2\Omega \\ 0 & 2\Omega & -(\Gamma + 2\xi) \end{pmatrix} \quad A = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ \Gamma \end{pmatrix} \quad (\text{B.8})$$

avec le désaccord corrigé des déplacements lumineux sur chaque niveau d'horloge  $|1\rangle$  et  $|2\rangle$  tel que  $\tilde{\delta} = \delta + \eta_2 - \eta_1$ . La première transformation consiste à décomposer la matrice de rotation  $R$  en deux parties. On obtient l'opérateur :

$$R = -\gamma_c \cdot I - B \quad (\text{B.9})$$

avec maintenant :

$$B = \begin{pmatrix} 0 & -\tilde{\delta} & 0 \\ \tilde{\delta} & 0 & 2\Omega \\ 0 & -2\Omega & (\Gamma + 2\xi - \gamma_c) \end{pmatrix} \quad (\text{B.10})$$

L'opérateur rotation  $e^{-B \cdot (t-t_k)}$  peut se développer exactement comme une somme finie de coefficients dépendant du temps [39, 45] :

$$e^{-B \cdot (t-t_k)} = \alpha_0(t-t_k)1 + \alpha_1(t-t_k)B + \alpha_2(t-t_k)B^2 \quad (\text{B.11})$$

avec les conditions initiales imposées à  $t - t_k = 0$  :

$$\begin{aligned} \alpha_0(t-t_k=0) &= 1 \\ \alpha_1(t-t_k=0) &= 0 \\ \alpha_2(t-t_k=0) &= 0 \end{aligned} \quad (\text{B.12})$$

Le développement polynômial du déterminant de la matrice Eq. B.10 permet d'obtenir les coefficients  $a_1, a_2, a_3$ . On a alors :

$$-\lambda^3 + a_1\lambda^2 + a_2\lambda + a_3 = 0 \quad (\text{B.13})$$

avec :

$$a_1 = \Gamma + 2\xi - \gamma_c \quad (\text{B.14})$$

$$a_2 = -(\tilde{\delta}^2 + 4\Omega^2) \quad (\text{B.15})$$

$$a_3 = (\Gamma + 2\xi - \gamma_c)\tilde{\delta}^2 \quad (\text{B.16})$$

Les références [?, 45] permettent de déterminer l'évolution temporelle des coefficients  $\alpha_0, \alpha_1, \alpha_2$ . En algèbre linéaire, Le théorème de Cayley-Hamilton montre que l'exponentielle  $\exp[-B \cdot (t - t_k)]$  se développe à partir des mêmes coefficients  $a_1, a_2, a_3$ . La dérivée de l'équation Eq. B.11 conduit à l'expression :

$$\dot{\alpha}_0 \mathbb{I} + \dot{\alpha}_1 B + \dot{\alpha}_2 B^2 = -a_3 \alpha_2 \mathbb{I} - (a_2 \alpha_2 + \alpha_0) B - (\alpha_1 a_2 + a_1) B^2 \quad (\text{B.17})$$

On obtient alors par identification [45] :

$$\begin{aligned} \frac{d\alpha_0(t)}{dt} &= -a_3 \alpha_2(t) \\ \frac{d\alpha_1(t)}{dt} &= -a_2 \alpha_2(t) - \alpha_0(t) \\ \frac{d\alpha_2(t)}{dt} &= -a_1 \alpha_2(t) - \alpha_1(t) \end{aligned} \quad (\text{B.18})$$

Nous obtenons après simplification, l'équation différentielle par exemple sur  $\alpha_2(t)$  :

$$\alpha_2 \ddot{(t')} + a_1 \ddot{\alpha}_2(t') - a_2 \dot{\alpha}_2(t') + a_3 \alpha_2(t') = 0 \quad (\text{B.19})$$

dont les racines sont données par une équation caractéristique de la forme :

$$\lambda^3 + a_1 \lambda^2 - a_2 \lambda + a_3 = 0 \quad (\text{B.20})$$

L'équation différentielle Eq. B.19 est à coefficients constants. Sa solution générale est une combinaison linéaire de fonctions exponentielles du temps et comporte 3 racines caractéristiques (généralement 2 racines complexes et une racine réelle notée). La solution d'une telle équation s'écrit au final [54] :

$$\alpha_2(t') = e^{t'/\tau_2} [A \cos(\Omega_R t') + B \sin(\Omega_R t')] + C e^{t'/\tau_1} \quad (\text{B.21})$$

On obtient les 3 racines distinctes à partir de la référence [105] ou [58] à partir des solutions de l'équation caractéristique Eq. B.20 :

$$\begin{aligned} \Omega_R &= \frac{\sqrt{3}(-a_1^2 - 3a_2)}{3 \cdot 2^{1/3} X^{1/3}} + \frac{1}{6 \cdot 2^{1/3}} \sqrt{3} X^{1/3} \\ \tau_2^{-1} &= -\frac{1}{3} (a_1) + \frac{(-a_1^2 - 3a_2)}{3 \cdot 2^{1/3} X^{1/3}} - \frac{1}{6 \cdot 2^{1/3}} X^{1/3} \\ \tau_1^{-1} &= -\frac{1}{3} (a_1) - \frac{2^{1/3}(-a_1^2 - 3a_2)}{3 \cdot 2^{1/3} X^{1/3}} + \frac{1}{3 \cdot 2^{1/3}} X^{1/3} \end{aligned} \quad (\text{B.22})$$

et :

$$X = -2a_1^3 - 9a_1 a_2 - 27a_3 + (4(-a_1^2 - 3a_2)^3 + (-2a_1^3 - 9a_1 a_2 - 27a_3)^2)^{1/2} \quad (\text{B.23})$$

Les conditions initiales Eq.B.12 permettent de déterminer les coefficients  $A, B, C$  de la solution générale Eq.B.21. Il suffit d'injecter la solution Eq.B.21 dans l'ensemble des équations Eq.B.18 et de la dériver pour  $t - t_k = 0$ . On obtient :

$$\begin{aligned} A + C &= 0 \\ \tau_1^{-1}C + \Omega_R B + \tau_2^{-1}A &= 0 \\ (\tau_1^{-1})^2 C + 2\tau_2^{-1}\Omega_R B + ((\tau_2^{-1})^2 - \Omega_R^2)A &= 1 \end{aligned} \quad (\text{B.24})$$

soit :

$$\begin{aligned} A = -C &= -\frac{\Omega_R}{-\Omega_R(\tau_1^{-1})^2 - 2\tau_1^{-1}\tau_2^{-1}(\tau_1^{-1} - \tau_2^{-1}) + ((\tau_2^{-1})^2 - \Omega_R^2)\Omega_R} \\ B &= -\frac{\tau_1^{-1} - \tau_2^{-1}}{-\Omega_R(\tau_1^{-1})^2 - 2\tau_1^{-1}\tau_2^{-1}(\tau_1^{-1} - \tau_2^{-1}) + ((\tau_2^{-1})^2 - \Omega_R^2)\Omega_R} \end{aligned} \quad (\text{B.25})$$

L'expression générale de la matrice d'interaction après développement de l'équation Eq. B.11 est donc :

$$e^{-B \cdot t'} = \begin{pmatrix} \alpha_0(t') - \tilde{\delta}^2 \alpha_2(t') & -\alpha_1(t')\tilde{\delta} & -2\alpha_2(t')\Omega\tilde{\delta} \\ \tilde{\delta}\alpha_1(t') & \alpha_0(t') - \alpha_2(t')(\tilde{\delta}^2 + 4\Omega^2) & 2\Omega\alpha_1(t') + 2\Omega\Delta\gamma\alpha_2(t') \\ -2\alpha_2(t')\tilde{\delta}\Omega & -2\Omega\alpha_1(t') - 2\Delta\gamma\Omega\alpha_2(t') & \alpha_0(t') - \Delta\gamma\alpha_1(t') - 4\alpha_2(t')\Omega^2 \end{pmatrix} \quad (\text{B.26})$$

avec  $t' = t - t_k$  et  $\Delta\gamma = \Gamma + 2\xi - \gamma_c$ .

### B.3 Correspondance entre l'opérateur matriciel de rotation et la représentation complexe

Remarquons que pour  $t_k = 0$  et le cas d'une interaction sans processus de relaxation  $\Gamma = \gamma_c = 0$  et  $\xi = 0$ , la matrice de rotation s'écrit simplement sous la forme suivante :

$$M(t) = \begin{pmatrix} \frac{4\Omega^2 + \tilde{\delta}^2 \cos(\Omega_R t)}{\Omega_R^2} & \frac{\tilde{\delta}}{\Omega_R} \sin(\Omega_R t) & \frac{2\tilde{\delta}\Omega}{\Omega_R^2} (1 - \cos(\Omega_R t)) \\ -\frac{\tilde{\delta}}{\Omega_R} \sin(\Omega_R t) & \cos(\Omega_R t) & \frac{2\Omega}{\Omega_R} \sin(\Omega_R t) \\ \frac{2\tilde{\delta}\Omega}{\Omega_R^2} (1 - \cos(\Omega_R t)) & -\frac{2\Omega}{\Omega_R} \sin(\Omega_R t) & \frac{\tilde{\delta}^2 + 4\Omega^2 \cos(\Omega_R t)}{\Omega_R^2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} U(0) \\ V(0) \\ W(0) \end{pmatrix} \quad (\text{B.27})$$

avec  $\Omega_R = \sqrt{\tilde{\delta}^2 + 4\Omega^2}$ . Lorsque le système atomique évolue à la fréquence d'horloge sans champ laser<sup>1</sup> pendant un temps  $T$ , la matrice de rotation se note :

$$M(T) = \begin{pmatrix} \cos(\delta T) & \sin(\delta T) & 0 \\ -\sin(\delta T) & \cos(\delta T) & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} U(0) \\ V(0) \\ W(0) \end{pmatrix} \quad (\text{B.28})$$

<sup>1</sup>les déplacements lumineux disparaissent

Dans le cas sans relaxation, la matrice  $3 \times 3$  décrivant les deux cas précédents peut toujours se transformer en une matrice  $2 \times 2$  dont les éléments deviennent complexes :

$$\begin{pmatrix} c_1(t) \\ c_2(t) \end{pmatrix} = \chi(t) \cdot \begin{pmatrix} \cos(\frac{\Omega_R t}{2}) + i\frac{\tilde{\delta}}{\Omega_R} \sin(\frac{\Omega_R t}{2}) & -i\frac{2\Omega}{\Omega_R} \sin(\frac{\Omega_R t}{2}) \\ -i\frac{2\Omega}{\Omega_R} \sin(\frac{\Omega_R t}{2}) & \cos(\frac{\Omega_R t}{2}) - i\frac{\tilde{\delta}}{\Omega_R} \sin(\frac{\Omega_R t}{2}) \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} c_1(t_0) \\ c_2(t_0) \end{pmatrix} \quad (\text{B.29})$$

avec le facteur de phase nécessaire pour décrire la rotation durant l'évolution libre introduit par :

$$\chi(t) = \exp \left[ -i\tilde{\delta}t/2 \right] \quad (\text{B.30})$$

Les correspondances entre conditions initiales de la représentation en matrice densité et les coefficients complexes sont définies par :

$$\begin{aligned} \rho_{ii}(t_0 = 0) &= c_i(0)c_i^*(0) \\ \rho_{ij}(t_0 = 0) &= c_i(0)c_j^*(0) \end{aligned} \quad (\text{B.31})$$

Il est donc toujours possible de représenter une rotation dans un espace de Bloch à 3 composantes par une matrice complexe à 2 dimensions. La représentation de Schrödinger est dans ce contexte particulier toujours plus facile à manipuler lorsque la relaxation n'est pas prise en compte.



## Annexe C

# Solutions stationnaires exactes Bloch-Orriols à 3 niveaux atomiques

### C.1 Approche par la matrice densité

Les solutions stationnaires du système atomique à 3 niveaux ont été calculées à l'aide du logiciel Mathematica développé par la société Wolfram. Les calculs ont été menés à partir d'une définition des fréquences de Rabi qui est double de celle habituellement utilisée (voir la référence [68]) :

$$\Omega_1 = -\frac{\langle 1 | \vec{d} \cdot \vec{E}_{L1} | 3 \rangle}{2\hbar} \quad \Omega_2 = -\frac{\langle 2 | \vec{d} \cdot \vec{E}_{L2} | 3 \rangle}{2\hbar} \quad (\text{C.1})$$

Cette définition est retenue pour les calculs analytiques. En suivant la référence [68], on obtient les équations suivantes :

$$\begin{cases} \frac{d\rho_{11}}{dt} = 2\Omega_1 \text{Im}\{\rho_{13}\} + \Gamma_{31}\rho_{33} \\ \frac{d\rho_{22}}{dt} = 2\Omega_2 \text{Im}\{\rho_{23}\} + \Gamma_{32}\rho_{33} \\ \frac{d\rho_{33}}{dt} = -2\Omega_1 \text{Im}\{\rho_{13}\} - 2\Omega_2 \text{Im}\{\rho_{23}\} - (\Gamma_{32} + \Gamma_{31})\rho_{33} \\ \frac{d\rho_{13}}{dt} = -(\gamma_{c1} + i\Delta_1)\rho_{13} - i\Omega_2\rho_{12} + i\Omega_1(\rho_{33} - \rho_{11}) \\ \frac{d\rho_{23}}{dt} = -(\gamma_{c2} + i\Delta_2)\rho_{23} - i\Omega_1\rho_{21} + i\Omega_2(\rho_{33} - \rho_{22}) \\ \frac{d\rho_{12}}{dt} = -(\gamma_c + i(\Delta_1 - \Delta_2))\rho_{12} - i\Omega_2\rho_{13} + i\Omega_1\rho_{32} \end{cases} \quad (\text{C.2})$$

On détermine les solutions stationnaires en annulant les dérivées temporelles des variables. On introduit ensuite, suivant Orriols, les nouvelles variables  $\Delta n = \rho_{22} - \rho_{11}$  et  $\Delta w =$

$\rho_{33} - \rho_{22}$ . On a alors :

$$\begin{aligned}\rho_{11} &= \frac{1}{3}(1 - 2\Delta n - \Delta w) \\ \rho_{22} &= \frac{1}{3}(1 + \Delta n - \Delta w) \\ \rho_{33} &= \frac{1}{3}(1 + \Delta n + 2\Delta w)\end{aligned}\tag{C.3}$$

Les cohérences optiques sont réécrites en annulant les dérivées par rapport au temps. Nous obtenons comme expressions :

$$\begin{aligned}\rho_{13} &= \frac{\Omega_1(\Delta n + \Delta w) - \Omega_2\rho_{12}}{\Delta_1 - i\gamma_{c1}} \\ \rho_{23} &= \frac{\Omega_2\Delta w - \Omega_1\rho_{21}}{\Delta_2 - i\gamma_{c2}} \\ \rho_{12} &= a\left[\left(\frac{1}{\Delta_2 + i\gamma_{c2}} - \frac{1}{\Delta_1 - i\gamma_{c1}}\right)\Delta w - \frac{\Delta n}{\Delta_1 - i\gamma_{c1}}\right]\end{aligned}\tag{C.4}$$

$$\text{où } a = \frac{\Omega_1\Omega_2}{(\Delta_1 - \Delta_2) - i\gamma_c + \frac{\Omega_1^2}{(\Delta_2 + i\gamma_{c2})} + \frac{\Omega_2^2}{(\Delta_1 - i\gamma_{c1})}}.$$

Lorsqu'on remplace les cohérences par ces nouvelles expressions, on obtient un ensemble de 2 équations couplées agissant sur les différences de populations  $\Delta n$  and  $\Delta w$  :

$$\begin{cases} [2\Omega_1^2(\Delta w + \Delta n) - 2\Omega_1\Omega_2\text{Re}\{\rho_{12}\}]\frac{\gamma_{c1}}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} \\ - \frac{\Delta_1}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2}2\Omega_1\Omega_2\text{Im}\{\rho_{12}\} + \frac{\Gamma_{31}}{3}[1 + \Delta n + 2\Delta w] = 0 \\ [2\Omega_2^2\Delta w - 2\Omega_1\Omega_2\text{Re}\{\rho_{21}\}]\frac{\gamma_{c2}}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} \\ - \frac{\Delta_2}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2}2\Omega_1\Omega_2\text{Im}\{\rho_{21}\} + \frac{\Gamma_{32}}{3}[1 + \Delta n + 2\Delta w] = 0 \end{cases}\tag{C.5}$$

De la 3<sup>ème</sup> équation de Eq. C.4, on tire l'expression des parties réelles et imaginaires de la cohérence  $\rho_{12}$  en fonction de  $\Delta w$ ,  $\Delta n$ .

$$\begin{aligned}\text{Im}\{\rho_{12}\} &= -\text{Im}\{\rho_{21}\} = \\ \Delta w &\left[ \frac{\Omega_1\Omega_2\left[\frac{\gamma_{c2}\Omega_1^2}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} + \frac{\gamma_{c1}\Omega_2^2}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} + \gamma_c\right]\left[\frac{\Delta_2}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} - \frac{\Delta_1}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2}\right]}{\left[\Delta_1 - \Delta_2 + \frac{\Delta_2\Omega_1^2}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} - \frac{\Delta_1\Omega_2^2}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2}\right]^2 + \left[\frac{\gamma_{c2}\Omega_1^2}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} + \frac{\gamma_{c1}\Omega_2^2}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} + \gamma_c\right]^2} \right] \\ -\Delta w &\left[ \frac{\Omega_1\Omega_2\left[\frac{\gamma_{c2}\Omega_1^2}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} + \frac{\gamma_{c1}\Omega_2^2}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2}\right]\left[\Delta_1 - \Delta_2 + \frac{\Delta_2\Omega_1^2}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} - \frac{\Delta_1\Omega_2^2}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2}\right]}{\left[\Delta_1 - \Delta_2 + \frac{\Delta_2\Omega_1^2}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} - \frac{\Delta_1\Omega_2^2}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2}\right]^2 + \left[\frac{\gamma_{c2}\Omega_1^2}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} + \frac{\gamma_{c1}\Omega_2^2}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} + \gamma_c\right]^2} \right] \\ -\Delta n &\left[ \frac{\frac{\Delta_1}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2}\Omega_1\Omega_2\left[\frac{\gamma_{c2}\Omega_1^2}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} + \frac{\gamma_{c1}\Omega_2^2}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} + \gamma_c\right] - \frac{\gamma_{c1}}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2}\Omega_1\Omega_2\left[\Delta_1 - \Delta_2 + \frac{\Delta_2\Omega_1^2}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} - \frac{\Delta_1\Omega_2^2}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2}\right]}{\left[\Delta_1 - \Delta_2 + \frac{\Delta_2\Omega_1^2}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} - \frac{\Delta_1\Omega_2^2}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2}\right]^2 + \left[\frac{\gamma_{c2}\Omega_1^2}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} + \frac{\gamma_{c1}\Omega_2^2}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} + \gamma_c\right]^2} \right]\end{aligned}\tag{C.6}$$

$$\begin{aligned}
Re\{\rho_{12}\} = Re\{\rho_{21}\} = \\
\Delta w \left[ \frac{\Omega_1 \Omega_2 \left[ \frac{\gamma_{c2} \Omega_1^2}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} + \frac{\gamma_{c1} \Omega_2^2}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} + \gamma_c \right] \left[ \frac{\gamma_{c2}}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} + \frac{\gamma_{c1}}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} \right]}{\left[ \Delta_1 - \Delta_2 + \frac{\Delta_2 \Omega_1^2}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} - \frac{\Delta_1 \Omega_2^2}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} \right]^2 + \left[ \frac{\gamma_{c2} \Omega_1^2}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} + \frac{\gamma_{c1} \Omega_2^2}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} + \gamma_c \right]^2} \right] \\
+ \Delta w \left[ \frac{\Omega_1 \Omega_2 \left[ \frac{\Delta_2}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} - \frac{\Delta_1}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} \right] \left[ \Delta_1 - \Delta_2 + \frac{\Delta_2 \Omega_1^2}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} - \frac{\Delta_1 \Omega_2^2}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} \right]}{\left[ \Delta_1 - \Delta_2 + \frac{\Delta_2 \Omega_1^2}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} - \frac{\Delta_1 \Omega_2^2}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} \right]^2 + \left[ \frac{\gamma_{c2} \Omega_1^2}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} + \frac{\gamma_{c1} \Omega_2^2}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} + \gamma_c \right]^2} \right] \\
- \Delta n \left[ \frac{\frac{\Delta_1}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} \Omega_1 \Omega_2 \left[ \Delta_1 - \Delta_2 + \frac{\Delta_2 \Omega_1^2}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} - \frac{\Delta_1 \Omega_2^2}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} \right] - \frac{\gamma_{c1}}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} \Omega_1 \Omega_2 \left[ \frac{\gamma_{c2} \Omega_1^2}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} + \frac{\gamma_{c1} \Omega_2^2}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} + \gamma_c \right]}{\left[ \Delta_1 - \Delta_2 + \frac{\Delta_2 \Omega_1^2}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} - \frac{\Delta_1 \Omega_2^2}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} \right]^2 + \left[ \frac{\gamma_{c2} \Omega_1^2}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} + \frac{\gamma_{c1} \Omega_2^2}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} + \gamma_c \right]^2} \right]
\end{aligned} \tag{C.7}$$

On peut calculer les variables  $\Delta w$  et  $\Delta n$  à partir de l'équation Eq. C.5 et déterminer toutes les autres expressions. La population du niveau intermédiaire s'écrit :

$$\rho_{33} = S^\Lambda \frac{(\Delta_1 - \Delta_2)^2 + \gamma_c^2 + 2\gamma_c(\gamma_{c1} + \gamma_{c2})S^*}{(\Delta_1 - \Delta_2)[(\Delta_1 - \Delta_2) - \Delta_f] + \Gamma_{eff}^2} \tag{C.8}$$

La coherence raman  $\rho_{12}$  contient toute l'information de phase préparée lors de l'interaction CPT et s'écrit :

$$\begin{aligned}
Re\{\rho_{12}\} = \Gamma^{12} \times \frac{(\Delta_1 - \Delta_2)\chi - (\gamma_c + 2(\gamma_{c1} + \gamma_{c2})S^*)}{((\Delta_1 - \Delta_2)[\Delta_1 - \Delta_2 - \Delta_f] + \Gamma_{eff}^2)} \\
Im\{\rho_{12}\} = \Gamma^{12} \times \frac{(\Delta_1 - \Delta_2) + \chi\gamma_c}{((\Delta_1 - \Delta_2)[\Delta_1 - \Delta_2 - \Delta_f] + \Gamma_{eff}^2)}
\end{aligned} \tag{C.9}$$

avec les parametres  $\chi = \left( \frac{\Omega_2^2 \Gamma_{31} \gamma_{c2} \Delta_1 - \Omega_1^2 \Gamma_{32} \gamma_{c1} \Delta_2}{\gamma_{c1} \gamma_{c2} (\Omega_2^2 \Gamma_{31} + \Omega_1^2 \Gamma_{32})} \right)$ ,  $\Gamma^{12} = S^\Lambda \frac{\Omega_2^2 \Gamma_{31} + \Omega_1^2 \Gamma_{32}}{2\Omega_1 \Omega_2}$ . Les populations des états d'horloge  $\rho_{11}$ ,  $\rho_{22}$  dependent du rapport entre les fréquences de Rabi  $\Omega_1$  et  $\Omega_2$ . Chaque observable a pour expression :

$$\begin{aligned}
\rho_{11} = \frac{1}{2} - \left[ \frac{\Delta n}{2} \right] - \frac{\rho_{33}}{2} \\
\rho_{22} = \frac{1}{2} + \left[ \frac{\Delta n}{2} \right] - \frac{\rho_{33}}{2}
\end{aligned} \tag{C.10}$$

avec la différence de population  $\Delta n$  qui dépend du rapport de branchement  $\tilde{\Upsilon}$  par emission spontanée :

$$\Delta n = \frac{2\Omega_1 \Omega_2 \left[ \left( \frac{(1-\tilde{\Upsilon})\Delta_1}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} + \frac{(1+\tilde{\Upsilon})\Delta_2}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} \right) Im\{\rho_{12}\} + \left( \frac{(1-\tilde{\Upsilon})\gamma_{c1}}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} - \frac{(1+\tilde{\Upsilon})\gamma_{c2}}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} \right) Re\{\rho_{12}\} \right]}{\frac{(1-\tilde{\Upsilon})\Omega_1^2 \gamma_{c1}}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} + \frac{(1+\tilde{\Upsilon})\Omega_2^2 \gamma_{c2}}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2}} + \frac{\frac{(1-\tilde{\Upsilon})\Omega_1^2 \gamma_{c1}}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} - \frac{(1+\tilde{\Upsilon})\Omega_2^2 \gamma_{c2}}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2}}{\frac{(1-\tilde{\Upsilon})\Omega_1^2 \gamma_{c1}}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} + \frac{(1+\tilde{\Upsilon})\Omega_2^2 \gamma_{c2}}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2}}} \tag{C.11}$$

$$\text{et } \tilde{\Upsilon} = \frac{\frac{3\Omega_1^2 \gamma_{c1}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)} - \frac{3\Omega_2^2 \gamma_{c2}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)} + \frac{\Gamma_{31} - \Gamma_{32}}{\Gamma_{31} + \Gamma_{32}}}{\frac{3\Omega_2^2 \gamma_{c2}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)} + \frac{3\Omega_1^2 \gamma_{c1}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)} + 1}$$

On définit les variables  $\Delta_f = \Sigma\Delta_{fi}$  et  $\Gamma_{eff}$  :

$$\Delta_{f1} = \frac{\frac{2}{\gamma_{c1}\gamma_{c2}} \frac{\Delta_1\Gamma_{31}\gamma_{c2}\Omega_2^4 - \Delta_2\Gamma_{32}\gamma_{c1}\Omega_1^4}{\Gamma_{32}\gamma_{c2}\Omega_1^2 + \Gamma_{31}\gamma_{c1}\Omega_2^2}}{1 + \left(3 - \frac{\Gamma_{31} + \Gamma_{32}}{\gamma_{c1} + \gamma_{c2}}\right)S + \frac{\Omega_2^2\Gamma_{31}\gamma_{c2}\Delta_1^2 + \Omega_1^2\Gamma_{32}\gamma_{c1}\Delta_2^2}{\gamma_{c1}\gamma_{c2}(\Omega_1^2\Gamma_{32}\gamma_{c2} + \Omega_2^2\Gamma_{31}\gamma_{c1})}} \quad (C.12)$$

$$\Delta_{f2} = -\frac{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})S \frac{(\gamma_{c1} - \gamma_{c2})(\gamma_{c2}\Delta_1 + \gamma_{c1}\Delta_2)}{2\gamma_{c1}\gamma_{c2}(\gamma_{c1} + \gamma_{c2})}}{1 + \left(3 - \frac{\Gamma_{31} + \Gamma_{32}}{\gamma_{c1} + \gamma_{c2}}\right)S + \frac{\Omega_2^2\Gamma_{31}\gamma_{c2}\Delta_1^2 + \Omega_1^2\Gamma_{32}\gamma_{c1}\Delta_2^2}{\gamma_{c1}\gamma_{c2}(\Omega_1^2\Gamma_{32}\gamma_{c2} + \Omega_2^2\Gamma_{31}\gamma_{c1})}} \quad (C.13)$$

$$\begin{aligned} \Delta_{f3} = & -\frac{\gamma_c S \frac{\Gamma_{31}\Delta_1 - \Gamma_{32}\Delta_2}{2\gamma_{c1}\gamma_{c2}}}{1 + \left(3 - \frac{\Gamma_{31} + \Gamma_{32}}{\gamma_{c1} + \gamma_{c2}}\right)S + \frac{\Omega_2^2\Gamma_{31}\gamma_{c2}\Delta_1^2 + \Omega_1^2\Gamma_{32}\gamma_{c1}\Delta_2^2}{\gamma_{c1}\gamma_{c2}(\Omega_1^2\Gamma_{32}\gamma_{c2} + \Omega_2^2\Gamma_{31}\gamma_{c1})}} \\ & + \frac{\gamma_c S (\Gamma_{31} + \Gamma_{32}) \frac{\Delta_1 + \Delta_2}{2\gamma_{c1}\gamma_{c2}}}{1 + \left(3 - \frac{\Gamma_{31} + \Gamma_{32}}{\gamma_{c1} + \gamma_{c2}}\right)S + \frac{\Omega_2^2\Gamma_{31}\gamma_{c2}\Delta_1^2 + \Omega_1^2\Gamma_{32}\gamma_{c1}\Delta_2^2}{\gamma_{c1}\gamma_{c2}(\Omega_1^2\Gamma_{32}\gamma_{c2} + \Omega_2^2\Gamma_{31}\gamma_{c1})}} \end{aligned} \quad (C.14)$$

$$\Gamma_{eff} = \sqrt{\frac{\zeta + \gamma_c^2 \frac{\Gamma_{31}\gamma_{c2}\Omega_2^2\Delta_1^2 + \Gamma_{32}\gamma_{c1}\Omega_1^2\Delta_2^2}{\gamma_{c1}\gamma_{c2}(\Gamma_{31}\gamma_{c1}\Omega_2^2 + \Gamma_{32}\gamma_{c2}\Omega_1^2)} + (\gamma_c + 3\gamma_c S + 2(\gamma_{c1} + \gamma_{c2})S^*)(\gamma_c + 2(\gamma_{c1} + \gamma_{c2})S^*)}{1 + \left(3 - \frac{\Gamma_{31} + \Gamma_{32}}{\gamma_{c1} + \gamma_{c2}}\right)S + \frac{\Omega_2^2\Gamma_{31}\gamma_{c2}\Delta_1^2 + \Omega_1^2\Gamma_{32}\gamma_{c1}\Delta_2^2}{\gamma_{c1}\gamma_{c2}(\Omega_1^2\Gamma_{32}\gamma_{c2} + \Omega_2^2\Gamma_{31}\gamma_{c1})}}} \quad (C.15)$$

avec :

$$\zeta = \frac{\gamma_c S (2\Delta_1\Delta_2 + \Delta_1^2 - \Delta_2^2)(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})}{2\gamma_{c1}\gamma_{c2}} + \frac{(\gamma_{c1} - \gamma_{c2})(\Gamma_{32}\gamma_{c2} - \Gamma_{31}\gamma_{c1})}{2\gamma_{c1}\gamma_{c2}} (2SS^*(\gamma_{c1} + \gamma_{c2}) + \gamma_c S) \quad (C.16)$$

Toutes ces solutions comprennent trois paramètres de saturation :

$$\begin{aligned} S &= 2 \frac{\Omega_1^2\Omega_2^2}{(\Gamma_{32}\gamma_{c2}\Omega_1^2 + \Gamma_{31}\gamma_{c1}\Omega_2^2)} & S^* &= \frac{\gamma_{c1}\Omega_1^2 + \gamma_{c2}\Omega_2^2}{2\gamma_{c1}\gamma_{c2}(\gamma_{c1} + \gamma_{c2})} \\ S^\Lambda &= \frac{S}{1 + \left(3 - \frac{\Gamma_{31} + \Gamma_{32}}{\gamma_{c1} + \gamma_{c2}}\right)S + \frac{\Omega_2^2\Gamma_{31}\gamma_{c2}\Delta_1^2 + \Omega_1^2\Gamma_{32}\gamma_{c1}\Delta_2^2}{\gamma_{c1}\gamma_{c2}(\Omega_1^2\Gamma_{32}\gamma_{c2} + \Omega_2^2\Gamma_{31}\gamma_{c1})}} \end{aligned} \quad (C.17)$$

## C.2 Approche par les équations de taux généralisées

Une autre approche est développée par les références [102, 169]. On peut décrire l'interaction entre des faisceaux laser CPT et les atomes comme un ensemble d'équations de taux généralisées qui introduisent de manière indirecte (variables cachées) les cohérences atomiques entre les niveaux atomiques.

Cette méthode a l'avantage de faire apparaître les fréquences propres des processus à 1 et 2 photons responsables des transitions atomiques. L'ensemble des équations de taux généralisées des populations  $P_1 \equiv \rho_{11}(t)$ ,  $P_3 \equiv \rho_{33}(t)$ ,  $P_2 \equiv \rho_{22}(t)$  se notent dans l'espace de Laplace avec les conditions initiales  $P_0(0)$ ,  $P_2(0)$ ,  $P_1(0)$  :

$$w_{13}P_1 + w_{23}P_2 - w_3P_3 = Z P_3 - P_3(0) \quad (C.18)$$

$$w_{12}P_1 + w_{32}P_3 - w_2P_2 = Z P_2 - P_2(0) \quad (C.19)$$

$$w_{31}P_3 + w_{21}P_2 - w_1P_1 = Z P_1 - P_1(0) \quad (C.20)$$

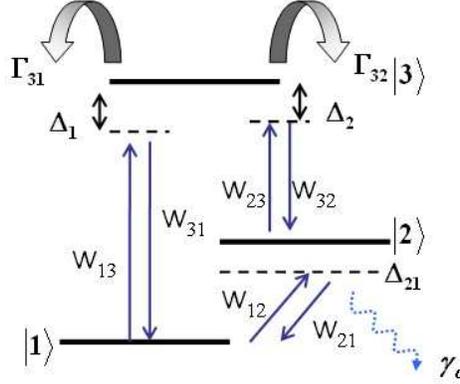


FIG. C.1 – *Schéma à 3 niveaux dans la représentation des équations de taux généralisées.*

avec les taux de transitions définis par :

$$\begin{aligned}
 w_1 &= w_{13} + w_{12} & w_{12} &= w_{12} \\
 w_2 &= w_{21} + w_{23} & w_{32} &= w_{23} + \Gamma_{32} \\
 w_3 &= w_{31} + w_{32} & w_{31} &= w_{13} + \Gamma_{31}
 \end{aligned} \tag{C.21}$$

La résolution de l'ensemble Eq. C.2 par la transformée de Laplace :

$$P_i^{stat} = \lim_{t \rightarrow \infty} P_i(t) = \lim_{Z \rightarrow 0} Z P_i(Z) \tag{C.22}$$

donne au final les solutions stationnaires qui s'écrivent :

$$P_3^{stat} = \frac{w_{12}w_{23} + w_{13}(w_{12} + w_{23})}{3w_{13}w_{12} + 3(w_{13} + w_{12})w_{23} + \Gamma_{32}(w_{13} + 2w_{12}) + \Gamma_{31}(2w_{12} + w_{23})} \tag{C.23}$$

$$P_2^{stat} = \frac{w_{13}w_{12} + w_{23}(w_{12} + w_{13}) + w_{12}\Gamma_{31} + (w_{12} + w_{13})\Gamma_{32}}{3w_{13}w_{12} + 3(w_{13} + w_{12})w_{23} + \Gamma_{32}(w_{13} + 2w_{12}) + \Gamma_{31}(2w_{12} + w_{23})} \tag{C.24}$$

$$P_1^{stat} = \frac{w_{13}w_{12} + w_{23}(w_{12} + w_{13}) + w_{12}\Gamma_{32} + (w_{12} + w_{23})\Gamma_{31}}{3w_{13}w_{12} + 3(w_{13} + w_{12})w_{23} + \Gamma_{32}(w_{13} + 2w_{12}) + \Gamma_{31}(2w_{12} + w_{23})} \tag{C.25}$$

avec la condition de conservation de la population :

$$P_1^{stat} + P_2^{stat} + P_3^{stat} = 1 \tag{C.26}$$

On définit les probabilités de transition à un photon ( $\propto \Omega^2$ ) et à deux photons ( $\propto \Omega^4$ ) :

$$w_{13} = 2 \operatorname{Re} \left\{ \frac{\Omega_1^2}{\xi_{31} + \frac{\Omega_2^2}{\xi_{21} + \frac{\Omega_1^2}{\xi_{23}}}} \right\} - 2 \operatorname{Re} \left\{ \frac{\Omega_1^2 \Omega_2^2}{\xi_{31}(\xi_{21}\xi_{23} + \Omega_1^2) + \Omega_2^2 \xi_{23}} \right\} \tag{C.27}$$

$$w_{23} = 2 \operatorname{Re}\left\{\frac{\Omega_2^2}{\xi_{32} + \frac{\Omega_1^2}{\xi_{21} + \frac{\Omega_2^2}{\xi_{31}}}}\right\} - 2 \operatorname{Re}\left\{\frac{\Omega_1^2 \Omega_2^2}{\xi_{31}(\xi_{21} \xi_{23} + \Omega_1^2) + \Omega_2^2 \xi_{23}}\right\} \quad (\text{C.28})$$

$$w_{12} = w_{21} = 2 \operatorname{Re}\left\{\frac{\Omega_1^2 \Omega_2^2}{\xi_{31}(\xi_{21} \xi_{23} + \Omega_1^2) + \Omega_2^2 \xi_{21}}\right\} \quad (\text{C.29})$$

Les termes complexes  $\xi_{ij}$  incluent les largeurs radiatives  $\Gamma_{ij}$  et les désaccords en fréquence  $\Delta_{ij}$  avec les définitions suivantes [102] :

$$\begin{aligned} \xi_{31} &= -i\Delta_1 + \gamma_{c1} \\ \xi_{32} &= i\Delta_2 + \gamma_{c2} \\ \xi_{21} &= i\Delta_{21} + \gamma_c = i(\Delta_2 - \Delta_1) + \gamma_c \end{aligned} \quad (\text{C.30})$$

La formulation des équations de taux réduit la taille du nombre d'équations à N au lieu de N<sup>2</sup> pour les équations de Bloch-optiques. L'interprétation en termes de flux atomique de population est plus naturelle. Enfin, les taux de transition à un et deux photons sont directement reconnaissables ainsi que les effets de déplacement lumineux sur les fréquences propres du système atomique.



ANNEXE C. SOLUTIONS STATIONNAIRES EXACTES BLOCH-ORRIOLS À  
158 3 NIVEAUX ATOMIQUES

---

## Annexe D

# Effet Zeeman pour un alcalin

- Structure fine de l'atome de Césium (couplage  $L S$ ) :

L'état fondamental de l'atome est donné par cette dernière couche et se note en spectroscopie  $6^2S_{1/2}$ . Cela signifie qu'il y a couplage entre le spin  $S = 1/2$  de l'électron et le moment orbital  $L = 0$  de l'atome. Il vaut  $J = L + S$  et prend ici l'unique valeur  $J = 1/2$ . Lorsque  $L = 1$ , les 2 premiers états excités se notent respectivement  $6^2P_{1/2}$  et  $6^2P_{3/2}$  puisque  $J$  prend les 2 valeurs possibles  $J = 1/2$  ou  $J = 3/2$ .

- Structure hyperfine de l'atome de césium (couplage  $J I$ ) :

Le couplage précédent se trouve associé maintenant au spin nucléaire du césium qui vaut  $I = 7/2$ . Le couplage hyperfin  $F$  ainsi réalisé entre  $J$  et  $I$  est donné par  $F = I + J$ . Pour le niveau  $6^2S_{1/2}$ , on a  $F = 3$  et  $F = 4$ . Pour le niveau  $6^2P_{1/2}$ , on a  $F' = 3$  et  $F' = 4$ . Pour le niveau  $6^2P_{3/2}$ , on a  $F' = 2$ ,  $F' = 3$ ,  $F' = 4$ ,  $F' = 5$ .

## D.1 Effet Zeeman et Formule de Breit-Rabi

### D.1.1 Effet Zeeman en champ faible

Lorsqu'un atome est plongé dans un champ magnétique  $B$  de très faible intensité, il y a interaction de ce champ avec les moments magnétiques de l'atome. L'hamiltonien d'interaction de l'atome dans un champ magnétique s'écrit comme la somme des 3 moments magnétiques du mouvement orbital  $\vec{L}$ , du spin de l'électron  $\vec{S}$  et du spin du noyau  $\vec{I}$  :

$$H_Z = -\vec{B} \cdot (\vec{M}_L + \vec{M}_S + \vec{M}_I) \quad (\text{D.1})$$

La correction en énergie dans la base  $|F, m_f\rangle$  s'écrit alors avec les valeurs moyennes dans la théorie des perturbations au premier ordre :

$$\langle H_Z \rangle = \Delta E_Z = \frac{eBm_f}{2M_e} \left[ \frac{\langle \vec{F} \cdot \vec{J} \rangle}{F(F+1)} + \frac{\langle \vec{F} \cdot \vec{S} \rangle}{F(F+1)} \right] - \frac{eg_I B m_f}{2M_P} \frac{\langle \vec{F} \cdot \vec{I} \rangle}{F(F+1)} \quad (\text{D.2})$$

Avec le théorème de projection dans la base adaptée, on obtient pour  $\vec{S}$  et  $\vec{J}$  les relations suivantes :

$$\vec{S} = \frac{\langle \vec{F} \cdot \vec{S} \rangle}{F(F+1)} \vec{F} \quad (\text{D.3})$$

$$\vec{J} = \frac{\langle \vec{F} \cdot \vec{J} \rangle}{F(F+1)} \vec{F} \quad (\text{D.4})$$

En couplant les deux expressions ci-dessus, on obtient finalement l'expression de l'effet Zeeman en champ faible :

$$\begin{aligned} \Delta E_Z = & \frac{eBm_f}{2M_e} \left[ \frac{F(F+1) - I(I+1) + J(J+1)}{2F(F+1)} \right] \times \left[ 1 + \frac{J(J+1) + S(S+1) - L(L+1)}{2J(J+1)} \right] \\ & - \frac{eg_I Bm_f}{2M_P} \left[ \frac{F(F+1) + I(I+1) - J(J+1)}{2F(F+1)} \right] \end{aligned} \quad (\text{D.5})$$

Le déplacement en énergie est dans ce cas linéaire avec le champ. Le traitement perturbatif est, on l'a vu, valable tant que la correction apportée par l'application d'un champ magnétique reste petite devant l'hamiltonien de structure hyperfine. En réalité, les sous niveaux Zeeman de la transition d'horloge dépendent de manière quadratique du champ magnétique et il faut donc réécrire l'hamiltonien d'interaction en considérant un couplage intermédiaire entre un champ faible et un champ fort.

### D.1.2 Effet Zeeman en champ intermédiaire

Le calcul en champ intermédiaire est effectué par N.F. Ramsey dans son livre *Molecular beams* page 85 édition oxford at Clarendonpress. L'hamiltonien nécessaire au calcul s'écrit en prenant le champ magnétique  $\vec{B}$  selon l'axe Oz :

$$H_Z = A(2S+1L_J) \vec{I} \cdot \vec{J} + g_j \mu_B B \cdot J_z - g_I \mu_B B \cdot I_z \quad (\text{D.6})$$

Le produit  $\vec{I} \cdot \vec{J}$  s'écrit avec les opérateurs  $\hat{I}_x, \hat{I}_y, \hat{I}_z$  et  $\hat{J}_x, \hat{J}_y, \hat{J}_z$  :

$$\vec{I} \cdot \vec{J} = \hat{I}_x \hat{J}_x + \hat{I}_y \hat{J}_y + \hat{I}_z \hat{J}_z = \frac{1}{2} [\hat{I}_+ \hat{J}_- + \hat{I}_- \hat{J}_+] + \hat{I}_z \hat{J}_z \quad (\text{D.7})$$

avec  $\hat{I}_\pm = \hat{I}_x \pm \hat{I}_y$ ,  $\hat{J}_\pm = \hat{J}_x \pm \hat{J}_y$

Dans la base  $|m_I, m_J\rangle$ , l'hamiltonien d'interaction s'écrit finalement :

$$\begin{aligned} H_Z |m_I, m_J\rangle = & A(2S+1L_J) \left[ \frac{\hat{I}_+ \hat{I}_-}{2} |m_I + 1, m_J - 1\rangle + m_I m_J |m_I, m_J\rangle + \frac{\hat{I}_- \hat{I}_+}{2} |m_I - 1, m_J + 1\rangle \right] \\ & + g_j \mu_B m_J |m_I, m_J\rangle - g_I \mu_B m_I |m_I, m_J\rangle \end{aligned} \quad (\text{D.8})$$

avec  $\hat{I}_\pm \hat{I}_\mp = \sqrt{I(I+1) - m_I(m_I \pm 1)} \sqrt{J(J+1) - m_J(m_J \pm 1)}$

On change de base de représentation :  $|m_I, m_J\rangle \longrightarrow |m_F \pm m_J, \mp m_J\rangle$ . L'hamiltonien devient :

$$\begin{aligned}
H_Z|m_f \mp m_J, \pm m_J\rangle = & \\
A(2S+1L_J) \left[ \frac{\hat{I}_\pm \hat{I}_\mp}{2} |m_f \mp m_J + 1, \pm m_J - 1\rangle + (m_f \mp m_J)m_J |m_f \mp m_J, \pm m_J\rangle \right. & \\
+ \frac{\hat{I}_\mp \hat{I}_\pm}{2} |m_f \mp m_J - 1, \pm m_J + 1\rangle \left. \right] \pm g_j \mu_B B m_J |m_f \mp m_J, \pm m_J\rangle & \quad (D.9) \\
- g_I \mu_B B (m_f \mp m_J) |m_f \mp m_J, \pm m_J\rangle &
\end{aligned}$$

avec maintenant

$$\hat{I}_\pm \hat{I}_\mp = \sqrt{I(I+1) - (m_F \mp m_J)(m_F \mp m_J \pm 1)} \cdot \sqrt{J(J+1) \mp m_J(m_J \pm 1)}$$

On peut donc maintenant écrire la matrice des états atomiques à l'aide de ces kets. Il suffira alors de diagonaliser la matrice dans le sous-espace correspondant à chaque niveau hyperfin pour obtenir les valeurs propres des états d'énergie en fonction du champ magnétique appliqué. Dans le cas du Césium, les niveaux hyperfins mises en jeu correspondent aux états  $^2S_{1/2}$ ,  $^2P_{1/2}$ ,  $^2P_{3/2}$ . Les différents kets définissant la base d'interaction s'écrivent alors :

$$\left\{ |m_F - \frac{3}{2}, \frac{3}{2}\rangle, |m_F - \frac{1}{2}, \frac{1}{2}\rangle, |m_F + \frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\rangle, |m_F + \frac{3}{2} - \frac{3}{2}\rangle \right\}$$

### D.1.3 Formule de Breit-Rabi des niveaux $^2S_{1/2}$ et $^2P_{1/2}$ .

$$\left( \begin{array}{cc}
\frac{1}{2}A(2S+1L_J)(m_F - \frac{1}{2}) & \frac{A(2S+1L_J)}{2} \sqrt{I(I+1) - (m_F - \frac{1}{2})(m_F + \frac{1}{2})} \\
+ \frac{1}{2}g_j \mu_B B & \times \sqrt{J(J+1) + \frac{1}{4}} \\
-g_I \mu_B B(m_F - \frac{1}{2}) & \\
\frac{A(2S+1L_J)}{2} \sqrt{(I+1) - (m_F + \frac{1}{2})(m_F - \frac{1}{2})} & -\frac{1}{2}A(2S+1L_J)(m_F - \frac{1}{2}) \\
\times \sqrt{J(J+1) + \frac{1}{4}} & -\frac{1}{2}g_j \mu_B B \\
& -g_I \mu_B B(m_F + \frac{1}{2})
\end{array} \right)$$

La diagonalisation de cette matrice réduite conduit à la formule de Breit-Rabi [Rabi, 1932] pour le niveau  $^2S_{1/2}$  et  $^2P_{1/2}$  :

$$\Delta E_Z^\pm = -\frac{A(2S+1L_J)}{2} \frac{(F+1)}{2I(I+1)} - g_I \mu_B m_F B \pm \frac{A(2S+1L_J)}{2} (F+1) \sqrt{1 + 4m_F \frac{X}{2I+1} + X^2} \quad (D.10)$$

avec  $X = \frac{(g_j + g_I) \mu_B B}{(2I+1)A(2S+1L_J)}$  et le facteur de Landé  $g_j = \left[ 1 + \frac{J(J+1) + S(S+1) - L(L+1)}{2J(J+1)} \right]$ .

La transition d'horloge appartient au niveau fondamental  $^2S_{1/2}$  de l'atome de Césium. Elle a lieu entre les deux sous niveaux  $|F = 4, m_F = 0\rangle, |F = 3, m_F = 0\rangle$  et est mise à profit dans les horloges atomiques puisqu'elle ne varie que quadratiquement avec le champ magnétique. Le déplacement vaut quantitativement :

$$\frac{\Delta E_Z^\pm}{h} = \Delta\nu_{horloge} = 427,45 \cdot 10^8 B^2 \quad (\text{D.11})$$

en prenant  $g_j = 2$  pour le facteur de Landé.

#### D.1.4 Niveau $^2P_{3/2}$

Les niveaux hyperfins se séparent en 4 groupes magnétiques  $|m_j = -\frac{3}{2}\rangle, |m_j = -\frac{1}{2}\rangle, |m_j = +\frac{1}{2}\rangle, |m_j = +\frac{3}{2}\rangle$  lorsque le champ magnétique est suffisamment élevé. La diagonalisation numérique de la matrice permet de tracer la levée de dégénérescence des états hyperfins du niveau  $6^2P_{3/2}$ . 4 niveaux hyperfins se scindent en  $2F + 1$  sous niveaux Zeeman soit au total 32 sous niveaux. La faible valeur du déplacement du niveau  $6^{1/2}P_{3/2}, F' = 3$  en présence du champ magnétique s'explique par le fait que seul la contribution du noyau de spin  $I$  intervient dans la levée de dégénérescence (le terme de la formule ?? est  $\propto$  au magnéton de Bohr  $\frac{eB}{2m_e}$  qui est nulle pour  $F=3$ ). L'interaction d'un atome avec un champ magnétique statique permet de lever la dégénérescence des niveaux hyperfins et d'identifier la transition d'horloge  $|F = 3, m_f = 0\rangle, |F = 4, m_f = 0\rangle$  du Cs. On remarque que la formule de Breit-Rabi pour le niveau hyperfin fondamental  $6^2S_{1/2}$  s'applique également pour le premier état hyperfin excité  $6^2P_{1/2}$  en utilisant le facteur de Landé adéquate. L'avantage de la raie D1 et de pouvoir traiter académiquement les interactions magnétiques avec une très bonne résolution. Rappelons pour finir que lorsque le champ est très faible, il s'agit du régime connu historiquement sous le nom d'effet Zeeman anormal. La levée de dégénérescence est alors linéaire avec le champ magnétique. Lorsque l'atome est en présence d'un fort champ magnétique, le régime est connu sous le nom d'effet Paschen-Back.

$$\left( \begin{array}{cccc}
 \frac{3}{2}A^{(2S+1)L_J}(m_F - \frac{3}{2}) & \frac{\frac{1}{2}A^{(2S+1)L_J}}{\times\sqrt{I(I+1) - (m_F - \frac{3}{2})(m_F - \frac{1}{2})} \times\sqrt{J(J+1) - \frac{3}{4}}} & 0 & 0 \\
 +\frac{3}{2}g_j\mu_B B & & & \\
 -g_I\mu_B B(m_F - \frac{3}{2}) & & & \\
 \\
 \frac{\frac{1}{2}A^{(2S+1)L_J}}{\times\sqrt{I(I+1) - (m_F - \frac{1}{2})(m_F - \frac{3}{2})} \times\sqrt{J(J+1) - \frac{3}{4}}} & \frac{\frac{1}{2}A^{(2S+1)L_J}(m_F - \frac{1}{2})}{+\frac{1}{2}g_j\mu_B B -g_I\mu_B B(m_F - \frac{1}{2})} & \frac{A^{(2S+1)L_J}}{\times\sqrt{(I+1) - (m_F + \frac{1}{2})(m_F - \frac{1}{2})} \times\sqrt{J(J+1) + \frac{1}{4}}} & 0 \\
 \\
 0 & \frac{\frac{1}{2}A^{(2S+1)L_J}}{\times\sqrt{I(I+1) - (m_F - \frac{1}{2})(m_F + \frac{1}{2})} \times\sqrt{J(J+1) + \frac{1}{4}}} & \frac{-\frac{1}{2}A^{(2S+1)L_J}(m_F - \frac{1}{2})}{-\frac{1}{2}g_j\mu_B B -g_I\mu_B B(m_F + \frac{1}{2})} & \frac{\frac{1}{2}A^{(2S+1)L_J}}{\times\sqrt{(I+1) - (m_F + \frac{1}{2})(m_F - \frac{1}{2})} \times\sqrt{J(J+1) + \frac{1}{4}}} \\
 \\
 0 & 0 & \frac{\frac{1}{2}A^{(2S+1)L_J}}{\times\sqrt{(I+1) - (m_F + \frac{1}{2})(m_F - \frac{1}{2})} \times\sqrt{J(J+1) + \frac{1}{4}}} & \frac{-\frac{1}{2}A^{(2S+1)L_J}(m_F - \frac{3}{2})}{-\frac{1}{2}g_j\mu_B B -g_I\mu_B B(m_F + \frac{1}{2})}
 \end{array} \right)$$

Dipôle magnétique $6^2S_{1/2}$	$A(^2S_{1/2})$	$h \cdot 2.2981579425$ GHz (exact)
Dipôle magnétique $6^2P_{1/2}$	$A(^2P_{1/2})$	$h \cdot 291.920(19)$ MHz
Dipôle magnétique $6^2P_{3/2}$	$A(^2P_{3/2})$	$h \cdot 50.275(3)$ MHz

TAB. D.1 – Définition des couplages hyperfins.

électron : $g_s$	2.002 319 304 373 7(80)
moment orbital : $g_L$	0.999 995 87
couplage spin-orbite : $g_j$ ( $6^2S_{1/2}$ )	2.002 540 32(20)
couplage spin-orbite : $g_j$ ( $6^2P_{1/2}$ )	0.665 90(9)
couplage spin-orbite : $g_j$ ( $6^2P_{3/2}$ )	1.3340(3)
Facteur nucléaire gyromagnétique : $g_I$	0.000 398 853 95(52)

TAB. D.2 – Valeurs expérimentales des facteurs de Landé.

$6^2S_{1/2}$	$F^{\circ}=4$	$m_f \times 350\text{kHz}/G$ ( $-m_f \times 0.350\text{MHz}/T$ )
	$F^{\circ}=3$	$-m_f \times 351\text{kHz}/G$ ( $-m_f \times 0.351\text{MHz}/T$ )
$6^2P_{1/2}$	$F^{\circ}=4$	$m_f \times 116\text{kHz}/G$ ( $-m_f \times 0.116\text{MHz}/T$ )
	$F^{\circ}=3$	$-m_f \times 117\text{kHz}/G$ ( $-m_f \times 0.117\text{MHz}/T$ )
$6^2P_{3/2}$	$F^{\circ}=5$	$m_f \times 560\text{kHz}/G$ ( $-m_f \times 0.560\text{MHz}/T$ )
	$F^{\circ}=4$	$m_f \times 373\text{kHz}/G$ ( $-m_f \times 0.373\text{MHz}/T$ )
	$F^{\circ}=3$	$-m_f \times 569\text{kHz}/G$ ( $-m_f \times 0.569\text{MHz}/T$ )
	$F^{\circ}=2$	$-m_f \times 934\text{kHz}/G$ ( $-m_f \times 0.934\text{MHz}/T$ )

TAB. D.3 – Valeurs numériques des déplacements de fréquence des sous-niveaux Zeeman en champ faible (Formule de Breit-Rabi). (on rappelle que  $10^4 G = 1 T$ ).





## Annexe E

# Articles publiés et soumis à publication



## Cancellation of Stark Shifts in Optical Lattice Clocks by Use of Pulsed Raman and Electromagnetically Induced Transparency Techniques

Thomas Zanon-Willette, Andrew D. Ludlow, Sebastian Blatt, Martin M. Boyd, Ennio Arimondo,\* and Jun Ye  
*JILA, National Institute of Standards and Technology and University of Colorado, Department of Physics, University of Colorado, Boulder, Colorado 80309-0440, USA*

(Received 16 June 2006; published 7 December 2006)

We propose a combination of electromagnetically induced transparency–Raman and pulsed spectroscopy techniques to accurately cancel frequency shifts arising from electromagnetically induced transparency fields in forbidden optical clock transitions of alkaline earth atoms. At appropriate detunings, time-separated laser pulses are designed to trap atoms in coherent superpositions while eliminating off-resonance ac Stark contributions, achieving efficient population transfer up to 60% with inaccuracy  $<10^{-17}$ . Results from the wave-function formalism are confirmed by the density matrix approach.

DOI: 10.1103/PhysRevLett.97.233001

PACS numbers: 32.80.-t, 32.70.Jz, 42.50.Gy, 42.62.Eh

In the field of optical frequency standards and clocks, single trapped ions [1] and alkaline earth atoms [2–6] are advancing clock performances. The advantage arises from superhigh resonance quality factors of these optical transitions [7], which are expected to be  $10^5$  better than microwave fountains. These fountain clocks are already below the  $10^{-15}$  relative fractional uncertainty [8]. Fermionic isotopes of alkaline earths trapped in optical lattices at the magic wavelength [9] offer ultranarrow linewidths of a few millihertz without recoil and Doppler effects, but remain potentially sensitive to systematic effects arising from the nuclear spin-related tensor polarizability [3–5]. On the other hand, bosonic isotopes with no nuclear spin and a higher natural isotopic abundance avoid multiple hyperfine components but lack direct excitation of the clock transition  $|1\rangle \leftrightarrow |2\rangle$  in Fig. 1(a). Indirect excitation via continuous-wave electromagnetically induced transparency (EIT) has been proposed to probe these forbidden transitions [10,11]. A similar scheme for the  $^{174}\text{Yb}$  forbidden clock transition was implemented by applying a dc magnetic field for state mixing [6].

All such schemes can suffer from Stark shifts due to nonresonant electric-dipole couplings of the clock levels to other states induced by the applied electromagnetic fields [12,13]. Reference [10] provides some detailed calculations of these shifts. To further reduce this potential systematic error, we could apply an approach similar to that used for the determination of the magic wavelength [3,4] or the hyperpolarizability contribution to the ac Stark shifts [14]: Measurements at different field strengths are used to extrapolate the clock frequency to vanishing field. However, this simple approach does not apply to the EIT-related schemes where the applied field strength modifies also the optical pumping time required to prepare the atoms in a coherent superposition [15]. The preparation time required for optimal signal contrast and clock stability becomes impractically long at low field strengths. But using large fields increases the ac Stark shifts and limits the clock accuracy. To overcome these limits, the pulsed

scheme proposed in this Letter [Fig. 1(c)] optimizes clock performance by using time-separated laser pulses to prepare and interrogate the optical clock transition [16]. It is an original mix of Ramsey spectroscopy and highly efficient population transfer under coherent population trapping (CPT) [17]. The first pulse prepares atoms in a coherent superposition and the second pulse probes the clock frequency. This configuration produces a large contrast in the detected clock signal. More importantly, as the detunings of the applied fields affect the phase evolution of the atomic wave-function, a proper combination of the common mode laser detuning  $\Delta_0$  and pulse durations  $\tau$ ,  $\tau_m$  (Fig. 1) reduces the clock shift to  $\sim 10^{-17}$ . The discussion presented here reveals for the first time a general relation connecting the preparation time of the Raman

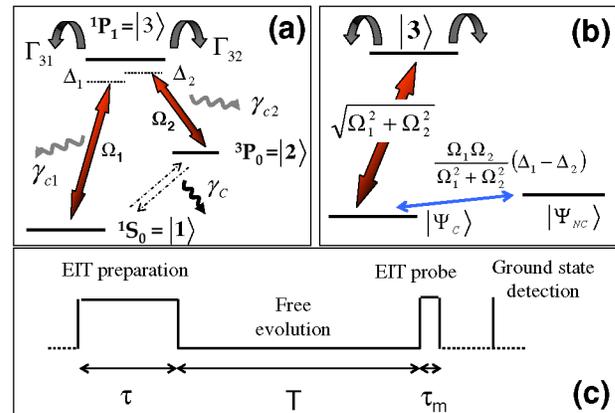


FIG. 1 (color online). (a) Three-level atom-light configuration for an optical lattice clock based on time-separated laser pulses including relaxation and decoherence rates. The optical detunings  $\Delta_1 \equiv \Delta_0 + \eta_1$ ,  $\Delta_2 \equiv \Delta_0 - \delta_r + \eta_2$  include ac Stark shifts  $\eta_i$  from off-resonant levels. Here  $\Delta_0$  is the common mode detuning and  $\delta_r$  denotes deviation from the Raman condition. (b) The corresponding dressed-state representation of bright  $|\Psi_C\rangle$  and dark  $|\Psi_{NC}\rangle$  states defining the clock transition. (c) The probing pulse sequence.

coherence and the signal contrast in the subsequent detection of this coherence, relevant to many EIT or CPT related experiments.

The atomic evolution between  $^1S_0$  and  $^3P_0$  is properly described in the dressed-state picture [Fig. 1(b)],

$$\begin{aligned} |1\rangle &= \frac{\Omega_1}{\sqrt{\Omega_2^2 + \Omega_1^2}} |\Psi_C\rangle + \frac{\Omega_2}{\sqrt{\Omega_2^2 + \Omega_1^2}} |\Psi_{NC}\rangle, \\ |2\rangle &= \frac{\Omega_2}{\sqrt{\Omega_2^2 + \Omega_1^2}} |\Psi_C\rangle - \frac{\Omega_1}{\sqrt{\Omega_2^2 + \Omega_1^2}} |\Psi_{NC}\rangle, \end{aligned} \quad (1)$$

where  $\Omega_1$  and  $\Omega_2$  are the Rabi frequencies for the transitions  $^1S_0 \leftrightarrow ^1P_1$  and  $^3P_0 \leftrightarrow ^1P_1$ . For an ideal 3-level system described in Eq. (1), the dark state  $|\Psi_{NC}\rangle$  remains insensitive to light shift, while the bright state  $|\Psi_C\rangle$  is always coupled to the laser light. A realistic atomic clock has to deal with off-resonant ac Stark shifts acting on  $|\Psi_C\rangle$  while atoms are pumped into  $|\Psi_{NC}\rangle$  with a few spontaneous emission cycles. Thus, a judicious tradeoff between the short-time dynamics for a high-contrast signal (large optical pumping) and the reduced external ac shifts (and resonance power broadenings) under a low field strength needs to be found for practical realizations of these EIT or Raman-type clocks.

To describe our pulsed method, we start from a three-level configuration as shown in Fig. 1(a). The optical Bloch equations (OBEs) describe three-level dynamics including external shifts, relaxations, and decoherences between atomic states [18] in terms of the density matrix:

$$\dot{\rho} = -\frac{i}{\hbar}[H, \rho] + \mathcal{R}\rho. \quad (2)$$

In the interaction picture, the atom-light Hamiltonian  $H$  and relaxation matrix  $\mathcal{R}\rho$  become

$$\begin{aligned} \frac{H}{\hbar} &= \begin{pmatrix} \Delta_1 & 0 & \Omega_1 \\ 0 & \Delta_2 & \Omega_2 \\ \Omega_1 & \Omega_2 & 0 \end{pmatrix}; \\ \mathcal{R}\rho &= \begin{pmatrix} \Gamma_{31}\rho_{33} & -\gamma_c\rho_{12} & -\gamma_{c1}\rho_{13} \\ -\gamma_c\rho_{21} & \Gamma_{32}\rho_{33} & -\gamma_{c2}\rho_{23} \\ -\gamma_{c1}\rho_{31} & -\gamma_{c2}\rho_{32} & -\Gamma\rho_{33} \end{pmatrix}. \end{aligned} \quad (3)$$

The relaxation matrix includes the spontaneous emission rates  $\Gamma = \Gamma_{31} + \Gamma_{32}$ , optical decoherences  $\gamma_{c1}$ ,  $\gamma_{c2}$ , and the Raman decoherence  $\gamma_c$  [see Fig. 1(a)]. Electric and/or magnetic dipole couplings determine the Rabi frequencies  $\Omega_i$  ( $i = 1, 2$ ). Equation (2) describes the dynamics of a closed  $\Lambda$  system where optical detunings  $\Delta_i$  include ac Stark shifts  $\eta_i$  from nonresonant electric-dipole couplings of  $|1\rangle$  and  $|2\rangle$  to other states. For  $\Omega_1, \Omega_2 \lesssim \Gamma_{31}, \Gamma_{32}$ ,  $\gamma_{c1}$ ,  $\gamma_{c2}$ , the population in state  $|3\rangle$  is slaved to the population difference  $\Delta n(t) \equiv \rho_{22}(t) - \rho_{11}(t)$  and Raman coherence  $\rho_{12}(t)$ . This allows finding analytical solutions to Eq. (2) by adiabatic elimination of the intermediate state  $|3\rangle$  [19,20].

The reduced two-level system dynamics are described by a Bloch-vector representation [21,22].

To remove ac Stark shifts while maintaining a high signal contrast, we apply the Ramsey technique for EIT or Raman fields to this effective two-level system, minimizing systematic frequency shifts over the free-evolution time  $T$ . The Ramsey-like sequence of preparation, free-evolution, and probe, followed by the final destructive detection of the ground-state population, is indicated in Fig. 1(c). This eliminates power broadening of the clock transition which is always present for continuous excitation [23]. By solving for the two-level system as in [22] we can express the populations as

$$\begin{aligned} \rho_{ii} &\equiv \alpha_{ii}(\tau, \tau_m) \{1 + \beta_{ii}(\tau, \tau_m) e^{-\gamma_c T} \\ &\quad \times \cos[\delta_r T - \Phi(\tau, \tau_m)]\}, \end{aligned} \quad (4)$$

where  $\alpha_{ii}(\tau, \tau_m)$  is the overall envelope function and  $\beta_{ii}(\tau, \tau_m)$  is the amplitude of fringes, both containing exponential decays  $e^{-\tau/\tau_p}$  and  $e^{-\tau_m/\tau_p}$  to their steady states [21].  $\tau_p$  is the characteristic optical pumping time. The atomic phase shift  $\Phi$  produces an approximated clock frequency shift assuming  $\tau, \tau_m \lesssim T$ :

$$\delta\nu = \frac{\Phi(\tau, \tau_m)}{2\pi T(1 + \frac{\tau + \tau_m}{2T})}, \quad (5)$$

which includes all ac Stark contributions accumulated during the pulsed interactions. Hence, a longer free-evolution time  $T$  reduces the light shifts on the clock transition. Furthermore, as will be shown below, a special value  $(\Delta_0)_m$  of the common detuning  $\Delta_0$  can be found to suppress ac Stark effects on the clock frequency. Study of the population dynamics from Eq. (4) leads to an expression for the time  $\tau_p$  that is required to pump atoms into their final steady state, simplified for  $\Delta_0 \approx \Delta_1 \approx \Delta_2$ :

$$\tau_p(\Delta_0) \approx \frac{2}{\Gamma} \frac{\Delta_0^2 + \Gamma^2/4}{(\Omega_1^2 + \Omega_2^2)} \left[ 1 - Y \left( \frac{\Omega_1^2 - \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \right) \right]^{-1}. \quad (6)$$

Here  $Y = (\Gamma_{31} - \Gamma_{32})/\Gamma$  is the branching ratio difference for the intermediate state which scales the contribution of each Rabi frequency to the pumping rate  $\tau_p^{-1}$ . This time scale  $\tau_p$  sets the EIT or CPT response in either transient or steady states. Previous work on EIT or CPT concentrates mainly on the symmetric case with  $Y = 0$ . But in the case of alkaline earths where  $Y \sim \pm 1$ , Eq. (6) shows that the Rabi frequency associated with the weaker transition dictates  $\tau_p$ . For the  $^{88}\text{Sr}$  lattice clock where  $\Gamma_{31} = 2\pi \times 32 \text{ MHz} \gg \Gamma_{32} = 2\pi \times 620 \text{ Hz}$  (i.e.,  $Y \sim 1$ ), the pumping time at resonance  $\tau_p(0)$  is determined by the magnetic dipole coupling  $\Omega_2$  between  $^3P_0$  and  $^1P_1$ . Figure 2 shows the dependence of  $\tau_p(0)$  on each Rabi frequency while keeping the other one fixed. The dotted lines are the corresponding differential ac Stark shift of the clock frequency in the steady state regime. Note that small ac Stark shifts correspond to long optical pumping times conflicting with realistic clock duty cycles. For instance, the proposal by [10] with ac Stark shift below 21.7 mHz for

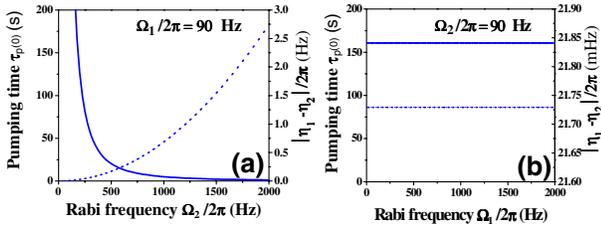


FIG. 2 (color online). Differential ac Stark shifts  $\eta_1 - \eta_2$  (dashed curves) on the  $^1S_0 \leftrightarrow ^3P_0$  clock frequency and the optical pumping time  $\tau_p(\Delta_0 = 0)$  (solid curves) using Eq. (6) vs either (a) magnetic Rabi frequency  $\Omega_2$  or (b) electric Rabi frequency  $\Omega_1$ .

an accuracy of  $2 \times 10^{-17}$  leads to a signal contrast of a few percent only after 160 s. The scheme presented here finds a combination of parameters that maximizes contrast while suppressing ac Stark shifts, exploiting the transient dynamics for short pulses and detuned laser fields. The highly asymmetric Y allows this scheme to uniquely exploit ground-state detection with a high-contrast narrow resonance manifested in the atomic population transfer. In the region of detuning between Raman spectroscopy ( $\Delta_0/\Gamma \gg 1$ ) and EIT/CPT ( $\Delta_0/\Gamma \ll 1$ ), we find contrasts of up to 60%, even though  $\tau \ll \tau_p(\Delta_0) \approx 100$  s. This same approach could be extended easily to the four level scheme [11], the magnetic induced optical transition [6] or any other clock configurations involving dark states.

The small difference between the field-free clock detuning  $\delta_r$  and the ac Stark shifted detuning  $\Delta_1 - \Delta_2 = (\eta_1 - \eta_2) + \delta_r$  under laser fields leads to a small phase shift of the Ramsey-EIT fringe defined by  $\Phi(\tau, \tau_m)$  in Eq. (5) [19,20]. Solving Eq. (2) numerically, we find that a judicious choice of the laser detuning  $(\Delta_0)_m$  cancels the external ac Stark shifts, minimizing the influence to the clock transition when high field strengths are used to rapidly drive EIT resonances. To confirm these results, we also establish an analytical expression for  $\Phi(\tau, \tau_m)$  based on the atomic wave-function formalism [24], using the Hamiltonian of Eq. (3) adding only the term  $-i\Gamma/2$  associated with spontaneous relaxation [25,26] and neglecting all lattice decoherences. By adiabatic elimination of state  $|3\rangle$ , within an effective two-level system including only the clock states  $|1\rangle$  and  $|2\rangle$ , the amplitudes evolve with a matrix  $M$ , generalized from Ref. [27] by assuming  $\Delta_1 \neq \Delta_2$ :

$$M = \begin{pmatrix} \cos\left(\frac{\omega}{2}t\right) + i\frac{\Delta_{\text{eff}}}{\omega} \sin\left(\frac{\omega}{2}t\right) & 2i\frac{\Omega_{\text{eff}}}{\omega} \sin\left(\frac{\omega}{2}t\right) \\ 2i\frac{\Omega_{\text{eff}}}{\omega} \sin\left(\frac{\omega}{2}t\right) & \cos\left(\frac{\omega}{2}t\right) - i\frac{\Delta_{\text{eff}}}{\omega} \sin\left(\frac{\omega}{2}t\right) \end{pmatrix} \equiv \begin{pmatrix} M_+ & M_\dagger \\ M_\dagger & M_- \end{pmatrix}, \quad (7)$$

where  $\omega = (\Delta_{\text{eff}}^2 + 4\Omega_{\text{eff}}^2)^{1/2}$  and  $\Delta_{\text{eff}}$  ( $\Omega_{\text{eff}}$ ) is the complex detuning (Rabi frequency) in the effective two-level system, extending the definitions of [28]:

$$\Delta_{\text{eff}} = \Omega_1^2 \frac{\Delta_1 + i\Gamma/2}{\Delta_1^2 + \Gamma^2/4} - \Omega_2^2 \frac{\Delta_2 + i\Gamma/2}{\Delta_2^2 + \Gamma^2/4} - (\Delta_1 - \Delta_2),$$

$$\Omega_{\text{eff}} = \Omega_1 \Omega_2 \left( \frac{\Delta_1 + i\Gamma/2}{\Delta_1^2 + \Gamma^2/4} \frac{\Delta_2 + i\Gamma/2}{\Delta_2^2 + \Gamma^2/4} \right)^{1/2}. \quad (8)$$

The atomic phase depends not only on the wave-function coefficients of the atomic evolution but also on the steady states included in the closed density matrix equations [29]. However, when short pulses  $\tau$ ,  $\tau_m \ll \tau_p(\Delta_0)$  are applied, stationary solutions can be ignored. For initial conditions  $\rho_{11}(0) = 1$ ,  $\rho_{22}(0) = 0$ , we find an expression for the atomic phase related to the clock frequency shift:

$$\Phi(\tau, \tau_m) \sim \arg \left[ \frac{M_-(\tau_m) M_\dagger(\tau)}{M_\dagger(\tau_m) M_+(\tau)} \right]. \quad (9)$$

We are able to find values of  $(\Delta_0)_m$  where the clock shift is suppressed for different practical choices of Rabi frequencies  $\Omega_i$ . Figure 3(a) plots the clock frequency shift  $[\delta\nu$  as defined in Eq. (5)] versus  $\Delta_0$  under three different cases of  $\tau = \tau_m$ , with  $T = 1$  s and  $\Omega_1/\Omega_2 = 8$ . The dots show numerical results from Eq. (2) and solid curves are analytical results from Eq. (9). Here, we find a nonvanishing  $\delta\nu$  under all conditions. However, as the ratio of  $\Omega_1/\Omega_2$  increases, we do find both approaches give the same value

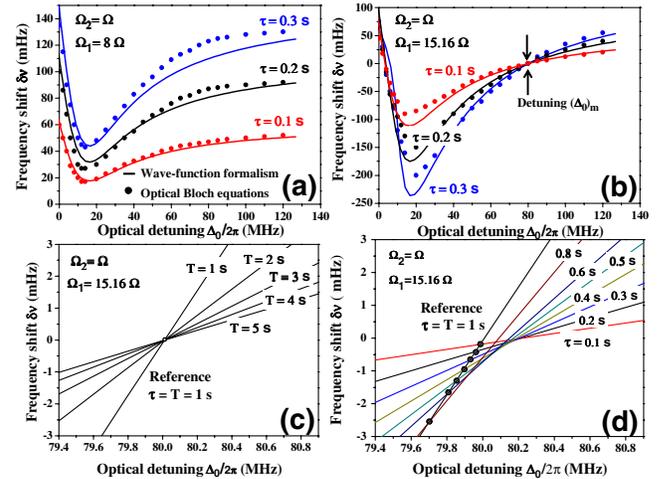


FIG. 3 (color online). Time diluted frequency shift [Eqs. (5) and (9)] arising from off-resonance ac Stark shift contributions to the  $^1S_0 \leftrightarrow ^3P_0$  transition under different optical detunings  $\Delta_0$ . (a) Three different cases of pulse durations  $\tau = \tau_m$  are shown, under  $T = 1$  s and  $\Omega_1/\Omega_2 = 8$ . Numerical calculations based on Eq. (2) (solid dots) agree with analytical results from the wave-function formalism. The pumping time at resonance is  $\tau_p(0) = 5$  s and the common Rabi frequency is  $\Omega = \sqrt{\Gamma/4\tau_p(0)}$ . (b) Same as (a) except  $\Omega_1/\Omega_2 = 15.16$ , showing Stark shift cancellation near  $(\Delta_0)_m = 80$  MHz. (c) A zoomed-in plot of  $\delta\nu$  versus  $\Delta_0$ , with the slope reduced for a longer  $T$ . The location of the common crossing point is  $(\Delta_0)_m$ . (d)  $\delta\nu$  under different  $\tau$  around  $(\Delta_0)_m$ . The crossings (shown as solid dots) between lines indicate that the same  $\delta\nu$  is obtained for different values of  $\tau$ .

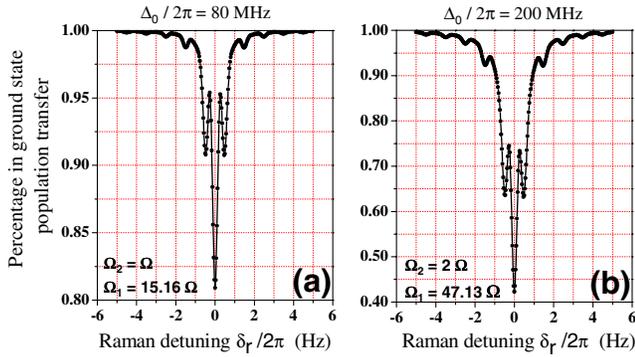


FIG. 4 (color online). Theoretical EIT or Raman line shapes using Eq. (4) for the clock transition  $^1S_0 \leftrightarrow ^3P_0$  and a free-evolution time  $T = 1$  s. (a) Population transfer of 20% under  $\tau_p(80 \text{ MHz}) = 135$  s and (b) population transfer of nearly 60% under  $\tau_p(200 \text{ MHz}) = 200$  s. The actual pulse durations are  $\tau = \tau_m = 1$  s.

of  $(\Delta_0)_m$  where clock shift is suppressed, as indicated in Fig. 3(b). When different free-evolution times ( $T$ ) or pulse durations ( $\tau = \tau_m$ ) are used, the accumulated phase shift changes, leading to variations in the dependence of  $\delta\nu$  on  $\Delta_0$ , as shown in the expanded view of Figs. 3(c) and 3(d). To determine the optimum value of  $(\Delta_0)_m$  for a practical clock realization at  $\tau = 1$  s, we can use two different techniques. First [Fig. 3(c)], extending  $T$  reduces the sensitivity of  $\delta\nu$  on  $\Delta_0$ . Hence, the curves depicting  $\delta\nu$  versus  $\Delta_0$  for different  $T$  rotate around  $(\Delta_0)_m$ , with no changes in the signal contrast. In the second approach [Fig. 3(d)], we find the values of  $\Delta_0$  where  $\delta\nu$  for  $\tau = 1$  s is the same as that for some other values of  $\tau (< 1 \text{ s})$ . These values of  $\Delta_0$  can be plotted as a function of  $\tau$  and extrapolated to  $\tau = 0$  to find  $(\Delta_0)_m$ . However, the signal contrast under smaller  $\tau$  is reduced due to the effect of pulse preparation on population transfer.

From Eq. (4) we find spectral line shapes and transition probabilities as a function of the experimental parameter  $\delta_r$ , shown in Fig. 4(a). Since  $\tau \ll \tau_p(\Delta_0)$ , the two-photon resonance has a Fourier transform linewidth given by the duration  $\tau$  where power broadening effects have been eliminated. The spectra also exhibit the typical coherent Ramsey nutations with period  $\sim 1/2T$  and a central fringe free from systematic shifts. We have also determined the sensitivity of  $\delta\nu$  to laser intensities ( $\Omega_i$ ) and detunings, demonstrating that the uncertainty of the optical clock frequency  $< 5 \text{ mHz}$  ( $\sim 10^{-17}$ ) is achievable by controlling  $\Delta_0$  at the 100 kHz level around  $(\Delta_0)_m$ . Meanwhile,  $\Omega_i$  fluctuations should be controlled  $< 0.5\%$ . We note that for a given set of  $\tau$  and  $\Omega_i$ , different values of  $(\Delta_0)_m$  can be found. For example,  $(\Delta_0)_m = 200 \text{ MHz}$  is another optimum value for larger  $\Omega_i$  [Fig. 4(b)]. In this case, the signal contrast is further improved with a population transfer of up to 60%, leading to enhanced clock stability but also slightly larger uncertainty.

In summary, our method achieves the  $10^{-17}$  accuracy expected for a “light-insensitive” lattice clock with pulsed

EIT or Raman techniques. A signal contrast of 20% to 60% (Fig. 4) can be achieved, including realistic lattice decoherence times [4]. Extensions are possible to the proposal of [11] by replacing the  $^1P_1$  state with  $^3P_1$ , to magnetic field induced optical transitions [6], for other species such as  $^{52}\text{Cr}$  [30], and for nuclear clock transitions [31].

We thank J. Dalibard, T. Ido, T. Zelevinsky, and C. Oates for discussions. This work is supported by ONR, NIST, and NSF. T. Z-W. thanks Observatoire de Paris and Délégation Générale de l’Armement for support.

\*Present address: Laser Cooling and Trapping Group, NIST, Gaithersburg, MD 20899, USA.

Permanent address: Dipartimento di Fisica, Università di Pisa, Italy.

- [1] P. O. Schmidt *et al.*, Science **309**, 749 (2005); H. S. Margolis *et al.*, Science **306**, 1355 (2004); T. Schneider, E. Peik, and C. Tamm, Phys. Rev. Lett. **94**, 230801 (2005); P. Dube *et al.*, Phys. Rev. Lett. **95**, 033001 (2005).
- [2] U. Sterr *et al.*, C.R. Physique **5**, 845 (2004); F. Ruschewitz *et al.*, Phys. Rev. Lett. **80**, 3173 (1998); T. Ido *et al.*, Phys. Rev. Lett. **94**, 153001 (2005).
- [3] M. Takamoto *et al.*, Nature (London) **435**, 321 (2005).
- [4] A. Ludlow *et al.*, Phys. Rev. Lett. **96**, 033003 (2006).
- [5] R. Le Targat *et al.*, Phys. Rev. Lett. **97**, 130801 (2006).
- [6] Z. W. Barber *et al.*, Phys. Rev. Lett. **96**, 083002 (2006).
- [7] M. M. Boyd *et al.*, Science **314**, 1430 (2006).
- [8] S. Bize *et al.*, J. Phys. B **38**, S449 (2005); T. P. Heavner *et al.*, Metrologia **42**, 411 (2005).
- [9] H. Katori *et al.*, Phys. Rev. Lett. **91**, 173005 (2003).
- [10] R. Santra *et al.*, Phys. Rev. Lett. **94**, 173002 (2005).
- [11] T. Hong *et al.*, Phys. Rev. Lett. **94**, 050801 (2005).
- [12] H. Häffner *et al.*, Phys. Rev. Lett. **90**, 143602 (2003).
- [13] J. A. Sherman *et al.*, Phys. Rev. Lett. **94**, 243001 (2005).
- [14] A. Bruschi *et al.*, Phys. Rev. Lett. **96**, 103003 (2006).
- [15] M. Fleischhauer, A. Imamoglu, and J. P. Marangos, Rev. Mod. Phys. **77**, 633 (2005).
- [16] P. Knight, Nature (London) **297**, 16 (1982).
- [17] E. Arimondo, Prog. Opt. **35**, 257 (1996).
- [18] R. Santra, K. V. Christ, and C. H. Greene, Phys. Rev. A **69**, 042510 (2004).
- [19] P. R. Hemmer *et al.*, J. Opt. Soc. Am. B **6**, 1519 (1989).
- [20] S. M. Shahriar *et al.*, Phys. Rev. A **55**, 2272 (1997).
- [21] E. T. Jaynes, Phys. Rev. **98**, 1099 (1955).
- [22] R. L. Schoemaker, in *Laser and Coherence Spectroscopy*, edited by J. I. Steinfeld (Plenum Press, New York, 1978), p. 197.
- [23] T. Zanon *et al.*, Phys. Rev. Lett. **94**, 193002 (2005).
- [24] J. Dalibard, Y. Castin, and K. Mølmer, Phys. Rev. Lett. **68**, 580 (1992).
- [25] P. M. Radmore and P. L. Knight, J. Phys. B **15**, 561 (1982).
- [26] Y. Stalgies *et al.*, J. Opt. Soc. Am. B **15**, 2505 (1998).
- [27] T. Zanon *et al.*, IEEE Trans. Instrum. Meas. **54**, 776 (2005).
- [28] K. Moler, D. S. Weiss, M. Kasevich, and S. Chu, Phys. Rev. A **45**, 342 (1992).
- [29] G. Orriols, Nuovo Cimento B **53**, 1 (1979).
- [30] A. S. Bell *et al.*, Europhys. Lett. **45**, 156 (1999).
- [31] E. Peik and C. Tamm, Europhys. Lett. **61**, 181 (2003).

## High Contrast Ramsey Fringes with Coherent-Population-Trapping Pulses in a Double Lambda Atomic System

T. Zanon, S. Guerandel, E. de Clercq, D. Holleville, N. Dimarcq, and A. Clairon

*SYRTE, Observatoire de Paris, 61 Avenue de l'Observatoire, 75014 Paris, France*

(Received 6 January 2005; published 17 May 2005)

We report the observation of Raman-Ramsey fringes using a double lambda scheme creating coherent population trapping in an atomic ensemble combined with pulsed optical radiations. The observation was made in a Cs vapor mixed with N<sub>2</sub> buffer gas in a closed cell. The double lambda scheme is created with lin ⊥ lin polarized laser beams leading to higher contrast than the usual simple lambda scheme. The pulsed trapping technique leads to narrow fringe widths scaling as 1/(2T) with high contrasts which are no longer limited by the saturation effect. This technique operates in a different way from the classical Ramsey sequence: the signal is done by applying a long trapping pulse to prepare the atomic state superposition, and fringe detection is accomplished by optical transmission during a short second trapping pulse without any perturbation of the dark state.

DOI: 10.1103/PhysRevLett.94.193002

PACS numbers: 32.80.Qk, 06.30.Ft, 32.80.Wr

Continuous stimulated Raman resonant excitation [coherent population trapping (CPT)] [1–4] in vapor cells with buffer gas has been investigated in several groups for many years in view of application to atomic clocks. Continuous CPT interrogation techniques have led to narrow linewidths down to 50–25 Hz [5,6] and relative clock frequency stability as low as  $1.3 \times 10^{-12}$  for 1 s integration time with detection of the transmitted light [7] and  $3.2 \times 10^{-12}$  at 1 s for the CPT maser detecting the hyperfine coherence in a microwave cavity [8].

Fundamental limitations for achieving very narrow atomic lines in these experiments come from saturation and optical pumping effects. In a continuous interrogation, the saturation intensity is very weak ( $\sim 1 \mu\text{W}/\text{cm}^2$ ). As a consequence, the low laser intensity required to avoid CPT line broadening leads to a poor signal-to-noise ratio. Circularly polarized coherent radiation realizes the optical  $\Lambda$  scheme connecting two ground states  $|F, m_F = 0\rangle \equiv |1\rangle$ ,  $|F' = F + 1, m_F = 0\rangle \equiv |2\rangle$  called clock states and an excited state  $|F_e, m_{F_e}\rangle \equiv |3\rangle$  as shown on Fig. 1 (left). On resonance, they create the dark state, which is a particular superposition of the ground states. According to polarized light helicity, two different  $\Lambda$  schemes can be realized with  $|F_e, m_{F_e} = -1\rangle \equiv |3\rangle$  or  $|F_e, m_{F_e} = +1\rangle \equiv |4\rangle$ . For typical values of the static magnetic field ( $\sim 10 \mu\text{T}$ ), the Zeeman splitting between these two upper levels is small ( $\sim 25 \text{ kHz}$ ) compared to their width which is broadened by collisions in the buffer gas ( $\sim 625 \text{ MHz}$ ) and makes these levels degenerate. The buffer gas confines the atoms in a region smaller than the microwave excitation field wavelength (Dicke regime [9]) canceling the transit time and Doppler broadening. Such  $\Lambda$  schemes are not closed systems: because of optical pumping effects, there is leakage of atoms towards the extreme Zeeman sublevels reducing the number of atoms trapped in the dark state and therefore the contrast of the CPT line. The effect of optical

pumping can be reduced by using a double lambda scheme [10,11]. The idea is based on optically pumping the maximum number of atoms into the dark state out of any other trap state. Ideally, the double lambda scheme consists of two phase-coherent monochromatic beams tuned to optical transitions sharing a common excited level, with a frequency difference equal to the 0-0 resonance frequency. If the beams are parallel to the Zeeman field, with orthogonal linear polarizations, then  $\sigma^+$  and  $\sigma^-$  transitions are excited, which is our situation [12] described in Fig. 1 (right) where both laser fields  $\mathbf{E}_1$  orthogonal to  $\mathbf{E}_2$  are tuned, respectively, to the transitions  $|1\rangle \leftrightarrow |3\rangle, |4\rangle$  and  $|2\rangle \leftrightarrow |3\rangle, |4\rangle$ . Equivalent conditions of optical pumping with two waves  $\sigma^+$  and  $\sigma^-$  have been studied independently in other groups, by using alternating circular polarizations allowing push-pull optical pumping [11] or orthogonal circular polarizations with counterpropagating

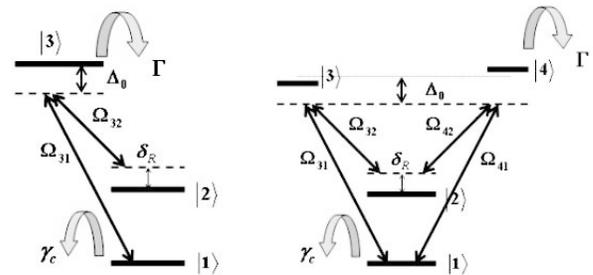


FIG. 1. Three level (simple lambda scheme) and four level (double lambda scheme) systems under two coherent laser fields excitation.  $\delta_R$  is the Raman detuning and  $\Delta_0$  is the optical detuning.  $\Omega_{i,j}$  with ( $i = 3, 4$ ) and ( $j = 1, 2$ ) are the Rabi angular frequencies corresponding to the various possible transitions. As mentioned in the text,  $|3\rangle \equiv |F_e, -1\rangle$  and  $|4\rangle \equiv |F_e, +1\rangle$  are Zeeman sublevels of the same excited hyperfine level.  $\Gamma$  is the decay rate modified by collisions and  $\gamma_c$  is the relaxation rate of the hyperfine coherence due to buffer gas.

waves [13]. If the two laser polarizations are parallel, the CPT phenomenon cannot be observed [14] because the superposition of states for one  $\Lambda$  scheme is orthogonal to the other.

The interaction operator between the atoms and the laser fields is  $\mathbf{V} = -\mathbf{D} \cdot (\mathbf{E}_1 + \mathbf{E}_2)$ , where  $\mathbf{D}$  is the electric dipole moment. In the rotating frame, the secular approximation leads to the following simplified expression of the interaction operator:

$$\tilde{\mathbf{V}} = \frac{\hbar}{2\sqrt{2}} \{-\Omega_{41}|4\rangle\langle 1| + i\Omega_{42}|4\rangle\langle 2| + \Omega_{31}|3\rangle\langle 1| + i\Omega_{32}|3\rangle\langle 2| + \text{H.c.}\} \quad (1)$$

with the Rabi angular frequency  $\Omega_{ij} = -\langle i|\mathbf{D}|j\rangle E_j/\hbar$ . The Clebsch-Gordan coefficients for the CPT resonance of the  $D_1$  line in alkali atoms are such that for the clock transition  $|1\rangle \leftrightarrow |2\rangle$ :

$$\frac{\Omega_{42}}{\Omega_{41}} = -\frac{\Omega_{32}}{\Omega_{31}}. \quad (2)$$

The dark state  $|\Psi_{\text{NC}}\rangle$  is not coupled to the laser fields according to  $\tilde{\mathbf{V}}|\Psi_{\text{NC}}\rangle = 0$ . Using Eqs. (1) and (2), its expression is then

$$|\Psi_{\text{NC}}\rangle = \frac{\Omega_{42}}{\sqrt{\Omega_{42}^2 + \Omega_{41}^2}}|1\rangle - i\frac{\Omega_{41}}{\sqrt{\Omega_{42}^2 + \Omega_{41}^2}}|2\rangle. \quad (3)$$

This particular superposition of states is dark for both excited states  $|3\rangle$  and  $|4\rangle$  due to Eq. (2). A similar relation is quoted in [15]. For the Zeeman sublevels  $m_F \neq 0$ , the state superposition can be seen as a double  $\Lambda$  scheme with a low leakage. In order to test this particular dark state, we have developed, in our experiment, coherent laser fields produced by two extended cavity laser diodes tuned to the

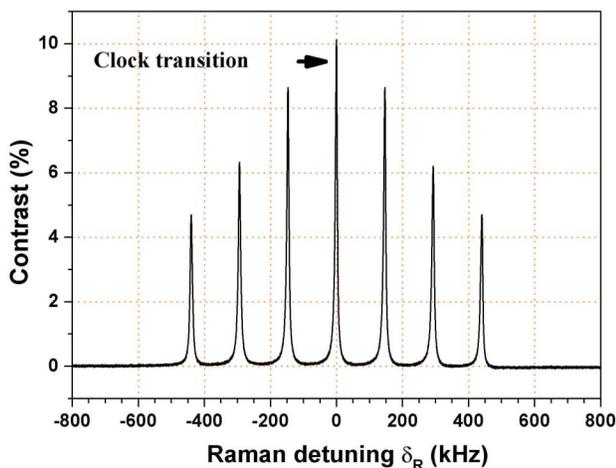


FIG. 2 (color online). Experimental CPT transitions observed in a 20  $\mu\text{T}$  static magnetic field using orthogonal laser polarizations. With total intensity  $\sim 1 \text{ mW}/\text{cm}^2$ , the linewidth is  $\sim 12 \text{ kHz}$ .

Cs  $D_1$  line and phase locked with a frequency difference tunable around 9.192 GHz. Figure 2 shows the Zeeman spectrum detected through a 5 cm long cell filled with Cs and  $\text{N}_2$  buffer gas at 23 Torr. The laser beams diameter is 15 mm. The “contrast” is defined as the on-resonance increase of the photodiode signal divided by the off-resonance signal. The photodiode signal is proportional to the laser intensity transmitted through the cell. The seven CPT resonances between the Zeeman sublevels  $|3, m_F\rangle \leftrightarrow |4, m_F\rangle$  allowed by our double  $\Lambda$  scheme are observed. The peak amplitudes are symmetric around the  $|F=3, m_F=0\rangle \leftrightarrow |F=4, m_F=0\rangle$  clock transition, contrary to what is observed with a single  $\Lambda$  excitation. Experimental CPT line shapes observed with continuous interrogation are well described by solving the optical Bloch equations applied only to a closed three level system [2]. With this model, we can derive an analytical expression of the CPT signal linewidth:

$$\Delta\omega = \frac{2\gamma_c}{\sqrt{1+S}} \sqrt{\left(1 + 3S + \frac{\Gamma}{\gamma_c} S^*\right) \left(1 + \frac{\Gamma}{\gamma_c} S^*\right)}, \quad (4)$$

where  $\gamma_c/2\pi \sim 30 \text{ Hz}$  is the decay rate of the hyperfine coherence due to collisions with buffer gas,  $\Gamma$  is the excited state relaxation term,  $\Gamma/2\pi \sim 625 \text{ MHz}$ . In Eq. (4), we retrieve the classical saturation parameter  $S$  coming from the rate equations and the CPT saturation parameter  $S^*\Gamma/\gamma_c$  with

$$S = \frac{\Omega_1^2 \Omega_2^2}{(\Omega_1^2 + \Omega_2^2)\Gamma^2/4}, \quad S^* = \frac{(\Omega_1/2)^2 + (\Omega_2/2)^2}{\Gamma^2}, \quad (5)$$

where  $\Omega_1$  and  $\Omega_2$  are the Rabi angular frequencies associated with the optical coupling between the two ground states and the intermediate excited state. Since  $S \ll 1$  and  $\Gamma/\gamma_c \gg 1$ , then from Eq. (4) the linewidth linearly scales as  $S^*$ , which was experimentally observed [2,4]. The light intensities needed to produce CPT resonances with high signal-to-noise ratios cause substantial broadening of the CPT resonances. This drawback can be circumvented by using the Ramsey method of two oscillatory separated fields.

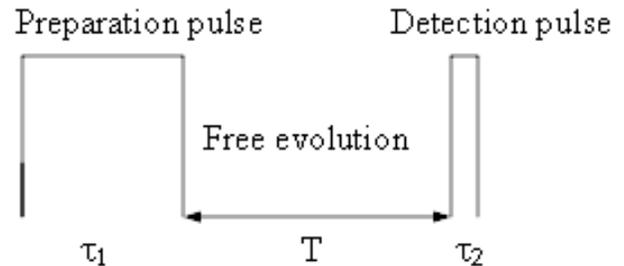


FIG. 3. Raman-Ramsey pulse sequence with duration  $\tau_1$  for the first pulse and  $\tau_2$  for the second pulse.  $T$  is the free evolution time of the Raman coherence between the two pulses.

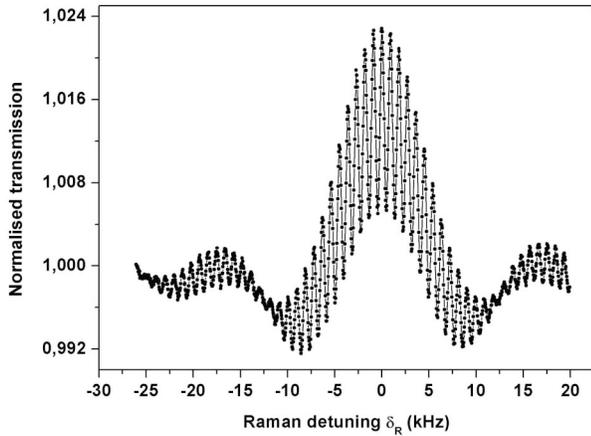


FIG. 4. Experimental Raman-Ramsey fringes with total intensity  $\sim 100 \mu\text{W}/\text{cm}^2$ . The first pulse duration is  $\tau_1 = 80 \mu\text{s}$  and the second pulse duration is  $\tau_2 = 80 \mu\text{s}$ ; 8 average scan.

Historically, coherent pulses were first used to produce Raman-Ramsey fringes with a thermal Na beam interacting with two spatially separated CPT laser fields and realizing the first atomic Raman clock [16]. Raman-Ramsey fringe widths were dependent only on the transit time  $T$  between the two interaction zones as  $1/(2T)$ . The fringes were observed by detecting the fluorescence of the beam in the second interaction zone, i.e., the population of the excited state during the second pulse. This is different from the usual Ramsey fringes where the population of one atomic state is measured after the end of the second interaction zone. In our experiment, the same idea is applied in the time domain. Atoms in a vapor cell are interrogated with a CPT pulse sequence as in Fig. 3. The light pulse durations are controlled by an acousto-optic modulator. The detection technique allows a real time measurement of the optical coherence during the two

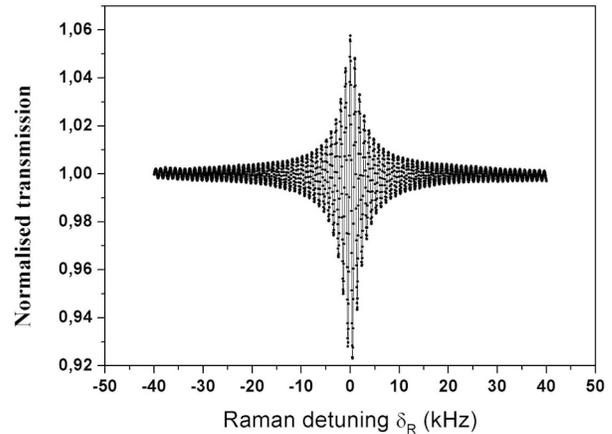


FIG. 6. Experimental saturated Raman-Ramsey fringes with total intensity  $\sim 500 \mu\text{W}/\text{cm}^2$ . The first pulse duration is  $\tau_1 = 5 \text{ms}$  and the second pulse duration is  $\tau_2 = 5 \mu\text{s}$ ; 8 average scan.

pulses, without perturbing the coherent process. Moreover, it does not require any difference of population prior to the application of the pulses.

Figures 4–6 show experimental records of the normalized transmission (peak valley of the central fringe divided by the signal level at large Raman detuning) versus the Raman detuning  $\delta_R$ . Laser fields are optically resonant ( $\Delta_0 \sim 0$ ), and the pulses are separated by  $T = 1 \text{ms}$ . In Fig. 4, the interaction sequence is similar to the usual Ramsey sequence ( $\tau_1 = \tau_2 = 80 \mu\text{s}$ ) where the atomic system is never saturated, excited with low laser intensity and short interaction times. The Rabi resonance line shape (full width 12.5 kHz) is modulated by the Raman-Ramsey fringes. As expected for  $T = 1 \text{ms}$ , the width of the central fringe is  $1/(2T) = 500 \text{Hz}$ , in good agreement with a simple wave function formalism [12]. Figures 5 and 6

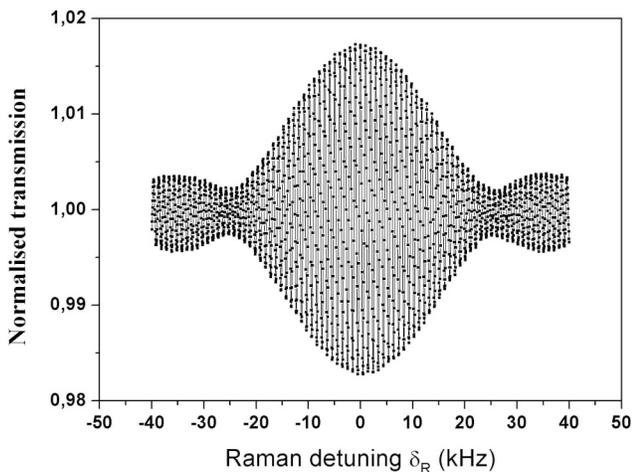


FIG. 5. Experimental Raman-Ramsey fringes with total intensity  $\sim 500 \mu\text{W}/\text{cm}^2$ . The first pulse duration is  $\tau_1 = 40 \mu\text{s}$  and the second pulse duration is  $\tau_2 = 5 \mu\text{s}$ ; 8 average scan.

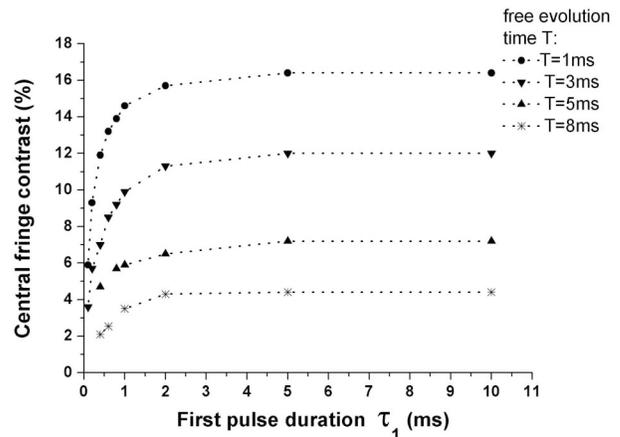


FIG. 7. Central fringe contrast versus the first pulse duration  $\tau_1$  for different values of the free evolution time  $T$ . The second pulse duration is constant  $\tau_2 = 5 \mu\text{s}$ . The total intensity is  $\sim 500 \mu\text{W}/\text{cm}^2$ .

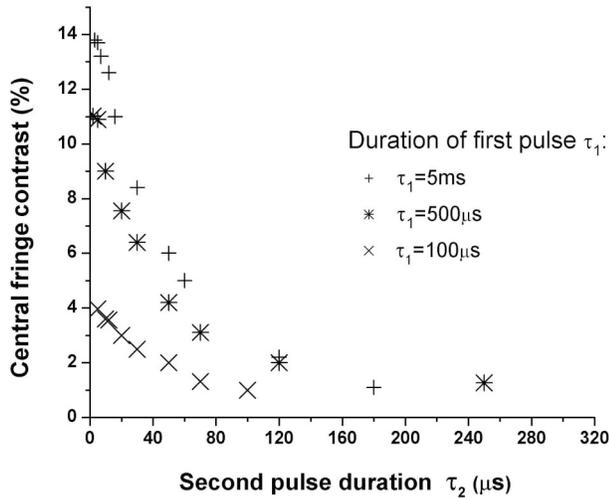


FIG. 8. Central fringe contrast versus the second pulse duration  $\tau_2$  for different  $\tau_1$  values. The free evolution time is constant  $T = 1$  ms and the total intensity is  $\sim 500 \mu\text{W}/\text{cm}^2$ .

show that the fringe contrast increases as the Rabi envelope reaches its stationary profile. For the same laser intensities, the contrast increases from 4% with  $\tau_1 = 40 \mu\text{s}$  in Fig. 5 to about 14% with  $\tau_1 = 5$  ms in Fig. 6. Note that the central fringe 425 Hz wide is not broadened by saturation. Under a continuous excitation, the same laser intensities would lead to a linewidth as large as 6 kHz corresponding to the envelope width given by Eq. (4). Our typical Raman-Ramsey sequence differs from the usual Ramsey interrogation by several points. The role of the first interaction is to trap atomic population into the states superposition  $|\Psi_{\text{NC}}\rangle$ . This is done when the pulse duration  $\tau_1$  and the parameter  $S^*$  are high enough (Fig. 7). Since the dynamical evolution is driven by  $\exp[-2\Gamma S^* t]$ , the characteristic time for the dark state  $|\Psi_{\text{NC}}\rangle$  to reach its asymptotic value is about  $200 \mu\text{s}$  in our case. If the pulse  $\tau_2$  is small enough ( $\sim 1 \mu\text{s}$ ), the relaxation of the Raman coherence under collisions and saturation effects can be neglected during the detection pulse. Thus, the fringe contrast obtained with a short detection pulse ( $\tau_2 = 5 \mu\text{s}$ ) depends only on  $\tau_1$  and  $T$  as shown in Fig. 7. When the free evolution time is increased, the central fringe narrows as  $1/(2T)$  while the contrast decreases as  $\exp[-\gamma_c T]$ . Figure 8 gives the fringe contrast versus the second pulse duration. If  $\tau_2$  is too long, the steady state is reached again and the fringes vanish. The optimum contrast for a typical Raman-Ramsey sequence is obtained for  $\tau_1 \gg 1/(2\Gamma S^*) \gg \tau_2$ .

We have shown that a double lambda scheme, reducing optical pumping effects which are detrimental for the CPT line contrast, can be simply implemented using two crossed linearly polarized lasers. The possibility to get narrow resonance lines with high signal amplitude using the Ramsey method is also demonstrated. The width of the fringes are then limited only by the free evolution time  $T$  between the two pulses. These Raman-Ramsey fringes,

obtained without any atomic state preparation, are not equivalent to the usual Ramsey fringes. The contrast optimization requires a long preparation pulse and a short detection pulse. High contrast narrow Raman-Ramsey fringes with a double  $\Lambda$  configuration could open the way to high sensitive magnetometers [17,18] or to high stability clocks in the microwave or optical domain. They could also be applied in experiments using electromagnetically induced transparency (EIT) [19].

We are pleased to acknowledge J. Vanier and W. Happer for helpful discussions and encouragements. We address special thanks to the electronics group at BNM-SYRTE for help and advice on the experiments. This research was supported by DGA and CNES.

- [1] R.G. Brewer and E.L. Hahn, Phys. Rev. A **11**, 1641 (1975).
- [2] G. Orriols, Nuovo Cimento Soc. Ital. Fis. B **53**, 1 (1979).
- [3] P.M. Radmore and P.L. Knight, J. Phys. B **15**, 561 (1982).
- [4] J. Vanier, A. Godone, and F. Levi, Phys. Rev. A **58**, 2345 (1998).
- [5] S. Brandt, A. Nagel, R. Wynands, and D. Meschede, Phys. Rev. A **56**, R1063 (1997).
- [6] M. Merimaa, T. Lindvall, I. Tittonen, and E. Ikonen, J. Opt. Soc. Am. B **20**, 273 (2003).
- [7] M. Zhu and L.S. Cutler, in *Proceedings of the 32nd Annual Precise Time and Time Interval Systems and Applications Meeting, 2000, Reston, Virginia* (United States Naval Observatory, Reston, VA, 2000).
- [8] A. Godone, F. Levi, S. Micalizio, and C. Calosso, Phys. Rev. A **70**, 012508 (2004).
- [9] R.H. Dicke, Phys. Rev. **89**, 472 (1953).
- [10] L. Windholz, Phys. Scr. **T95**, 81 (2001).
- [11] Y.-Y. Jau, E. Miron, A.B. Post, N.N. Kuzma, and W. Happer, Phys. Rev. Lett. **93**, 160802 (2004).
- [12] T. Zanon, S. Guerandel, E. de Clercq, D. Holleville, N. Dimarcq, and A. Clairon, in *Proceedings of the 18th European Frequency and Time Forum, University of Surrey, Guildford, UK* (IEE, London, 2004).
- [13] A.V. Taichenachev, V.I. Yudin, V.L. Velichansky, S.V. Kargapol'tsev, R. Wynands, J. Kitching, and L. Hollberg, JETP Lett. **80**, 236 (2004).
- [14] F. Levi, A. Godone, J. Vanier, S. Micalizio, and G. Modugno, Eur. Phys. J. D **12**, 53 (2000).
- [15] E.A. Korsunsky and D.V. Kosachiov, Phys. Rev. A **60**, 4996 (1999).
- [16] J.E. Thomas, P.R. Hemmer, S. Ezekiel, C.C. Leiby, Jr., R.H. Picard, and C.R. Willis, Phys. Rev. Lett. **48**, 867 (1982).
- [17] A.V. Taichenachev, A.M. Tumaikin, and V.I. Yudin, CLEO/QELS'2001, Baltimore, MD, Advance Program, QMPG2.
- [18] M. Stahler, S. Knappe, C. Affolderbach, W. Kemp, and R. Wynands, Europhys. Lett. **54**, 323 (2001).
- [19] S.E. Harris and L.V. Hau, Phys. Rev. Lett. **82**, 4611 (1999).

# Observation of Raman–Ramsey Fringes With Optical CPT Pulses

Thomas Zanon, Stéphane Trémine, Stéphane Guérandel, Emeric de Clercq, David Holleville, Noël Dimarcq, and André Clairon

**Abstract**—The Ramsey method has been applied by means of optical coherent population trapping (CPT) pulses through a cesium vapor cell with N<sub>2</sub> buffer gas at room temperature, using two phase-locked lasers. With this method, CPT resonance spectral widths are no longer limited by optical saturation and collision effects, but only depend on free evolution time between the two pulses. A fringe width below 100 Hz is reported. Experimental Raman–Ramsey fringes are analyzed using the classical wavefunction formalism.

**Index Terms**—Coherent population trapping (CPT), Lamb–Dicke regime, optical coherence, Ramsey fringes.

## I. INTRODUCTION

COHERENT population trapping (CPT) or resonant Raman interaction is a well known effect already used to produce narrow atomic resonances below 100 Hz in a three level system with a buffer gas [1], [2]. The method of interrogation usually involves continuous excitation of the two ground states defining the Raman transition coupled to a common excited state by two coherent laser fields (Fig. 1). Interference between amplitudes of transition in the two optical pumping channels cancels both fluorescence and absorption when the Raman resonance condition  $\delta_R = 0$  is fulfilled. The atom-laser interaction in this three-level system is well described by the optical Bloch equations. The CPT linewidth (FWHM)  $\Delta\nu$  given by the stationary solution of this system is, at optical resonance

$$2\pi\Delta\nu = \frac{2\gamma_c}{\sqrt{1+S}} \sqrt{\left(1 + 3S + \frac{\Gamma}{\gamma_c} S^*\right) \left(1 + \frac{\Gamma}{\gamma_c} S^*\right)} \quad (1)$$

where  $\gamma_c$  is the hyperfine coherence relaxation in the buffer gas,  $\Gamma = 2\pi \times 625$  MHz is the relaxation due to spontaneous emission broadened by collisions with the buffer gas.  $S$  and  $S^*$  are two saturation parameters driving the transitions  $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$  and  $|2\rangle \rightarrow |3\rangle$

$$S = \frac{\Omega_1^2 \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \frac{1}{\Gamma^2}, \quad S^* = \frac{\left(\frac{\Omega_1}{2}\right)^2 + \left(\frac{\Omega_2}{2}\right)^2}{\Gamma^2} \quad (2)$$

where  $\Omega_1$  and  $\Omega_2$  are the Rabi angular frequencies given by  $\Omega^2 = 4.937 \times 10^{14} I_L$  per beam tuned to the D1 line at 894 nm

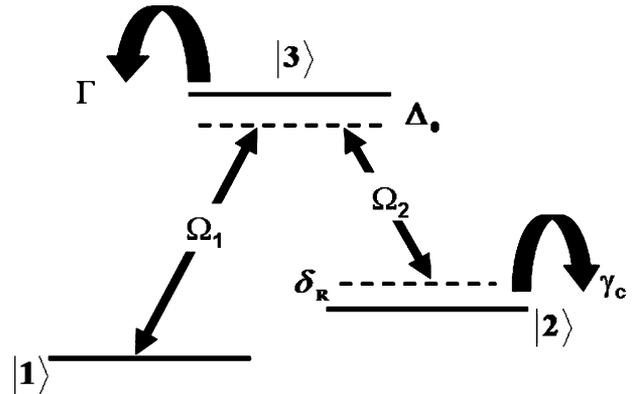


Fig. 1. Three-level system under two coherent laser fields excitation for CPT with  $\Omega_1$  and  $\Omega_2$  Rabi angular frequencies.  $\Delta_0$  is the common optical detuning and  $\delta_R$  is the Raman detuning.  $\Gamma$  and  $\gamma_c$  are respectively spontaneous emission and hyperfine coherence relaxation terms.

in cesium, with intensity  $I_L$  expressed in mW/cm<sup>2</sup>. Note that  $S$  is the Einstein saturation parameter coming from the classical rate equations.

The possibility of using continuous CPT beams to observe narrow resonances below 500 Hz used for metrology was already demonstrated by several groups [2], [3]. For an intensity lower than 100 nW/cm<sup>2</sup>, CPT signals are mainly broadened by the finite relaxation rate  $\gamma_c$  of the hyperfine coherence due to the buffer gas but with poor signal-to-noise ratio. An alternative method to overcome the saturation limitation given by (1) is to generate optical CPT pulses to observe Ramsey fringes mainly limited by the interrogation time  $T$  [4], [5].

In the first part of this paper, we present the experimental setup and the experimental results. In the second part, we analyze the experimental fringes with the assumption that the pulses are sufficiently short to use the wavefunction formalism.

## II. EXPERIMENT

### A. Experimental Setup

In order to pump the populations in the dark state, we generate two coherent laser beams with a frequency offset equal to 9.192 GHz, the cesium clock transition frequency. This transition can also be excited by direct diode current modulation or external electrooptic phase or frequency modulation. In our experiment, two extended cavity laser diodes at 894 nm are spectrally narrowed below 100 kHz. They provide about 10 mW of optical power. Phase-locked lasers are ideal for producing two optical frequencies only, without other sidebands that generate

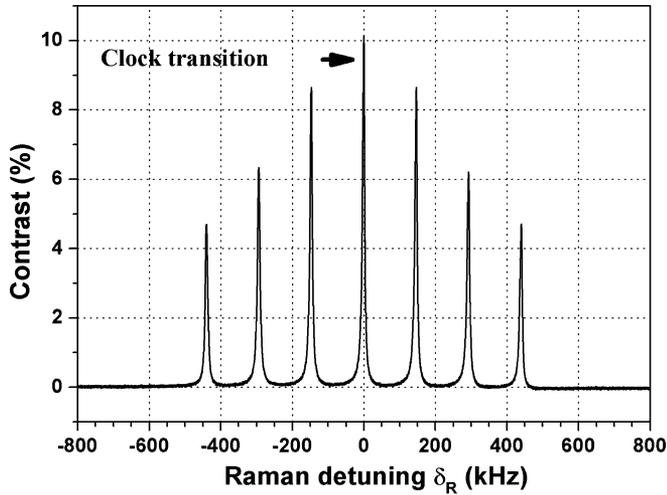


Fig. 2. Experimental CPT transitions observed in a  $20 \mu\text{T}$  static magnetic field using orthogonal laser polarizations.

distortion and frequency shifts on the CPT resonance. The master laser is frequency locked to the  $6S_{1/2}, F = 4 \leftrightarrow 6P_{1/2}, F' = 3$  D1 line by saturated absorption in a vapor cell. The slave laser is phase locked to the master with a tunable frequency offset.

The cesium cell, 50 mm long, 25 mm in diameter, is filled with  $\text{N}_2$  buffer gas at 23 Torr which cancels the first order Doppler broadening (Lamb-Dicke regime) and increases the atomic transit time in the light beams. A solenoid produces an axial magnetic field of about  $20 \mu\text{T}$ , parallel to the laser beams. With orthogonal linear polarizations realizing a double  $\Lambda$  scheme, we enhance the contrast of the seven CPT transitions. In order to generate the coherent pulses, a computer controlled acousto-optic modulator (AOM) simultaneously switches the laser beams. Optical power transmitted through the gas cell are then detected by a photodiode.

### B. Experimental Results

First, we have carried out a continuous interrogation to detect the seven CPT transitions between Zeeman sublevels (Fig. 2). The clock transition is the  $|1\rangle \equiv |F = 3, m_f = 0\rangle \leftrightarrow |2\rangle \equiv |F = 4, m_f = 0\rangle$  transition.

We have studied the linewidth dependence  $\Delta\nu$  versus laser intensity. The linear fit by (1) clearly shows the effect of the saturation (Fig. 3). By extrapolation to zero intensity, the residual linewidth due to collisions with the buffer gas is estimated to be  $\Delta\nu = \gamma_c/\pi \approx 40 \text{ Hz} \pm 20 \text{ Hz}$ .

Then, we have observed CPT resonances with two optical pulses separated with different interrogation times starting from  $T = 1 \text{ ms}$  to  $T = 10 \text{ ms}$  (Ramsey method). The transmitted light power was recorded during the first and the second pulse for different Raman detuning  $\delta_R$  which is the laser frequency difference minus the  $|1\rangle - |2\rangle$  transition frequency. Experimentally, a typical interrogation sequence was performed with  $\Omega_1 \sim \Omega_2 \approx 2\pi \times 5 \text{ kHz}$ , with  $\tau = 80 \mu\text{s}$  pulsewidth and a free evolution time  $T = 1 \text{ ms}$ . Unlike usual Ramsey fringes

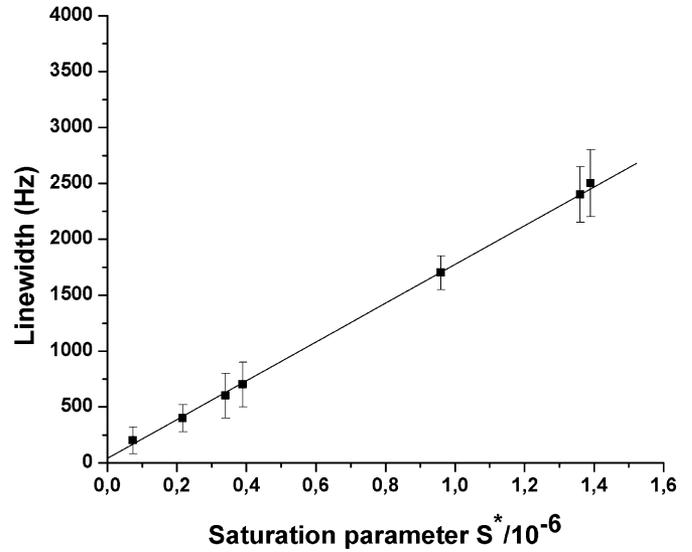


Fig. 3. CPT resonance linewidth versus saturation parameter  $S^*$ .

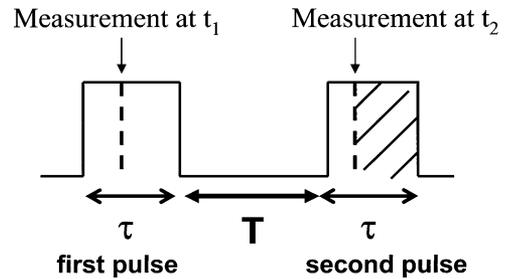


Fig. 4. Principle of a measurement sequence.

detection, we can detect the signal during the coherent process without disturbing it. Such a method allows us to study the evolution of the fringes versus the time. The background signal can be cancelled by subtracting the signal amplitude  $V_{\text{exp}}(t_1)$  recorded during the first pulse to the signal amplitude  $V_{\text{exp}}(t_2)$  recorded during the second pulse, keeping only the modulation of the transmitted light (Fig. 4). The experimental curves given in Fig. 5(a) and (c) are obtained with the same photodiode, the same amplifier, and the same laser intensities. The linewidth of the central Ramsey fringe now is  $\Delta\nu \approx 1/2T = 500 \text{ Hz}$ . Oscillations are present during each laser pulse, which means that if we change the reading time  $t_1$  for  $V(t_1)$  on first pulse or  $t_2$  for  $V(t_2)$  on the second pulse, we also change the amplitude of the oscillations and modify the lineshape of the fringes [Fig. 5(c) and (d)].

We then apply a sequence with  $\tau = 5 \text{ ms}$ ,  $T = 8 \text{ ms}$  and  $\Omega_1 \sim \Omega_2 \approx 2\pi \times 400 \text{ kHz}$ . The measured fringe width is about  $63 \text{ Hz}$  (Fig. 6). In this case, the effect of the stationary solution has to be taken into account in evaluating the fringes line shapes due to strong saturation. On the contrary, at weak saturation (short pulses and low intensities), the atom-field dynamical evolution can be described by a pure hamiltonian in the interaction picture with additive loss terms representing leaks from the ideal three-level system.

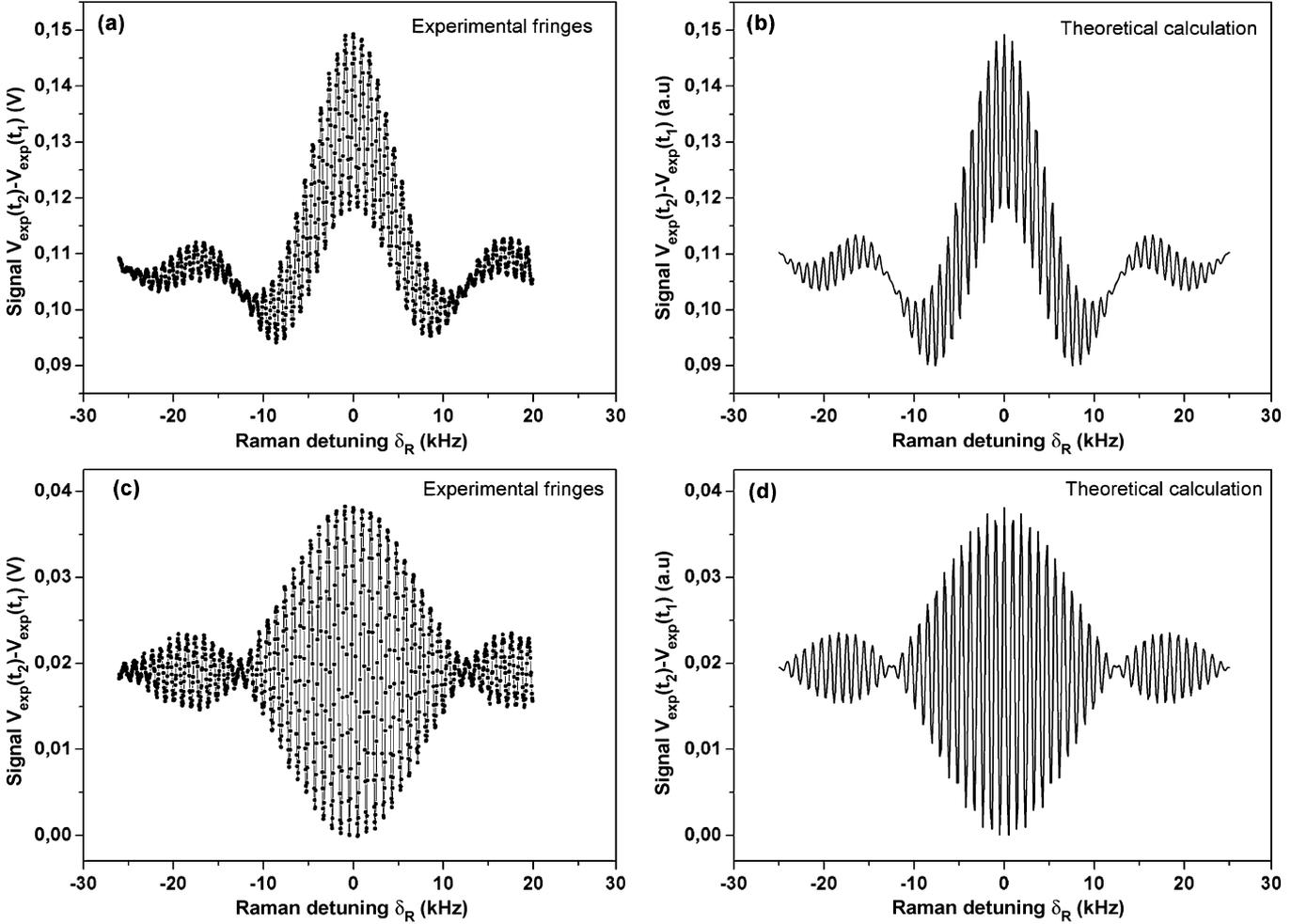


Fig. 5. Experimental (a), (c) and theoretical (b), (d) Raman-Ramsey fringes for  $\tau = 80 \mu\text{s}$  and  $\Omega_1 \approx \Omega_2 = 2\pi \times 175 \text{ kHz}$ . In (a) and (b), clock signal is extracted at  $t_1 = 12 \mu\text{s}$  and  $t_2 = 80 \mu\text{s}$ . In (c) and (d), the signal is extracted at  $t_1 = t_2 = 12 \mu\text{s}$  (each curve is an average over eight scans).

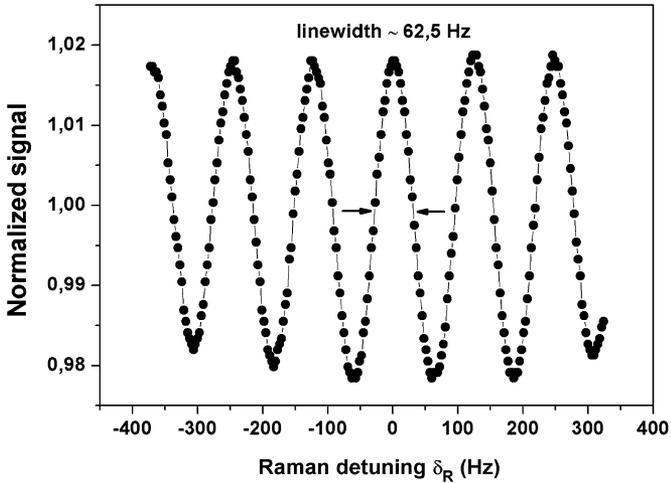


Fig. 6. Experimental scan around the central fringe obtained with  $\Omega_1 \sim \Omega_2 \approx 2\pi \times 400 \text{ kHz}$ ,  $\tau = 5 \text{ ms}$ ,  $T = 8 \text{ ms}$  and  $t_2 = 12 \mu\text{s}$ . Normalized signal means  $V_{\text{exp}}/V_{\text{background}}$  without averaging.

### III. WAVEFUNCTION FORMALISM AND INTERPRETATION OF FRINGES

To describe the physical situation acting on CPT transient, we use the Schrödinger representation. Starting with the usual

three-level atom under two coherent fields (Fig. 1), we study the dynamical effect using a time-dependent wavefunction

$$\psi(t) = \sum_{n=1}^3 c_n(t) \exp[-i\omega_n t] |n\rangle. \quad (3)$$

The evolution of the wavefunction is given by the Schrödinger equation

$$i\hbar \frac{d}{dt} |\psi(t)\rangle = H |\psi(t)\rangle. \quad (4)$$

We take into account the effect of spontaneous emission as  $i\Gamma/2$  (i.e., an open system) and collision relaxation as  $i\gamma_c$ . The hamiltonian  $H$  is now written in the rotating wave approximation (RWA)

$$H = \begin{pmatrix} 0 & 0 & \Omega_1 \\ 0 & \delta_R - i\gamma_c & \Omega_2 \\ \Omega_1 & \Omega_2 & \Delta_0 - i\frac{\Gamma}{2} \end{pmatrix}. \quad (5)$$

The amplitudes of transition probabilities are then [6], [9]

$$\begin{aligned} i\dot{c}_1(t) &= \Omega_1 c_3(t) \\ i\dot{c}_2(t) &= \Omega_2 c_3(t) + (\delta_R - i\gamma_c) c_2(t) \\ i\dot{c}_3(t) &= \Omega_1 c_1(t) + \Omega_2 c_2(t) + \left( \Delta_0 - i\frac{\Gamma}{2} \right) c_3(t). \end{aligned} \quad (6)$$

In our case, since  $\Omega_{1,2} \ll \Gamma (\approx 2\pi \times 625 \text{ MHz})$ , the excited level  $c_3(t)$  reaches its asymptotic value which follows adiabatically the evolution of  $c_1(t)$  and  $c_2(t)$ . It means that the amplitude for the excited level is clearly a sum of two channels which could interfere. We then find the state evolution driven by laser fields [6] taking  $c_1(0) = 1$  and  $c_2(0) = 0$

$$\begin{aligned} c_1(t) &= \exp\left[-\left(\frac{\gamma_c}{2} + \Gamma s\right)t\right] \exp\left[-i\left(\frac{\delta_R}{2} + \Delta_0 s\right)t\right] \\ &\quad \times \left\{ \cos\frac{\omega t}{2} + \frac{i}{\omega} \left[ (\Omega_1^2 - \Omega_2^2) \frac{\Delta_0 + \frac{i\Gamma}{2}}{\Delta_0^2 + \frac{\Gamma^2}{4}} + \delta_R - i\gamma_c \right] \sin\frac{\omega t}{2} \right\} \\ c_2(t) &= \exp\left[-\left(\frac{\gamma_c}{2} + \Gamma s\right)t\right] \exp\left[-i\left(\frac{\delta_R}{2} + \Delta_0 s\right)t\right] \\ &\quad \times \frac{i}{\omega} \left( 2\Omega_1\Omega_2 \frac{\Delta_0 + \frac{i\Gamma}{2}}{\Delta_0^2 + \frac{\Gamma^2}{4}} \right) \sin\frac{\omega t}{2} \\ c_3(t) &= -\frac{\Omega_1 c_1(t) + \Omega_2 c_2(t)}{\Delta_0 - \frac{i\Gamma}{2}} \end{aligned} \quad (7)$$

with the saturation parameter

$$s = \frac{\frac{\Omega_1^2}{2} + \frac{\Omega_2^2}{2}}{\Delta_0^2 + \frac{\Gamma^2}{4}} \quad (8)$$

and the complex angular frequency

$$\omega^2 = \left[ (\Omega_1^2 - \Omega_2^2) \frac{\Delta_0 + \frac{i\Gamma}{2}}{\Delta_0^2 + \frac{\Gamma^2}{4}} + \delta_R - i\gamma_c \right]^2 + \left[ 2\Omega_1\Omega_2 \frac{\Delta_0 + \frac{i\Gamma}{2}}{\Delta_0^2 + \frac{\Gamma^2}{4}} \right]^2 \quad (9)$$

Experimentally, we detect the total laser power transmitted through the cell, which is the sum of the imaginary part of the optical coherences  $\sigma_{\alpha,3}(t) = c_\alpha(t)c_3^*(t)$  with  $\alpha = 1, 2$ . Our Raman-Ramsey theoretical signal at  $t_1$  on the first pulse and  $t_2$  on the second pulse is related to the experimental signal by

$$\begin{aligned} P_{\text{detected}} &= \sum_{\alpha=1,2} \{ \text{Im}[\sigma_{\alpha,3}(\tau + T + t_2)] - \text{Im}[\sigma_{\alpha,3}(t_1)] \} \\ &= V_{\text{exp}}(t_2) - V_{\text{exp}}(t_1). \end{aligned} \quad (10)$$

We can compare experimental fringes for short pulses given in Fig. 5(a) and (c) to theoretical calculations in Fig. 5(b) and (d). The reasonable agreement between the four curves justifies the choice of the wavefunction representation for short pulses and weak fields. This representation is valid only if  $\tau$  is short compared to the time needed to reach the steady state solution. This time could be given by  $t_{\text{sat}}$  defined as the inverse of the saturation  $t_{\text{sat}} \approx 1/(\Gamma s)$ .

From the expression of the hyperfine coherence calculated as  $\sigma_{1,2}(t) = c_1(t)c_2^*(t)$ , it is clear that the saturation effect still plays an important role since the coherence relaxation is proportional to  $\exp[-(\gamma_c + 2\Gamma s)t]$  at any time  $t$ . Because of the relatively strong broadening of the excited state to about 625 MHz,

the saturation intensity is high and the loss of signal occurring at larger  $T$  can be compensated by increasing the laser intensities.

The exact dynamical evolution of the Raman-Ramsey fringes should take into account the relaxation terms which bring back the atoms down to the ground state. The density matrix formalism is then a better choice for a more realistic three-level closed system [7], [8].

#### IV. CONCLUSION

The linewidth of continuous CPT resonances is limited by saturation effects even for a laser intensity as low as  $100 \text{ nW/cm}^2$ . Such a low intensity gives a poor signal-to-noise ratio. We show that optically coherent pulses create narrow Raman-Ramsey fringes with linewidths mainly determined by  $1/2T$  where  $T$  is the free evolution time between the two pulses. An experimental record of about 60-Hz fringe width is reported. The results are in reasonable agreement with a simple model based on the wavefunction formalism. This model gives more physical insight into the relaxation and saturation terms than a numerical computation with a realistic three-level system.

#### ACKNOWLEDGMENT

The authors would like to thank J. Vanier for valuable discussions. The authors would also like to thank the referees for helpful corrections of this paper. We address special thanks to the electronic group of BNM-SYRTE for help and advice on the experiments. T. Zanon is grateful to MENRT for providing research studentship.

#### REFERENCES

- [1] S. Brandt, A. Nagel, R. Wynands, and D. Meschede, "Buffer gas induced linewidth reduction of coherent dark resonances to below 50 Hz," *Phys. Rev. A*, vol. 56, pp. R1063-R1066, 1997.
- [2] M. Merimaa, T. Lindvall, I. Tittonen, and E. Ikonen, "All-optical atomic clock based on coherent population trapping in  $^{85}\text{Rb}$ ," *J. Opt. Soc. Amer.*, vol. B20, pp. 273-279, 2003.
- [3] J. Vanier, A. Godone, and F. Levi, "Coherent population trapping: dark lines and coherent microwave emission," *Phys. Rev. A*, vol. 58, pp. 2345-2358, 1998.
- [4] J. E. Thomas, S. Ezekiel, C. C. Leiby Jr, R. H. Picard, and C. R. Willis, "Ultrahigh-resolution spectroscopy and frequency standards in the micro-wave and far-infrared region using optical lasers," *Opt. Lett.*, vol. 6, pp. 298-300, 1981.
- [5] J. E. Thomas, P. R. Hemmer, S. Ezekiel, C. C. Leiby Jr, R. H. Picard, and C. R. Willis, "Observation of Ramsey fringes using a stimulated Raman transition in a sodium atomic beam," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 48, pp. 867-870, 1982.
- [6] K. Moler, D. S. Weiss, M. Kasevich, and S. Chu, "Theoretical analysis of velocity-selective Raman transitions," *Phys. Rev. A*, vol. 45, pp. 342-348, 1992.
- [7] G. Orriols, "Nonabsorption resonances by nonlinear coherent effects in a three-level system," *Il Nuovo Cimento*, vol. 53B, pp. 1-23, 1979.
- [8] P. R. Hemmer, G. P. Ontai, and S. Ezekiel, "Precision studies of stimulated-resonance Raman interactions in an atomic beam," *J. Opt. Soc. Amer.*, vol. B3, pp. 219-230, 1986.
- [9] M. S. Shariar, P. R. Hemmer, D. P. Katz, A. Lee, and M. G. Prentiss, "Dark-state based three-element vector model for the stimulated Raman interaction," *Phys. Rev. A*, vol. 55, pp. 2272-2282, 1997.

## Annexe F

# Posters ICAP (International Conference on Atomic Physics)



# Dynamic cancellation of ac Stark-shifts for pulsed EIT/Raman optical lattice clocks

University of Colorado at Boulder  
JILA, 440 UCB, Boulder, CO 80309-0440  
e-mail: zanon@jila.colorado.edu

Thomas Zanon-Willette, A.D. Ludlow, S. Blatt, M.M. Boyd,  
S. Foreman, T. Zelevinsky, T. Ido, E. Arimondo, J. Ye

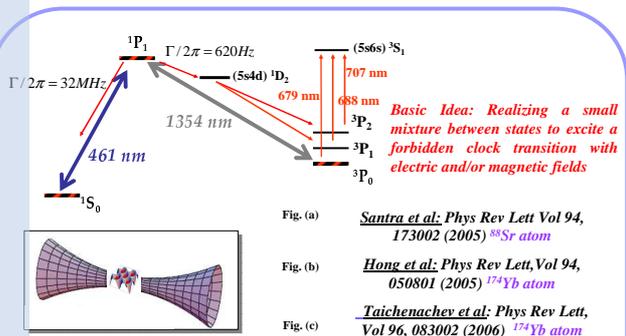
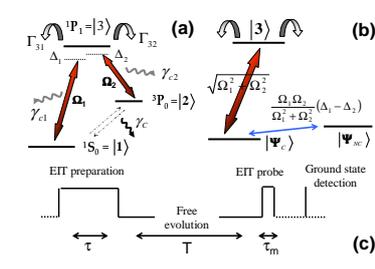


Fig. (a) *Santra et al. Phys Rev Lett Vol 94, 173002 (2005) <sup>88</sup>Sr atom*  
Fig. (b) *Hong et al. Phys Rev Lett, Vol 94, 050801 (2005) <sup>174</sup>Yb atom*  
Fig. (c) *Taichenachev et al. Phys Rev Lett, Vol 96, 083002 (2006) <sup>174</sup>Yb atom*



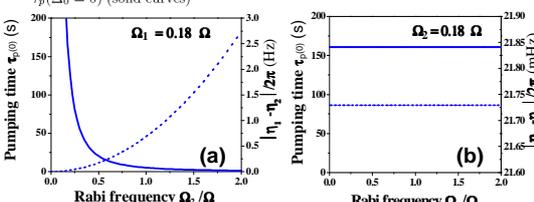
**Fig. 1:** (a) Three level atom-light configuration for an optical lattice clock based on time-separated laser pulses including relaxation and decoherence rates. The optical detunings  $\Delta_1 \equiv \Delta_0 + \eta_1$ ,  $\Delta_2 \equiv \Delta_0 + \delta_r + \eta_2$  include ac Stark-shifts  $\eta_i$  from off-resonant levels. Here  $\Delta_0$  is the common mode detuning and  $\delta_r$  denotes deviation from the Raman condition. (b) The corresponding dressed-state representation of bright  $|\Psi_c\rangle$  and dark  $|\Psi_{nc}\rangle$  states defining the clock transition. (c) The probing pulse sequence.

- Optical pumping time in Dark state at low light level means long pulse duration (Clock duty cycle?)
- Resonance Power broadening of bright state
- Bright state (Raman state) is sensitive to light shift
- Dark state (EIT/CPT) has no light shift

$$|1\rangle = \frac{\Omega_1}{\sqrt{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}} |\Psi_c\rangle + \frac{\Omega_2}{\sqrt{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}} |\Psi_{nc}\rangle$$

$$|2\rangle = \frac{\Omega_2}{\sqrt{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}} |\Psi_c\rangle - \frac{\Omega_1}{\sqrt{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}} |\Psi_{nc}\rangle$$

**Fig. 2:** Differential ac Stark shifts  $\eta_1 - \eta_2$  (dashed curves) on the  $^1S_0 \rightarrow ^3P_0$  clock frequency and the optical pumping time  $\tau_p(\Delta_0 = 0)$  (solid curves)



### EIT dilemma: optical pumping time versus ac Stark shift

$\Delta_0 \approx \Delta_1 \approx \Delta_2$

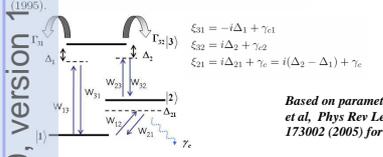
$$\tau_p(\Delta_0) \approx \frac{2 \Delta_0^2 + \Gamma^2/4}{\Gamma(\Omega_1^2 + \Omega_2^2)} \left[ 1 - \Upsilon \left( \frac{\Omega_1^2 - \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \right) \right]^{-1}$$

Here  $\Upsilon = (\Gamma_{31} - \Gamma_{32})/\Gamma$  is the branching ratio difference for the intermediate state which scales the contribution of each Rabi frequency to the pumping rate  $\tau_p^{-1}$ .

tel:00123499, version 1.09 Jan 2007

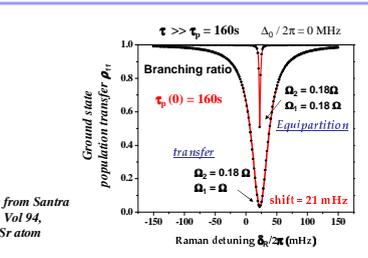
### Compact steady-state expression including ac frequency shift. (valid for $\Upsilon \neq 0$ ).

Swain, J. Phys. B: At. Mol. Phys 15, 3405 (1982).  
L. Jyotsna and G.S. Agarwal, Phys. Rev. A 52, 3147 (1995).



Based on parameters from Santra et al. Phys Rev Lett, Vol 94, 173002 (2005) for <sup>88</sup>Sr atom

$$\rho_{ii}(\infty) = \frac{w_{13}w_{12} + w_{23}(w_{12} + w_{13}) + w_{21}\Gamma_{32} + (w_{12} + w_{23})\Gamma_{31}}{3w_{13}w_{12} + 3(w_{13} + w_{12})w_{23} + 4\Gamma_{32}(w_{13} + 2w_{12}) + \Gamma_{31}(2w_{12} + w_{23})}$$



Long pulse duration due to weak optical pumping rate (160s). Excited state detection with a small fraction of atoms leads to a low fluorescence rate.

Ground state detection in alkaline earth atoms has a higher population transfer.

External off resonant level contributions

Internal three level ac shift contribution

### EIT/Raman-Ramsey phase spectroscopy:

To remove ac Stark shifts while maintaining a high signal contrast, we apply the Ramsey technique of separated oscillating EIT/Raman fields to this effective two-level system, minimizing systematic frequency shifts over the free-evolution time T. The Ramsey-like sequence of preparation, free evolution and probe followed by the final destructive detection of the ground state population, is indicated in Fig. 1(c). This eliminates power broadening of the clock transition which is always present for continuous excitation.

Note that this scheme uses ground state detection and requires highly asymmetric  $\Upsilon$  to obtain large population transfer. In the region of detunings between Raman excitation ( $\Delta_0/T \gg 1$ ) and EIT/CPT ( $\Delta_0/T < 1$ ), we find contrast of up to 60%, even though  $\tau \ll \tau_p(\Delta_0) - 100s$ .

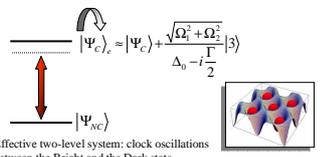
Hamiltonian and relaxation terms including lattice decoherence:

$$H = \begin{pmatrix} \Delta_1 & 0 & \Omega_1 \\ 0 & \Delta_2 & \Omega_2 \\ \Omega_1 & \Omega_2 & 0 \end{pmatrix}; R\rho = \begin{pmatrix} \Gamma_{31}\rho_{33} - \gamma\rho_{21} - \gamma_1\rho_{13} \\ -\gamma\rho_{12} & \Gamma_{32}\rho_{33} - \gamma_2\rho_{23} \\ -\gamma_1\rho_{31} & -\gamma_2\rho_{32} & -\Gamma_{33}\rho_{33} \end{pmatrix}$$

Density matrix equation:

$$\dot{\rho} = -\frac{i}{\hbar}[H, \rho] + R\rho$$

Applying adiabatic approximation:  $\Omega_1, \Omega_2 \lesssim \Gamma_{31}, \Gamma_{32}, \gamma_1, \gamma_2$ .



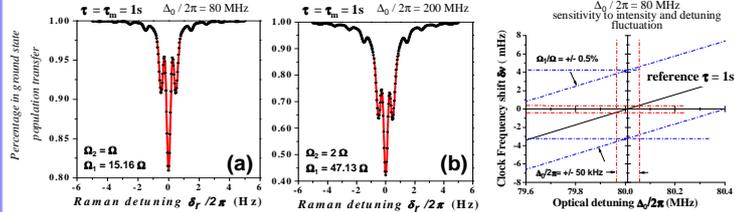
$$\rho_{ii} \equiv \alpha_{ii}(\tau, \tau_m) \left( 1 + \beta_{ii}(\tau, \tau_m) e^{-\gamma_i \tau} \cos[\delta_r T - \Phi(\tau, \tau_m)] \right) \quad \text{Eq. 1}$$

where  $\alpha_{ii}$  and  $\beta_{ii}$  are lineshape functions containing exponential decays  $e^{-\tau/\tau_p}$  and  $e^{-\tau_m/\tau_p}$  to their steady states  $\rho_{ii}(\infty)$

### Diluting systematic shifts over T

### EIT/Raman phase-shift

From Eq. 1 we find spectral lineshapes and transition probabilities as a function of the experimental parameter  $\delta_r$ , shown in Fig. 3. Since  $\tau \ll \tau_p(\Delta_0)$ , the two-photon resonance has a Fourier transformation linewidth given by the duration  $\tau$  where power broadening effects have been eliminated. The spectra also exhibit the typical coherent Ramsey mutations with period  $\sim 1/2T$  and a central fringe free from systematic shifts.

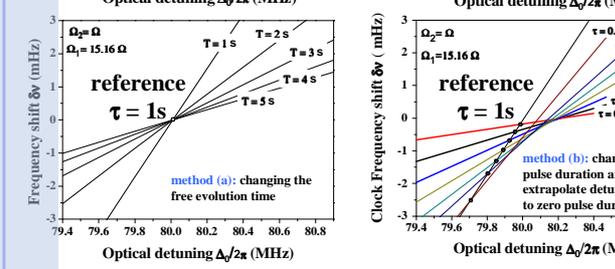
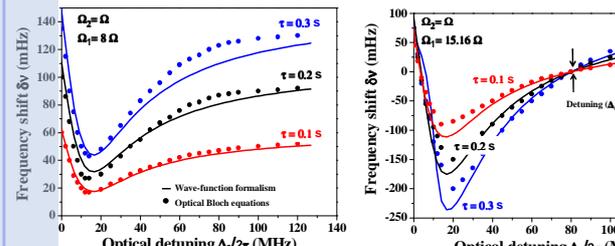


### Nulling clock frequency shift at particular "magic detuning": two methods (submitted to PRL)

P.M. Radmore and P.L. Knight, J. Phys. B: At. Mol. Phys. 15, 561 (1982).

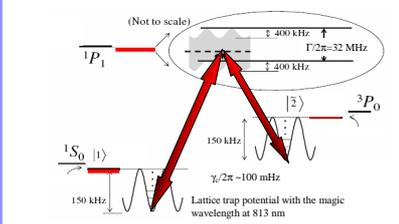
To find an analytical expression for  $\Phi(\tau, \tau_m)$ , we use the atomic wave-function formalism with a hamiltonian describing two-photon process including a phenomenological relaxation term -iΓ/2 and neglecting all lattice decoherences. By adiabatically eliminating the excited state amplitude, we obtain an effective two-level system including only the clock states  $|1\rangle$  and  $|2\rangle$ . The amplitudes evolve with a 2x2 matrix M as:

$$\delta V \approx \frac{\Phi(\tau, \tau_m)}{2\pi T} \quad \Phi(\tau, \tau_m) \sim \text{Arg} \left[ \frac{M_{-}(\tau_m) M_{+}(\tau)}{M_{+}(\tau_m) M_{-}(\tau)} \right]$$



### Application for a three level lattice clock design:

See also our poster 148 describing the EIT/Raman pulsed method by NMR formalism.



We propose a combination of Electromagnetically Induced Transparency (EIT)/Raman and pulsed spectroscopy techniques to compensate for systematic frequency shifts at high accuracy in forbidden optical lattice clock transitions of alkaline earth atoms. Time-separated laser pulses are designed to trap atoms in coherent superpositions at relatively high field strengths while eliminating off-resonant ac Stark contributions at particular laser detunings from the intermediate excited state. The scheme achieves efficient population transfer from 20% to 60% with potential inaccuracy below  $\sim 10^{-17}$ .

-- Extension to nuclear domain:

T.J. Bührenich, J. Evers, C.H. Keitel, Phys. Rev. Lett. 96, 142501 (2006).  
O. Kocharovskaya, R. Kolesov, Y. Rostovtsev, Phys. Rev. Lett. 82, 3593 (1999).  
E. Peik and C. Tamm, EuroPhys. Lett. 61, 181 (2003).

-- Application for optical ion clocks:

I. Siemers, M. Schubert, R. Blatt, W. Neuhauser, P.E. Toschek, EuroPhys. Lett. 18, 139 (1992).  
D. Leibfried, R. Blatt, C. Monroe, D. Wineland, Rev. Mod. Phys. 75, 281 (2003).

# Adiabatic three level Raman/Bloch equations for NMR-like quantum coherence engineering

LNE-SYRTE observatoire de Paris  
61 Avenue de l'Observatoire, 75014,  
Paris, France

University of Colorado at Boulder  
JILA, 440 UCB, Boulder, CO 80309-0440  
e-mail: zanon@jila.colorado.edu

Thomas Zanon-Willette, S. Guerandel, E. De Clerq,  
N. Dimarcq, A. Clairon.  
E. Arimondo, J. Ye.

I wish to thank S. Ezekiel, D. Kleppner, and N. Ramsey for this work spirit



## Raman/Bloch equations to describe the adiabatic three level system:

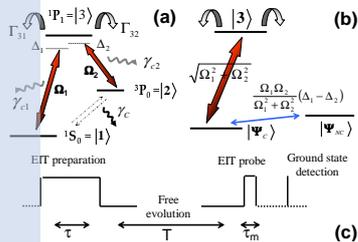


FIG. 1: (a) Three level atom-light configuration for an optical lattice clock based on time-separated laser pulses including relaxation and decoherence rates. The optical detunings  $\Delta_1 \equiv \Delta_0 + \eta_1$ ,  $\Delta_2 \equiv \Delta_0 + \delta_r + \eta_2$  include ac Stark-shifts  $\eta_i$  from off-resonant levels. Here  $\Delta_0$  is the common mode detuning and  $\delta_r$  denotes deviation from the Raman condition. (b) The corresponding dressed-state representation of bright  $|\Psi_c\rangle$  and dark  $|\Psi_{NC}\rangle$  states defining the clock transition. (c) The probing pulse sequence.

## Set of equations by adiabatic elimination of the excited state and optical coherences:

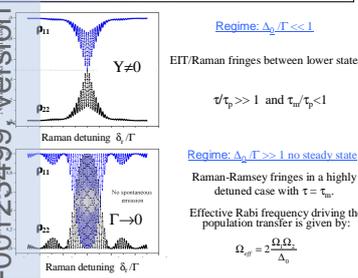
$$\frac{d\Delta n(t)}{dt} = 2\Omega_1 \left[ \frac{\Omega_2 \gamma_{c2} (\Gamma + 1)}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} \left( \frac{3}{2} \rho_{33}(t) - 1 + \Delta n(t) \right) + \frac{\Omega_2 \Delta_2 (\Gamma + 1)}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} \text{Im}[\rho_{12}(t)] \right] - \frac{\Omega_2 \gamma_{c2} (\Gamma + 1)}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} \text{Re}[\rho_{12}(t)]$$

$$+ 2\Omega_1 \left[ \frac{\Omega_1 \gamma_{c1} (\Gamma - 1)}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} \left( \frac{3}{2} \rho_{33}(t) - 1 - \Delta n(t) \right) - \frac{\Omega_1 \Delta_1 (\Gamma - 1)}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} \text{Im}[\rho_{12}(t)] \right] + \frac{\Omega_1 \gamma_{c1} (\Gamma - 1)}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} \text{Re}[\rho_{12}(t)]$$

$$\frac{d\rho_{12}(t)}{dt} = -i(\Delta_1 - \Delta_2) - \gamma_{c1} \rho_{12}(t) + \left( \frac{i\Omega_1 \Omega_2 (\Omega_2^2 - \Omega_1^2)}{\Delta_1 - \gamma_{c1}} \left( \frac{3}{2} \rho_{33}(t) - 1 - \frac{\Delta n(t)}{2} \right) - \frac{i\Omega_1 \Omega_2 (\Omega_2^2 + \Omega_1^2)}{\Delta_1 - \gamma_{c1}} \left( \frac{3}{2} \rho_{33}(t) - 1 + \frac{\Delta n(t)}{2} \right) \right)$$

$$\rho_{33}(t) = \frac{\frac{\Omega_1^2 \Omega_2 (\Delta_2 (\Gamma + 1))}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)} + \frac{\Omega_2^2 \Omega_1 (\Delta_1 (\Gamma - 1))}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)}}{1 + \frac{3\Omega_1^2 \gamma_{c1}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)} + \frac{3\Omega_2^2 \gamma_{c2}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)}} + \frac{2\Omega_1 \Omega_2 \left( \frac{\Delta_1 \text{Im}[\rho_{12}(t)] + \Delta_2 \text{Im}[\rho_{12}(t)]}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} + \frac{\gamma_{c2} \text{Re}[\rho_{12}(t)] - \Delta_2 \text{Im}[\rho_{12}(t)]}{\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} \right)}{1 + \frac{3\Omega_1^2 \gamma_{c1}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)} + \frac{3\Omega_2^2 \gamma_{c2}}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)}}$$

## EIT/Raman transition probability for ground state: See also poster 136



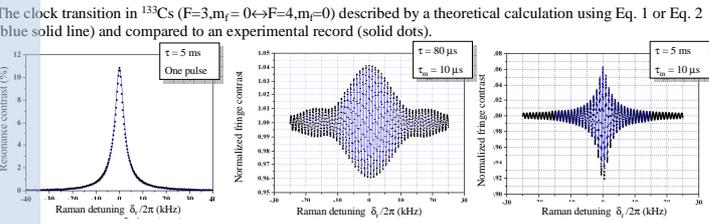
Here  $\Gamma = (\Gamma_{31} - \Gamma_{32})/\Gamma$  is the branching ratio difference

Typical optical pumping time to drive Dark State:

$$\tau_p(\Delta_0) \approx \frac{2}{\Gamma} \frac{\Delta_0^2 + \gamma_{c1}^2}{\Delta_0^2 + \gamma_{c2}^2} \left[ 1 - \gamma_{c1} \left( \frac{\Omega_1^2 - \Omega_2^2}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2} \right)^{-1} \right]$$

R.M. Whitley, C.R. Stroud, Phys. Rev. A 14, 1498 (1976).  
B.J. Dalton, T.D. Kieu, P.L. Knight, Optica Acta. 33, 459 (1986).  
R.G. Brewer, E.L. Hahn, Phys. Rev. A 11, 1641 (1975).  
K. Mohr, D.S. Weiss, M. Kasovich, S. Chu, Phys. Rev. A 45, 342 (1992).  
M.M.T. Loy, IBM, J. Res. Develop. 23, 504 (1979).  
D. Grischowsky, M.M.T. Loy, P.F. Liao, Phys. Rev. A 12, 2514 (1975).

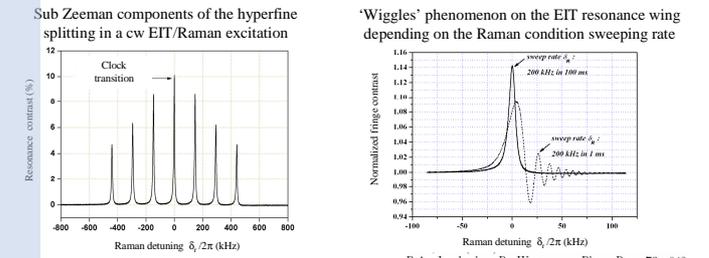
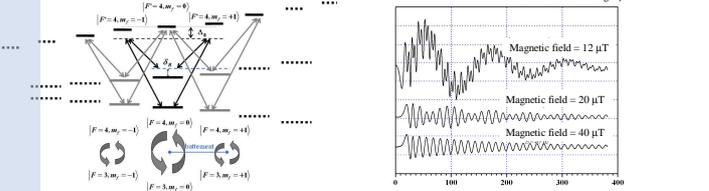
## Experimental results recorded in a Cs vapor cell mixed with a buffer gas: PRL Vol 94, 193002 (2005).



Our experimental record is based on a double lambda scheme AA (with orthogonal polarizations)

Beats between different hyperfine coherences depending on the magnetic field strength for a given Raman detuning

Fixed Raman detuning  $\delta_r/2\pi = 80$  kHz



B.A. Jacobsch, R. Wangness, Phys. Rev. 73, 942 (1948).

## Exact steady-state transition probability for the excited state:

$$\rho_{33} = S^A \times \frac{(\Delta_1 - \Delta_2)^2 + \gamma_{c1}^2 + 2\gamma_{c1}(\gamma_{c1} + \gamma_{c2})S^*}{(\Delta_1 - \Delta_2)[(\Delta_1 - \Delta_2) - \Delta_f] + \Gamma_{eff}^2} \quad \text{Eq. 1}$$

$$S^A = \frac{S}{1 + (3 - \frac{\Gamma_{31}\Gamma_{32}}{\Gamma_{31} + \Gamma_{32}})S + \frac{\Omega_1\Omega_2(\Delta_1 + \Delta_2)}{\gamma_{c1}\gamma_{c2}(\Delta_1 + \Delta_2)}} + \frac{\Omega_1\Omega_2(\Delta_1 + \Delta_2)}{\gamma_{c1}\gamma_{c2}(\Delta_1 + \Delta_2)}$$

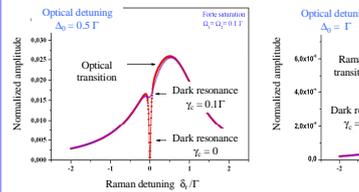
$$S^* = \frac{\gamma_{c1}\gamma_{c2}(\gamma_{c1} + \gamma_{c2})}{2\gamma_{c1}\gamma_{c2}(\gamma_{c1} + \gamma_{c2})} S = \frac{2}{(\Gamma_{32}\Omega_1^2 + \Gamma_{31}\Omega_2^2)}$$

Terms  $S^*$ ,  $S$  describe optical saturation from laser excitation consistent with a basic three-level rate equation treatment. The amplitude factor  $S^A$  defines the Dark Resonance transition probability. The effective half linewidth  $\Gamma_{eff}$  of the subnatural resonance is given by:

$$\Gamma_{eff} = \sqrt{\frac{\gamma_{c1}^2 + \frac{2\Omega_1\Omega_2(\Delta_1 + \Delta_2)}{\gamma_{c1}\gamma_{c2}(\Delta_1 + \Delta_2)} + (\gamma_{c1} + 2\gamma_{c2}S + 2(\gamma_{c1} + \gamma_{c2})S^*)(\gamma_{c1} + 2(\gamma_{c1} + \gamma_{c2})S^*)}{1 + (3 - \frac{\Gamma_{31}\Gamma_{32}}{\Gamma_{31} + \Gamma_{32}})S + \frac{\Omega_1\Omega_2(\Delta_1 + \Delta_2)}{\gamma_{c1}\gamma_{c2}(\Delta_1 + \Delta_2)}} + \frac{2\Omega_1\Omega_2(\Delta_1 + \Delta_2)}{\gamma_{c1}\gamma_{c2}(\Delta_1 + \Delta_2)}}$$

$\zeta = \frac{\gamma_{c2}(\Delta_2\Delta_1 + \Delta_2^2 - \Delta_1^2)(\Gamma_{31} + \Gamma_{32}) + (\gamma_{c1} - \gamma_{c2})(\Gamma_{32}\gamma_{c2} - \Gamma_{31}\gamma_{c1})(2SS^*(\gamma_{c1} + \gamma_{c2}) + \gamma_{c2}S)}{2\gamma_{c1}\gamma_{c2}}$

-G. Orriols, Il Nuovo Cimento, B 53 vol 1, p 1 (1979).  
-G. Yanik, W. Nagourney, H. Dehmelt, JOSA B, vol 2, No 8, p 1251 (1985).  
-B. Louis, C. Cohen-Tannoudji, Journal de Phys IV, vol 2, p 579 (1992).  
-Y. Stalgis, I. Siemers, B. Appasamy, P.E. Toschek, Vol 15, No 10, p 2505 (1998)  
-M.J. MacDonnell et al. Phys. Rev. A, vol 70, 053802 (2004).



The Raman condition  $\Delta_1 - \Delta_2$  is slightly shifted by the term  $\Delta_f$  which contains a light-shift term induced by AC Stark contributions, by differential losses or by a possible induced decoherence shift:

$$\Delta_f = \frac{2}{\gamma_{c1}\gamma_{c2}} \frac{\Delta_1\Gamma_{31}\Omega_1^2 + \Delta_2\Gamma_{32}\Omega_2^2}{\Gamma_{31} + \Gamma_{32}}$$

$$\Delta_f = \frac{2}{\gamma_{c1}\gamma_{c2}} \frac{\Delta_1\Gamma_{31}\Omega_1^2 + \Delta_2\Gamma_{32}\Omega_2^2}{\Gamma_{31} + \Gamma_{32}}$$

$$\Delta_f = \frac{2}{\gamma_{c1}\gamma_{c2}} \frac{\Delta_1\Gamma_{31}\Omega_1^2 + \Delta_2\Gamma_{32}\Omega_2^2}{\Gamma_{31} + \Gamma_{32}}$$

The EIT dip position is relevant for a precise clock frequency measurement when optical detuning  $\Delta_1, \Delta_2$  are tuned around the Raman condition  $\Delta_1 - \Delta_2 = 0$ . A simple differentiation based on the fact that  $\Delta_1 - \Delta_2 \ll \Delta_1, \Delta_2$  leads to the first order frequency shift  $\delta\nu$  of the resonance. This EIT resonance is ideally insensitive to light shift inside the three level system when  $\gamma_c = 0$  because of nearly resonant fields applied on atomic states. It breaks down when off resonant excitations  $\eta_1, \eta_2$  are added into optical detuning definitions  $\Delta_1, \Delta_2$  leading to a shift of the clock resonance

$$\delta\nu \approx \frac{\gamma_c(\gamma_c + 2(\gamma_{c1} + \gamma_{c2})S^*)}{\Gamma_{eff}^2 + \gamma_c(\gamma_c + 2(\gamma_{c1} + \gamma_{c2})S^*)} \frac{\Delta_f}{2} + \eta_2 - \eta_1$$

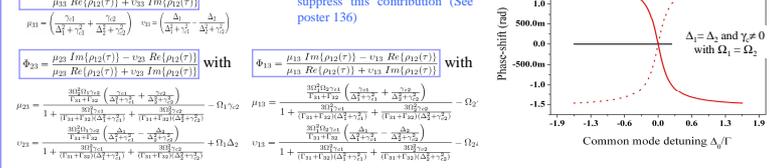
## EIT/Raman transition probability for excited state and optical coherences with phase-shift control:

Rather than using the steady state regime often limited in frequency resolution by external power dependent ac shifts, we propose to create a new kind of excited state resonances with a Ramsey-like technique of time separated EIT pulses diluting systematic frequency shifts over the free evolution time  $T$ . This eliminates also power broadening of the clock transition which will always appear for a continuous wave excitation.

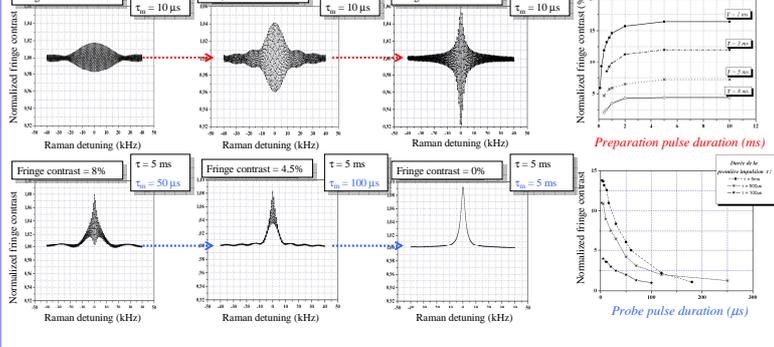
$$\rho_{33}(\tau, T) \equiv \left( \frac{\Omega_1^2 \Omega_2 (\Delta_1 (\Gamma + 1))}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2)} + \frac{\Omega_2^2 \Omega_1 (\Delta_2 (\Gamma - 1))}{(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})(\Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2)} \right) \left( 1 + \frac{2\Omega_1\Omega_2(\Delta_1 + \Delta_2)\sqrt{\mu_{33}^2 + \nu_{33}^2}}{\Delta_1^2 + \gamma_{c1}^2 + \Delta_2^2 + \gamma_{c2}^2} \right) e^{-\gamma_{c1}\tau} \cos[\delta_r T - \Phi_{33}(\tau)] \quad \text{Eq. 2}$$

Associated Raman phase-shift for excited state and each optical coherence:

Introducing external ac Stark shifts in these optical phases leads to a frequency shift of the clock transition. Short pulses can suppress this contribution (See poster 136)



## Mapping the coherence properties with pulse duration: PRL Vol 94, 193002 (2005).



## Various applications based on a pulsed Dark Resonance

**connected to:**  
M. Fleischhauer, A. Imamoglu, J.P. Marangos, Rev. Mod. Phys. "Electromagnetically induced transparency: optics in coherent media", 77, 633 (2005).  
L.M.K. Vandersypen, I.L. Chuang, Rev. Mod. Phys. "NMR techniques for quantum control and computation", Vol 76, 1027 (2004).  
M. Lukin, Rev. Mod. Phys. "Cold-atom Trapping and manipulating photon states in atomic ensembles", 75, 457 (2003).  
K. Bergmann, H. Theuer, B.W. Shore, Rev. Mod. Phys. "Coherent population transfer among quantum states of atoms and molecules", 70, 1003 (1998).

**Three level lattice or ion clock:**  
T. Hong, C. Cramer, W. Nagourney, E. Fortson, Phys. Rev. Lett. 94, 050801 (2005).  
R. Sauter, E. Arimondo, T. Ido, C. Greene, J. Ye, Phys. Rev. Lett. 94, 173002 (2005).  
I. Siemers, M. Schimbert, R. Blatt, W. Neuhauser, P.E. Toschek, EuroPhys Lett. 18, 139 (1992).

**EIT/Raman clock on atom-chip:**  
P. Treutlein et al. Phys. Rev. Lett. 92, 203005, 2004 (2004).

**Manipulating atom-molecule BEC:**  
K. Winkler, G. Thalhammer, M. Thies, H. Ritsch, R. Grimm, and J. H. Denschlag, Phys. Rev. Lett. 95, 063202 (2005).

**Coherent sub-Doppler/recoil cooling:**  
E.A. Kosmaly, D. Koslovsk, B. Matkov, Yu. Ruzhitskiy, Phys. Rev. A 48, 1410 (1993).  
A. Aspect, E. Arimondo, R. Kaiser, N. Vansteenkiste, and C. Cohen-Tannoudji, J. Opt. Soc. Am. B 6, 2112 (1989).  
G. Meiri, J. Ecker, C.H. Keitel, Phys. Rev. Lett. 85, 4159 (2000).

We present a set of Raman/Bloch equations describing a three level system excited by two coherent laser fields exactly solvable by the Nuclear Magnetic Resonance formalism. As an example, a time separated EIT/Raman laser pulse sequence leads to a narrow and high contrasted Dark Resonance without power broadening mechanism as demonstrated in Phys. Rev. Lett. 94, 193002 (2005). The stationary ac-frequency shift affecting the clock transition is replaced by a phase-shift diluted over the free evolution time T between pulses. Finally, a new class of Doppler-recoil free and time-resolved spectroscopy of clock resonances is investigated mixing steady states requiring for a preparation of quantum coherent states and transient nutations in a Lamb-Dicke confinement provided by optical lattices or single ion traps.



Annexe G

## Brevets déposés



P.B.5818 - Patentlaan 2  
2280 HV Rijswijk (ZH)  
☎ (070) 3 40 20 40  
FAX (070) 3 40 30 16

Europäisches  
Patentamt

European  
Patent Office

Office européen  
des brevets

Generaldirektion 1

Directorate General 1

Direction générale 1

ZANON, Thomas  
49 boulevard de Clichy  
F-75009 PARIS  
FRANCE



Service clientèle OEB

Tel.: +31 (0)70 340 45 00

Date  
06.11.06

Référence	Demande n°/Brevet N° 05744396.2- -FR2005000754
Demandeur/Titulaire CENTRE NATIONAL DE	

**Communication des indications prévues à l'article 128(5) CBE, conformément à la règle 17(3) CBE**

Nous vous informons que vous êtes désigné comme inventeur/co-inventeur dans la demande précitée. Conformément à la règle 17(3) CBE les indications prévues à l'article 128(5) CBE vous sont communiquées par la présente:

DATE DE DEPOT : 29.03.05  
PRIORITE : FR/30.03.04/ FRA 0403289  
TITRE : PROCÉDÉ DE GÉNÉRATION D'UN SIGNAL D'HORLOGE  
ATOMIQUE A PIÉGEAGE COHÉRENT DE POPULATION ET  
HORLOGE ATOMIQUE CORRESPONDANTE  
ETATS DESIGNES : AT BE BG CH CY CZ DE DK EE ES FI FR GB GR HU IE IS IT LI  
LT LU MC NL PL PT RO SE SI SK TR

SECTION DE DEPOT





# Bibliographie

- [1] G. Alzetta, A. Gozzini, L. Moi, G. Orriols. **An experimental method for the observation of r.f. transitions and laser beat resonances in oriented Na vapors.** *Il Nuovo Cimento B.*, **36** :5, 1976.
- [2] H.R. Gray, R.M. Whitley, C.R. Stroud. **Coherent trapping of atomic population.** *Opt. Lett.*, **3** :218, 1978.
- [3] B. Lounis, C. Cohen-Tannoudji. **Coherent population trapping and fano profiles.** *J. Phys. II.*, **2** :579, 1992.
- [4] U. Fano. **Effects of configuration interaction on intensities and phase shifts.** *Phys. Rev.*, **124** :1866, 1961.
- [5] M.O. Scully . **Enhancement of the index of refraction via quantum coherence.** *Phys. Rev. Lett.*, **67** :1855, 1991.
- [6] J. H. Eberly, A. Rahman, R. Grobe. **Index of refraction for an optical medium with clamped quantum phase.** *Phys. Rev. Lett.*, **76** :3687, 1996.
- [7] E. Arimondo. **Coherent population trapping in laser spectroscopy.** *Progress in optics. edited by E. Wolf/ Elsevier Science*, vol **XXXV** :257, 1996.
- [8] S. H. Harris, J.E. Field, A. Imamoglu. **Nonlinear optical processes using electromagnetically induced transparency.** *Phys. Rev. Lett.*, **64** :1101, 1990.
- [9] N. Cyr, M. Têtu, M. Breton. **All-optical microwave frequency standard : a proposal.** *IEEE Trans. on Inst. and Meas.*, **42** :640, 1993.
- [10] J. Vanier. **Atomic clocks based on coherent population trapping : a review.** *Appl. Phys. B.*, :1, 2005.
- [11] R. Santra, E. Arimondo, T. Ido, C. Greene, J. Ye. **High accuracy optical clock via Three-Level Coherence in Neutral Bosonic <sup>88</sup>Sr.** *Phys. Rev. Lett.*, **94** :173002, 2005.
- [12] T. Hong, C. Cramer, W. Nagourney, E.N. Forston. **Optical clocks based on ultra-narrow Three-photon resonances in alkaline earth atoms.** *Phys. Rev. Lett.*, **94** :050801, 2005.
- [13] P. Knight. **New frequency standards from ultra narrow Raman resonances.** *Nature*, **297** :16, 1982.
- [14] C.J. Bordé. **Quantum theory of atom-wave beam splitters and application to multidimensional atomic gravito-inertial sensors.** *Gen. Rel. and Grav.*, **36** :475, 2004.

- [15] N. F. Ramsey. **A molecular beam resonance method with separated oscillating field.** *Phys. Rev.*, **78** :695, 1950.
- [16] C. Vian, P. Rosenbusch, H. Marion, S. Bize, L. Cacciapuoti, S. Zhang, M. Abgrall, D. Chambon, I. Maksimovic, P. Laurent, G. Santarelli, A. Clairon, A. Luiten, M. Tobar, and C. Salomon. **BNM-SYRTE Fountains : Recent Results.** *IEEE Trans. on Inst. and Meas.*, **54** :833, 2005.
- [17] I. Rabi. **Space quantization in a gyrating magnetic field.** *Phys. Rev.*, **51** :652, 1937.
- [18] S. Bize, P. Laurent, M. Agbrall, H. Marion, I. Maksimovic, L. Cacciapuoti, J. Grünert, C. Vian, F. Pereira dos Santos, P. Rosenbusch, P. Lemonde, G. Santarelli, P. Wolf, A. Clairon, A. Luiten, M. Tobar. **Advances in Atomic Fountains.** *C.R. Physique*, **5** :829–843, 2004.
- [19] I. Rabi, S. Millman, P. Kusch, J. Zacharias. **The molecular beam resonance method for measuring nuclear magnetic moments.** *Phys. Rev.*, **55** :526, 1939.
- [20] E. Schrödinger. *Mémoires sur la mécanique quantique ondulatoire.* Reprint, Editions Jacques Gabay, 1988. Préface marcel Brilloin.
- [21] C.J. Bordé. **Atomic clocks and inertial sensors.** *Metrologia*, **39** :435, 2002.
- [22] N.F. Ramsey, H.B. Silsbee. **Phase shifts in the molecular beam method of separated oscillating fields.** *Phys. Rev.*, **84** :506, 1951.
- [23] Y. Sortais. *Construction d'une fontaine double à atomes froids de  $^{87}\text{Rb}$  et  $^{133}\text{Cs}$ ; étude des effets dépendant du nombre d'atomes dans une fontaine.* Thèse de doctorat de l'Université Paris VI, 2001.
- [24] A. Makdissi, E. De Clercq. **Evaluation of the accuracy of the optically pumped caesium beam primary frequency standard of the BNM-LPTF.** *Metrologia.*, **38** :409, 2001.
- [25] N. Ramsey. *Molecular beams.* Clarendon press., Oxford, 1956.
- [26] A. Clairon, P. Laurent, G. Santarelli, S. Ghezali, S.N. Lea, M. Bahoura. **A cesium fountain frequency standard : preliminary results.** *IEEE Trans. on Inst. and Meas.*, **44** :128, 1995.
- [27] W.M. Itano, J.C. Bergquist, J.J. Bollinger, J.M. Gilligan, D.J. Heinzen, F.L. Moore, M.G. Raizen, D.J. Wineland. **Quantum projection noise : Population fluctuations in two-level systems.** *Phys. Rev. A.*, **47** :3554, 1993.
- [28] G. Santarelli, Ph. Laurent, P. Lemonde, A.G. Mann, S. Chang, A.N. Luiten, C. Salomon, A. Clairon. **Quantum projection noise in an atomic fountain : a high stability cesium frequency standard.** *Phys. Rev. Lett.*, **82** :4619, 1999.
- [29] S. Tremine, S. Guerandel, D. Holleville, N. Dimarcq, A. Clairon. **Microwave interrogation in a compact atomic clock.** *Proceedings of the 18<sup>th</sup> European Forum on time and Frequency, Guildford UK*, , 2004.
- [30] S. tremine, S. Guerandel, D. Holleville, N. Dimarcq. **Short term stability limitations in a compact atomic clock.** *Proceedings of the 19<sup>th</sup> European Forum on time and Frequency, Besançon France*, , 2005.
- [31] M. Abgrall. *Évaluation des performances de la fontaine atomique PHARAO. Participation à l'étude de l'horloge spatiale PHARAO.* Thèse de doctorat de l'Université Paris VI, 2003.

- [32] S. Bize. *Tests fondamentaux à l'aide d'horloges à atomes froids de rubidium et de césium*. Thèse de doctorat de l'Université Paris VI, 2001.
- [33] H. Marion, F. Pereira Dos Santos, M. Abgrall, S. Zhang, Y. Sortais, S. Bize, I. Maksimovic, D. Calonico, J. Grünert, C. Mandache, P. Lemonde, G. Santarelli, Ph. Laurent, and A. Clairon. **Search for Variations of Fundamental Constants using Atomic Fountain Clocks**. *Phys. Rev. Lett.*, **90** :150801, 2003.
- [34] H. Marion. *Contrôle des collisions froides du  $^{133}\text{Cs}$ , tests de la variation de la constante de structure fine à l'aide d'une fontaine double Rubidium-Césium*. Thèse de doctorat de l'Université Paris VI, 2003.
- [35] E. Simon. *Vers une stabilité et une exactitude de  $10^{-16}$  pour les horloges atomiques; le rayonnement du corps noir, la détection optique*. Thèse de doctorat de l'Université d'Orsay, 1997.
- [36] S. Zhang. *Déplacement de fréquence dû au rayonnement du corps noir dans une fontaine atomique à césium et amélioration des performances de l'horloge*. Thèse de doctorat de l'Université Paris VI, 2004.
- [37] F. Bloch. **Nuclear Induction**. *Phys. Rev.*, **70** :460, 1946.
- [38] N. Bloembergen, E.M. Purcell, R.V. Pound. **Relaxation effects in Nuclear magnetic resonance absorption**. *Phys. Rev.*, **73** :679, 1948.
- [39] E.T. Jaynes. **Matrix Treatment of Nuclear Induction**. *Phys. Rev.*, **98** :1099, 1955.
- [40] C. Cohen-Tannoudji, J.P. Barrat. **Etude du pompage optique dans le formalisme de la matrice densité**. *J. Phys. Radium*, **22** :329, 1961.
- [41] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, G. Grynberg. **Tome 1 : photons et atomes, introduction à l'électrodynamique quantique**. *InterEditions/Editions du CNRS*, 2001.
- [42] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, G. Grynberg. **Tome 2 : Processus d'interaction entre photons et atomes**. *InterEditions/Editions du CNRS*, 2001.
- [43] B. Cagnac, J.P. Faroux. **Lasers : interaction lumière-atomes**. *InterEditions/Editions du CNRS*, 2002.
- [44] R. K. Wangness, F. Bloch. **The dynamical theory of nuclear induction**. *Phys. Rev.*, **89** :728, 1953.
- [45] J.I. Steinfeld. *Laser and coherence spectroscopy*. Plenum Press, New York, 1978.
- [46] R.P. Feynman, F.L. Vernon, R.W. Hellwarth. **Geometrical representation of the Schrödinger equation for solving maser problems**. *J. Appl. Phys.*, **28** :49, 1957.
- [47] E.L. Hahn. **Spin Echoes**. *Phys. Rev.*, **50** :580, 1950.
- [48] L. Allen, J.H. Eberly. **Optical resonance and two-level atoms**. *Dover publications inc. New York*, 1975.
- [49] F. Bloch, A. Siegert. **Magnetic resonance for nonrotating fields**. *Phys. Rev.*, **57** :522, 1940.
- [50] H. Salwen. **Resonance transitions in molecular beam experiment. I. General theory of transitions in a rotating magnetic field**. *Phys. Rev.*, **99** :1274, 1955.
- [51] S.H. Autler, C.H. Townes. **Stark effect in Rapidly varying fields**. *Phys. Rev.*, **100** :703, 1955.

- [52] J.H. Shirley. **Solution of the Schrödinger equation with a hamiltonian periodic in time.** *Phys. Rev.*, **138** :979, 1965.
- [53] C. Wei, A.S.M. Windsor, N. Manson. **A strongly driven two-level atom revisited : Bloch-Siegert shift versus dynamic Stark splitting.** *J. Phys. B : At. Mol. Phys.*, **30** :4877, 1997.
- [54] H.C. Torrey. **Transient Nutations in Nuclear Magnetic Resonance.** *Phys. Rev.*, **76** :1059, 1949.
- [55] A.B. Brandin. **Transition probability in the Ramsey method with arbitrary initial and final frequencies of separated oscillatory fields.** *Phys. Rev. A*, **50** :1575, 1994.
- [56] V. Baklanov, B. Ya. Dubetskii, VP. Chebotayev. **Non linear Ramsey resonance in the optical region.** *Appl. Phys.*, **9** :171, 1976.
- [57] C.J. Bordé, C. Salomon, S. Avrillier, A. Van Lerberghe, Ch. Bréant. **Optical Ramsey fringes with traveling waves.** *Phys. Rev. A.*, **30** :1836, 1984.
- [58] C. Antoine. *Contribution à la théorie des interféromètres atomiques.* Thèse de doctorat de l'Université Paris VI, 2004.
- [59] A.R.P. Rau, W. Zhao. **Complete time-dependent treatment of a general three level system.** *Phys. Rev. A.*, **71** :063822, 2005.
- [60] W.R. Salzman. **Quantum mechanics of systems periodic in time.** *Phys. Rev. A.*, **10** :461, 1974.
- [61] S.R. Barone, M.A. Narcowich, F.J. Narcowich. **Floquet theory and applications.** *Phys. Rev. A.*, **15** :1109, 1977.
- [62] M.M. Salour, C. Cohen-Tannoudji. **Observation of Ramsey's interference fringes in the profile of doppler-free two-photon resonances.** *Phys. Rev. Lett.*, **38** :757, 1977.
- [63] J.C. Bergquist, S.A. Lee, J.L. Hall. **Saturated absorption with spatially separated laser fields : observation of optical "Ramsey" fringes.** *Phys. Rev. Lett.*, **38** :159, 1977.
- [64] R. G. Beausoleil, T. W. Hansch. **Ultrahigh-resolution two-photon optical Ramsey spectroscopy of an atomic fountain.** *Phys. Rev. A.*, **33** :1661, 1986.
- [65] E. Arimondo. **Coherent population trapping in laser spectroscopy.** *Progress in optics*, **XXXV** :257, 1996.
- [66] J. Vanier, A. Godone, F. Levi. **Coherent population trapping : dark lines and coherent microwave emission.** *Phys. Rev. A.*, **58** :2345, 1998.
- [67] M. Fleischhauer, A. Imamoglu, J.P. Marangos. **Electromagnetically induced transparency : optics in coherent media.** *Rev. Mod. Phys.*, **77** :633, 2005.
- [68] G. Orriols. **Nonabsorption resonances by non linear coherent effects in a three-level system.** *Il Nuovo Cimento B.*, **53** :1-23, 1979.
- [69] J. Dalibard, S. Reynaud, C. Cohen-Tannoudji. **La cascade radiative de l'atome habillé.** dans *Vol in honour of A Gozzini ETS Editrice/Pisa*, 1995.
- [70] J.E. Thomas, P.R. Hemmer, S. Ezekiel, C.C. Leiby Jr, R.H. Picard, C.R. Willis. **Observation of Ramsey fringes using a stimulated Raman transition in a sodium atomic beam.** *Phys. Rev. Lett.*, **48** :867, 1982.

- [71] P.R. Hemmer, G.P. Ontai, S. Ezekiel. **Precision studies of stimulated-resonance Raman interactions in atomic beam.** *J. opt. Soc. Am. B.*, **3** :219, 1986.
- [72] P.R. Hemmer, S. Ezekiel, C.C. Leiby Jr. **Stabilization of a microwave oscillator using a resonance Raman transition in a sodium beam.** *Opt. Lett.*, **8** :440, 1983.
- [73] P.R. Hemmer. *Precision studies of stimulated resonance Raman scattering in atomic beams.* Thèse du Massachusetts Institute of Technology, 1984.
- [74] S.M. Shahriar. *Fundamental studies and applications in three level atoms.* Thèse du Massachusetts Institute of Technology, 1991.
- [75] M. Takamoto, F.L. Long, R. Higashi, H. Katori. **An optical lattice clock.** *Nature*, **435** :321, 2005.
- [76] A.V. Taichenachev, V.I. Yudin, V.L. Velichansky, S.A. Zibrov. **Pure superposition states of atoms generated by a bichromatic elliptically polarized field.** *Phys. Rev. A.*, **73** :013812, 2006.
- [77] Z.W. Barber, C.W. Hoyt, C.W. Oates, L. Hollberg, A.V. Taichenachev, V.I. Yudin. **Direct excitation of the forbidden clock transition in neutral  $^{174}\text{Yb}$  atoms confined to an optical lattice.** *Phys. Rev. Lett.*, **96** :083002, 2006.
- [78] T. Zanon-Willette, A.D. Ludlow, S. Blatt, M.M. Boyd, E. Arimondo, Jun Ye. **Cancellation of Stark shifts in optical lattice clocks by use of pulsed Raman and electromagnetically induced transparency techniques.** *Phys. Rev. Lett.*, **97** :233001, 2006.
- [79] R.H. Dicke. **The effect of collisions upon the Doppler width of spectral lines.** *Phys. Rev.*, **89** :472, 1953.
- [80] H.G. Dehmelt, . **Slow spin relaxation of optically polarized sodium atoms.** *Phys. Rev.*, **105** :1487, 1957.
- [81] S. Brandt, A. Nagel, R. Wynands, D. Meschede. **Buffer gas induced linewidth reduction of coherent dark resonances to below 50 Hz.** *Phys. Rev. A.*, **56** :R1063, 1997.
- [82] M. Erhard, H. Helm. **Buffer-gas effects on dark resonances : Theory and experiment.** *Phys. Rev. A.*, **63** :043813, 2001.
- [83] A. Aspect, E. Arimondo, R. Kaiser, N. Vansteenkiste, and C. Cohen-Tannoudji . **Laser cooling below the one-photon recoil energy by velocity-selective coherent population trapping.** *Phys. Rev. Lett.*, **79** :826, 1988.
- [84] A. Aspect, E. Arimondo, R. Kaiser, N. Vansteenkiste, and C. Cohen-Tannoudji . **Laser cooling below the one-photon recoil energy by velocity-selective coherent population trapping : theoretical analysis.** *J. Opt. Soc. Am. B.*, **6** :2112, 1989.
- [85] B. Saubaméa, T. W. Hijmans, S. Kulin, E. Rasel, E. Peik, M. Leduc, and C. Cohen-Tannoudji . **Direct measurement of the spatial correlation function of ultracold atoms.** *Phys. Rev. Lett.*, **79** :3146, 1997.
- [86] M.O. Scully and S.Y. Zhu . **Degenerate quantum-beat laser : lasing without inversion and inversion without lasing.** *Phys. Rev. Lett.*, **62** :2813, 1989.
- [87] G.G. Padmabandu, G.R. Welch, I.N. Shubin, E.S. Fry, D.E. Nikonov, M.D. Lukin, and M.O. Scully . **Laser oscillation without population inversion in a sodium atomic beam.** *Phys. Rev. Lett.*, **76** :2053, 1996.

- [88] S.E. Harris, L.V. Hau. **Nonlinear optics at low light levels.** *Phys. Rev. Lett.*, **82** :4611, 1999.
- [89] D. Budker, D.F. Kimball, S.M. Rochester, and V.V. Yashchuk. **Nonlinear magneto-optics and reduced group velocity of light in atomic vapor with slow ground state relaxation.** *Phys. Rev. Lett.*, **83** :1767, 1999.
- [90] O. Kocharovskaya, Y. Rostovtsev, and M.O. Scully. **Stopping light via hot atoms.** *Phys. Rev. Lett.*, **86** :628, 2001.
- [91] C. Affolderbach, M. Stähler, S. Knappe, R. Wynands. **An all-optical, high-sensitivity magnetic gradiometer.** *Appl. Phys. B*, **75** :605, 2002.
- [92] J.E. Thomas, S. Ezekiel, C.C. Leiby Jr, R.H. Picard, C.R. Willis. **Ultrahigh-resolution spectroscopy and frequency standards in the micro-wave and far-infrared region using optical lasers.** *Opt. Lett.*, **6** :298, 1981.
- [93] B.W. Shore, K. Bergmann, J. Oreg, S. Rosenwaks. **Multilevel adiabatic population transfer.** *Phys. Rev. A*, **44** :7442, 1991.
- [94] J. Lawall, M. Prentiss. **Demonstration of a novel atomic beam splitter.** *Phys. Rev. Lett.*, **72** :993, 1994.
- [95] M.D. Lukin. **Colloquium : Trapping and manipulating photon states in atomic ensembles.** *Rev. Mod. Phys.*, **75** :457, 2003.
- [96] Claude N. Cohen-Tannoudji. **Nobel Lecture : Manipulating atoms with photons.** *Rev. Mod. Phys.*, **70** :707, 1997.
- [97] R. Wynands, A. Nagel. **Precision spectroscopy with coherent dark states.** *Appl. Phys. B*, **6** :1, 1999.
- [98] R.G. Brewer, E.L. Hahn. **Coherent two-photon process : Transient and steady state cases.** *Phys. Rev. A*, **11** :1641, 1975.
- [99] R. Salomaa, S. Stenholm. **Two-photon spectroscopy II. Effects of residual Doppler broadening.** *J. Phys. B : At. Mol. Phys.*, **9** :1221, 1976.
- [100] R. Salomaa. **Two-photon spectroscopy III. General strong-field aspect.** *J. Phys. B : At. Mol. Phys.*, **10** :3005, 1977.
- [101] R.M. Whitley, C.R. Stroud. **Double optical resonance.** *Phys. Rev. A*, **14** :1498, 1976.
- [102] S. Swain. **Conditions for population trapping in a three level system.** *J. Phys. B : At. Mol. Phys.*, **15** :3405, 1982.
- [103] P.L. Kelley, P.J. Harshman, O. Blum, T.K. Gustafson. **Radiative renormalisation analysis of optical double resonance.** *J. Opt. Soc. Am. B*, **11** :2298, 1994.
- [104] K. Moler, D.S. Weiss, M. Kasevich, S. Chu. **Theoretical analysis of velocity-selective Raman transitions.** *Phys. Rev. A*, **45** :342, 1992.
- [105] P.M. Radmore, P.L. Knight. **Population Trapping and dispersion in a three level system.** *J. Phys. B : At. Mol. Phys.*, **15** :561, 1982.
- [106] Y. Stalgies, L. Siemers, B. Appasamy, P.E. Toschek. **Light shift and Fano resonances in a single cold ion.** *J. Opt. Soc. Am. B*, **15** :2505, 1998.
- [107] S. Shahriar, P.R. Hemmer, D.P. Katz, A. Lee, M.G. Prentiss. **Dark-state-based three-element vector model for the stimulated Raman interaction.** *Phys. Rev. A*, **55** :2272, 1997.

- [108] P.R. Berman, R. Salomaa. **Comparison between dressed-atom and bare-atom pictures in laser spectroscopy.** *Phys. Rev. A.*, **25** :2667, 1982.
- [109] P.R. Hemmer, M.S. Shahriar, V.D. Natoli, S. Ezekiel. **AC Stark-shifts in a two-zone Raman interaction.** *J. Soc. Am. B.*, **6** :1519, 1989.
- [110] S.J. Park, H. Cho, T. Y. Kwon, H. S. Lee. **Transient coherence oscillation induced by a detuned Raman field in a rubidium  $\Lambda$  system.** *Phys. Rev. A.*, **69** :02806, 2004.
- [111] C. Champenois, G. Morigi, J. Eschner. **Quantum coherence and population trapping in three-photon processes.** *Phys. Rev. A.*, **74** :053404, 2006.
- [112] G. Janik, W. Nagourney, H. Dehmelt. **Doppler-free optical spectroscopy on the  $Ba^+$  mono-ion oscillator.** *J. Opt. Soc. Am. B.*, **2** :1251, 1985.
- [113] M.G. Stepanov. **Autler-Townes doublet probed by strong field.** *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, **32** :649, 1999.
- [114] A.V. Taichenachev, V.I. Yudin, R. Wynands, M. Stähler, J. Kitching, L. Hollberg. **Theory of dark resonances for alkali-metal atom vapors in a buffer-gas cell.** *Phys. Rev. A.*, **67** :033810, 2003.
- [115] H. Lee, Y. Rostovtsev, C.J. Bednar, A. Javan. **From laser-induced line narrowing to electromagnetically induced transparency : closed system analysis.** *Appl. Phys. B.*, **76** :33, 2003.
- [116] Y. Wu, X. Yang. **Electromagnetically induced transparency in V- $\Lambda$  and cascade-type schemes beyond steady-state analysis.** *Phys. Rev. A.*, **71** :053806, 2005.
- [117] C. Cohen-Tannoudji. **Effect of a non resonant irradiation on atomic energy levels, Application to lights-shifts in two photon spectroscopy and to perturbation of Rydberg states.** *Metrologia*, **13** :161, 1977.
- [118] F. Levi, A ; Godone, J. Vanier. **The light shift effect in the coherent population trapping cesium maser.** *IEEE Trans. on Ultra. Ferro and Freq. Control.*, **47** :466, 2000.
- [119] S. Micalizio A. Godone, F. Levi. *Coherent Population Trapping Maser.* CLUT/Torino, 2002.
- [120] I.V. Jyotsna, G.S. Agarwal. **Coherent population trapping at low light levels.** *Phys. Rev. A.*, **52** :3147, 1995.
- [121] M. Sargent III, P. Horwitz. **Three level Rabi flopping.** *Phys. Rev. A.*, **13** :1962, 1976.
- [122] D. Grischkowsky, M.M. T. Loy, P.F. Liao. **Adiabatic following model for two-photon transitions : Nonlinear mixing and pulse propagation.** *Phys. Rev. A.*, **12** :2514, 1975.
- [123] J.R. Ackerhalt, J.H. Eberly, R.W. Shore. **Statistical broadening and population loss in strongly excited three-level systems.** *Phys. Rev. A.*, **19** :248, 1979.
- [124] L. Kancheva, D. Pushkarov, S. Rashev. **Quasi-levels and dynamics of a three-level system.** *J. Phys. B : At. Mol. Phys.*, **14** :573, 1981.
- [125] A.S. Shumovsky, E.I. Aliskenderov, Fam Le Kien. **Coherent trapping of populations in a three-level two-mode model with multiphoton transitions.** *Phys. Lett. A.*, **120** :401, 1987.

- [126] A.S. Pazgalev, Y.V. Rozhdestvenskii. **Coherent scattering of three-level atoms in the field of a bichromatic standing light wave.** *Zh. Eksp. Teor. Fiz.*, **109** :1079, 1996.
- [127] J. Vanier ;C. Audoin. *The quantum physics of atomic frequency standards.* Adam Hilger, Bristol, 1989.
- [128] J. Kitching, S. Knappe, N. Vukicevic, L. Hollberg, R. Wynands, W. Weidmann. **A microwave frequency reference based on VCSEL-driven dark line resonances in Cs vapor.** *IEEE Trans. on Inst. and Meas.*, **49** :1313, 2000.
- [129] S. Knappe, R. Wynands, J. Kitching, H. Robinson, L. Hollberg. **Characterization of coherent population-trapping resonances as atomic frequency references.** *J. opt. Soc. Am. B.*, **18** :1545, 2001.
- [130] M. Merimaa, T. Lindvall, I. Tittonen, E. Ikonen. **All-optical atomic clock based on coherent population trapping in  $^{85}\text{Rb}$ .** *J. Opt. Soc. Am. B.*, **20** :273, 2003.
- [131] J. Vanier, M. Levine, S. Kendig, D. Janssen, C. Everson, M. Delaney. **Practical realization of a passive Coherent Population Trapping frequency standard.** *Proceedings of Int. Freq. Control Symposium, Montréal, Canada,* :92, 2004.
- [132] S.B. Ross, S.I. Kanorsky, A. Weiss, T.W. Hänsch. **A single mode, cw, diode laser at the cesium  $D_1$  (894,59 nm).** *Opt. Com.*, **120** :155, 1995.
- [133] D. Cassettari, E. Arimondo, P. Verkek. **External-cavity broad-area laser diode operating on the  $D_1$  line of cesium.** *Opt. Lett.*, **23** :1135, 1998.
- [134] A. Andalkar, S.K. Lamoreaux, R.B. Warrington. **External cavity diode laser system for Cesium  $D_1$  (894 nm).** *Rev. Sci. Instrum.*, **71** :4029, 2000.
- [135] G. Santarelli, A. Clairon, S.N. Lea, G.M. Tino. **Heterodyne optical phase-locking of the extended-cavity semiconductor lasers at 9 GHz.** *Opt. Com.*, **104** :339, 1994.
- [136] G. Santarelli. *Contribution à la réalisation d'une fontaine atomique.* Thèse de doctorat de l'Université Paris VI, 1996.
- [137] D.F. Phillips, I. Novikova, C. Wang, R. Walsworth, M. Crescimanno. **Modulation-induced frequency-shifts in a coherent-population-trapping based atomic clock.** *J. opt. Soc. Am. B.*, **22** :305, 2004.
- [138] A. Andalkar, R.B. Warrington. **High-resolution measurement of the pressure broadening and shift of the Cs  $D_1$  and  $D_2$  lines by  $N_2$  and He buffer gases.** *Phys. Rev. A.*, **65** :032708, 2002.
- [139] W. Happer. **Optical pumping.** *Rev. Mod. Phys.*, **44** :169, 1972.
- [140] M. Arditi, T.R. Carver. **Pressure, light, and temperature shifts in optical detection of 0-0 hyperfine resonance of alkali atoms.** *Phys. Rev.*, **124** :800, 1961.
- [141] J. Vanier, R. Kunski, N. Cyr, J.Y. Savard, M. Têtu. **On hyperfine frequency shifts caused by buffer gases : Application to optically pumped passive rubidium frequency standard.** *J. Appl. Phys.*, **53** :5387, 1982.
- [142] J. Vanier, M. Levine, D. Janssen, M. Delaney. **Contrast and linewidth of the coherent population trapping transmission hyperfine resonance line in  $^{87}\text{Rb}$  : Effect of optical pumping.** *Phys. Rev. A.*, **67** :065801, 2003.

- [143] W. Maichen, F. Renzoni, I. Mazets, E. Korsunsky, L. Windholz. **Transient coherent population trapping in a closed loop interaction scheme.** *Phys. Rev. A.*, **53** :3444, 1996.
- [144] E.A. Korsunsky, D.V. Kosachiov. **Phase-dependant nonlinear optics with double- $\Lambda$  atoms.** *Phys. Rev. A.*, **60** :4996, 1999.
- [145] Y.Y. Jau, E. Miron, A.B. Post, N.N. Kuzma, W. Happer. **Push-Pull optical pumping of pure superposition states.** *Phys. Rev. Lett.*, **93** :160802, 2004.
- [146] A.V. Taichenachev, V.I. Yudin, V.L. Velichansky, S.V. Kargapoltsev, R. Wynands, J. Kitching, L. Hollberg. **High-contrast dark resonances on the  $D_1$  line of Alkali metals in the field of counterpropagating waves.** *JETP. Lett.*, **80** :236, 2004.
- [147] S.V. Kargapoltsev, J. Kitching, L. Hollberg, A.V. Taichenachev, V.L. Velichansky, V.I. Yudin. **High-contrast dark resonance in  $\sigma^+ - \sigma^-$  optical field.** *Laser. Phys. Lett.*, **1** :495, 2004.
- [148] T. Zanon, S. Guerandel, E. de Clercq, D. Holleville, N. Dimarcq, A. clairon. **High contrast Ramsey fringes with Coherent-Population-Trapping pulses in a double lambda scheme.** *Phys. Rev. Lett.*, **94** :193002, 2005.
- [149] R.G. Brewer, R.L. Schoemaker. **Photon echo and optical nutation in molecules.** *Phys.Rev. Lett.*, **27** :631, 1971.
- [150] R.G. Brewer, R.L. Schoemaker. **Optical free induction decay.** *Phys.Rev. A.*, **6** :2001, 1972.
- [151] R.G. Brewer, E.L. Hahn. **Coherent Raman beats.** *Phys. Rev. A.*, **8** :464, 1973.
- [152] F.A. Hopf, R. Shea, M.O. Scully. **Theory of optical free-induction decay and two photon superradiance.** *Phys. Rev. A.*, **7** :2105, 1973.
- [153] B.A. Jacobsohn, R. Wangsness. **Shape of Nuclear Induction Signals.** *Phys. Rev.*, **73** :942, 1948.
- [154] J.C. Camparo, R.P. Frueholz. **Parameters of adiabatic rapid passage in the  $0 - 0$  hyperfine transitions of  $^{87}\text{Rb}$ .** *Phys. Rev. A.*, **30** :803, 1984.
- [155] J. kitching, L. Hollberg, S. Knappe, R. Wynands. **Compact atomic clock based on coherent population trapping.** *Elec. Lett.*, **37** :24, 2001.
- [156] J. Kitching, S. Knappe, L. Hollberg. **Miniature vapor-cell atomic-frequency references.** *Appl. Phys. Lett.*, **81** :553, 2002.
- [157] A. Godone, S. Micalizio, F. Levi. **Pulsed optically pumped frequency standard.** *Phys. Rev. A.*, **70** :023409, 2004.
- [158] A. Godone, F. Levi, S. Micalizio, C. Calosso. **Coherent-population-trapping maser : Noise spectrum and frequency stability.** *Phys. Rev. A.*, **70** :012508, 2004.
- [159] H. Katory, M. Takamoto, V. G. Pal'chikov, V. D. Ovsianikov. **Ultrastable optical clock with neutral atoms in an engineered light shift trap.** *Phys. Rev. Lett.*, **91** :173005, 2003.
- [160] J.J. Longdell, E. Fraval, M.J. Sellars, N.B Manson. **Stopped Light with Storage Times Greater than One Second Using Electromagnetically Induced Transparency in a Solid.** *Phys. Rev. Lett.*, **95** :063601, 2005.

- [161] R. Kolesov. **Coherent population trapping in ruby crystal at room temperature.** *Phys. Rev. A.*, **72** :051801(R), 2005.
- [162] E. Fraval, M.J. Sellars, J.J. Longdell. **Dynamic Decoherence Control of a Solid-State Nuclear-Quadrupole Qubit.** *Phys. Rev. Lett.*, **95** :030506, 2005.
- [163] M.K. Kim, B.S. Ham, P.R. Hemmer, M.S. Shahriar. **Observation of sub-kilohertz resonance in rf-optical double resonance experiment in rare earth ions in solids.** *J. Mod. Opt.*, **47** :1713, 2000.
- [164] A.V. Turukhin, V.S. Sudarshanam, M.S. Shahriar, J.A. Musser, B.S. Ham, P.R. Hemmer. **Observation of ultraslow and stored light pulses in a solid.** *Phys. Rev. Lett.*, **88** :023602, 2001.
- [165] B.S. Ham, P.R. Hemmer, M.S. Shahriar. **Efficient phase conjugation via two-photon coherence in an optically dense crystal.** *Phys. Rev. A.*, **59** :R2583, 1999.
- [166] R.W. Equall, Y.Sun, R.L. Cone, R.M. Macfarlane. **Ultraslow optical dephasing in  $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ .** *Phys. Rev. Lett.*, **72** :2179, 1997.
- [167] P.B. Sellin, N.M. Strickland, T. Bottger, J.L. Carsten, R.L. Cone. **Laser stabilization at 1536 nm using regenerative spectral hole burning.** *Phys. Rev. B.*, **63** :155111, 2001.
- [168] R. Kolesov, M. Scully, O. Kocharovskaya. **Manipulation of Zeeman coherence in solids at room temperature : Ramsey interference in the coherent-population-trapping spectrum of Ruby.** *Phys. Rev. A.*, **74** :053820, 2006.
- [169] S. Swain. **Generalised multiphoton rate equations.** *J. Phys. B : At. Mol. Phys.*, **13** :2375, 1980.

## Résumé

La thèse présente une nouvelle méthode d'interrogation d'une transition atomique à partir d'une séquence temporelle d'impulsions de piégeage cohérent de population (Coherent Population Trapping). Chaque impulsion sert pour la préparation, la détection et le renouvellement de la superposition d'états et permet des réaliser des franges d'oscillation de résonance noire sans aucune préparation atomique initiale. La méthode, développée sur une vapeur thermique de Césium en régime Lamb-Dicke, combine le profil de résonance obtenu pendant une interaction impulsionnelle des atomes avec la lumière CPT et les oscillations entre l'état noir  $|\Psi_{NC}\rangle$  et l'état radiatif couplé  $|\Psi_{+}\rangle$ . La largeur à mi-hauteur de la frange centrale suit une loi de type Ramsey en  $1/2T$ . Dans l'expérience réalisée, différentes séquences d'impulsions CPT sont appliquées en fonction de la durée caractéristique de pompage optique dans l'état noir et conduisent à l'observation de franges aussi étroites que 60 Hz sur une fréquence de référence de 10 GHz. La réalisation du couplage  $\text{Lin}\perp\text{Lin}$  en configuration double lambda a permis de modifier la distribution des atomes entre les niveaux hyperfins Zeeman du Cs et de réduire fortement la perte de population sur les sous-niveaux extrêmes. Une étude théorique est menée à partir du formalisme de la matrice densité et de la fonction d'onde complexe qui permet de d'évaluer les déphasages optiques accumulés au cours de l'interaction lumière-atome en régime transitoire ou stationnaire. Le modèle de la fonction d'onde introduit une quantité complexe sur les positions en énergie des niveaux atomiques et permet de calculer les déplacements de fréquence associés uniquement aux déphasages optiques du régime transitoire. Lorsque une relaxation de la cohérence entre les niveaux d'horloges est prise en compte, un faible déplacement de la fréquence de résonance est aussi mis en évidence. Au cours de la thèse, la technique du train d'impulsions CPT a été mise au point et élimine pratiquement les temps morts entre chaque cycle d'interrogation de la fréquence d'horloge.

## Mots-clefs

*Piégeage cohérent de population, résonance noire, transparence induite électromagnétiquement, transitions Raman stimulées, interrogation de Ramsey, horloges atomiques, déplacement lumineux, régime Lamb-Dicke, spectroscopie des fréquences atomiques.*

## Abstract

We have developed a new method of pulsed interrogation of an atomic transition based on coherent population trapping. In contrast to CPT interrogation in a continuous wave excitation, we show that the pulsed method leads to narrow fringes scaling as  $1/2T$  where  $T$  is the duration between pulses. As each pulse serves for the creation and detection of the atomic coherence, this technique allows us to realise Raman-Ramsey or Dark Resonance fringes without any initial atomic preparation. The theoretic predictions are verified experimentally using thermal Cs atoms in a buffer gas cell. Two phase-locked lasers tuned near the optical transitions of Cs D1 line induce a coupling between the two hyperfine ground states. Pulsing the laser light probes the 9.2 GHz clock transition similarly to Ramsey interrogation. The narrowest observed fringe width is around 60 Hz limited in resolution by atomic collisions with the buffer gas. When a hyperfine relaxation of the coherence between the clock states is introduced, a slight shift occurs. Finally, the CPT pulse train is proposed to eliminate any dead time between each interrogation cycle of the clock transition. In summary, our method achieves high resolution spectroscopy with separated CPT fields in order to dilute systematic frequency shifts over the free evolution time  $T$ . This also eliminates power broadening of the clock transition which will always appear for continuous excitation. Our model includes external frequency shifts with a density matrix formalism combining precision measurements and quantum optics. Pulse sequences are designed that mix coherent steady states and optical transient nutations with a free evolution time of a ground state coherence. Armed with a set of EIT/Raman Bloch-like equations of motion to describe general composite pulses, dynamical solutions can be used for transient experiments requiring such preparation of coherent states. Phase shifts of internal atomic wave functions can be controlled to engineer a robust coherence while minimizing ac Stark shifts. Atomic states are manipulated via a time resolved detection by monitoring fluorescence, absorption or population transfer. As we shall show, the sensitivity to be expected from detection of such transients is often comparable and in some cases superior to that obtainable from steady state interrogation.

## Key words

*Coherent population trapping (CPT), dark resonance, electromagnetically induced transparency (EIT), stimulated Raman transitions, Ramsey interrogation, atomic clocks, light-shift, Lamb-Dicke regime, atomic spectroscopy.*