



HAL
open science

Manipulation optique d'une cohérence de spin nucléaire dans l'ion thulium en matrice cristalline

Anne Louchet

► **To cite this version:**

Anne Louchet. Manipulation optique d'une cohérence de spin nucléaire dans l'ion thulium en matrice cristalline. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Paris Sud - Paris XI, 2008. Français. NNT: . tel-00345345

HAL Id: tel-00345345

<https://theses.hal.science/tel-00345345>

Submitted on 8 Dec 2008

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.

ORSAY

N° d'ordre : 9161

UNIVERSITÉ PARIS-XI
U.F.R. SCIENTIFIQUE D'ORSAY

THÈSE

présentée pour obtenir le grade de

DOCTEUR EN SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ PARIS-XI

par

ANNE LOUCHET

**Manipulation optique d'une cohérence de spin nucléaire dans
l'ion thulium en matrice cristalline**

Soutenue le 25 septembre 2008 devant la commission d'examen composée de :

M. Mikael AFZELIUS	Rapporteur
Mme Marie-France JOUBERT	Président du jury
M. Jean-Louis LE GOUËT	Directeur de thèse
M. Juan-Ariel LEVENSON	Rapporteur
M. Nicolas TREPS	Examineur
M. Christoph WESTBROOK	Examineur

Laboratoire Aimé Cotton - Campus scientifique d'Orsay

Remerciements

Les travaux que je présente ici ont été réalisés au Laboratoire Aimé Cotton, à Orsay, entre mars 2005 et septembre 2008. Je remercie le directeur du LAC, Pierre Pillet, de m'y avoir accueillie.

Je voudrais remercier mon directeur de thèse Jean-Louis Le Gouët pour son soutien et sa gentillesse. J'espère avoir été à la hauteur de la confiance qu'il m'a accordée. Sa vaste culture, son oreille attentive, sa motivation sans faille m'ont aidée à mener ce travail jusqu'à son terme. Merci aussi pour l'organisation des "retraites" à Perreuse, lieu de brainstorming et de détente sans égal.

Je voudrais remercier chaleureusement Ivan Lorgeré pour ses multiples talents de physicien, de navigateur, et de musicien. Il m'a beaucoup appris dans tous ces domaines. J'espère qu'on aura l'occasion de partager à nouveau ces passions communes !

Je remercie Thierry Chanelière pour sa gentillesse et son aide depuis son arrivée dans l'équipe. Jamais à court d'idées, et toujours une petite anecdote marrante à raconter.

Je remercie aussi Fabien Bretenaker pour sa bonne humeur et les critiques toujours constructives qu'il a su me donner.

J'ai eu la chance d'être moniteur à l'IUT d'Orsay pendant 2 ans. Je voudrais remercier ici toutes les personnes qui ont contribué au bon déroulement de mes enseignements, en particulier Fabienne Goldfarb, Rosa Tualle-Brouiri, Alain Angel et le personnel administratif de l'IUT qui se sont tous montrés disponibles et compréhensifs pour ma première expérience d'enseignement.

Je remercie également le tandem des chimistes Philippe Goldner et Olivier Guillot-Noël, du LCMCP à Paris, pour leur point de vue original sur nos manips, leurs conseils d'avenir, et puis leur amitié !

Cette thèse n'aurait pas été possible sans l'aide des services techniques et administratifs du laboratoire, en particulier les ateliers de mécanique et de chaudronnerie. Je les remercie pour leur gentillesse et leur disponibilité.

Yann Le Du m'a rejointe pour l'année 2006-2007 sur la manip. Je lui dois entre autres l'automatisation de plusieurs éléments de la manip, ce qui nous a rendu de fiers services.

Merci pour toutes les passionnantes discussions que nous avons échangées, scientifiques ou non. Il a été suivi par la pétillante Annabel Alexander. Je voudrais la remercier pour son efficacité, sa persévérance et sa bonne humeur communicatives.

Parmi les anciens thésards, je voudrais remercier spécialement le binôme infernal, composé de Sa Majesté Vincent Crozatier, guitariste hors pair, et de Guillaume Gorju, grimpeur émérite. Merci à tous les deux pour votre sens de l'humour, et les innombrables occasions à fêter... Je suis fière d'avoir suivi vos traces au sein de l'équipe.

Merci aussi à Frédéric de Seze pour avoir nettement déblayé le terrain du thulium avant mon arrivée.

Que soient ici remerciés mes collègues thésards, Amodsen, Matthieu, Rachidi, Michael et Mariela pour leur amitié. Bon courage pour la dernière ligne droite ! Je souhaite également bonne route aux jeunes thésards du groupe, Hien, Jérôme et Vianney, et surtout à Romain qui reprend le flambeau.

Je remercie Benoît Lantin et Romain Guérout, mes sympathiques et compréhensifs collègues de bureau. J'ai une pensée pour les aînés dont j'ai suivi la noble carrière, Walid, Pierre, Elodie, Guillaume, et tous les autres que j'oublie. Merci aussi à l'équipage de l'"Adagio" lors de la mémorable régata du CNRS en octobre 2007, aux organisateurs des FLACs, et aux membres du Grand Orchestre du LAC pour ces moments de détente et de franche rigolade.

Je remercie les membres de mon jury, Mikael Afzelius et Ariel Levenson qui ont accepté d'être les rapporteurs de mon manuscrit, ainsi que Chris Westbrook, Marie-France Joubert et Nicolas Treps, pour l'intérêt qu'ils ont porté à mon travail.

Et comme il y a une vie à l'extérieur du laboratoire, je ne saurais trop remercier également mes amis musiciens, Achor, le quatuor, et l'orchestre symphonique du campus d'Orsay. Notre tournée en Chine restera gravée dans ma mémoire ! Merci à mes collègues marcheurs, cyclistes, navigateurs et grimpeurs de tout poil.

Cette thèse est naturellement dédiée à ma famille et à mes amis qui m'ont accompagnée pendant ces 3 ans, et plus particulièrement à Xavier.

Table des matières

Introduction générale	9
1 Les ions de terre rare en matrice cristalline	15
1.1 Présentation générale	16
1.2 Propriétés physico-chimiques	16
1.3 Niveaux d'énergie	18
1.3.1 Hamiltonien du système	18
1.3.2 Symétrie par renversement du temps et dégénérescence de Kramers	19
1.3.3 Interaction magnétique et structure hyperfine	22
1.4 Elargissement homogène et inhomogène	26
1.4.1 Largeur inhomogène	27
1.4.2 Largeur homogène	27
1.5 Choix de l'ion et de la matrice	32
1.6 Tm^{3+} :YAG	34
1.7 Pr^{3+} :YSO	36
2 Construction d'un système en Λ dans le Tm^{3+} :YAG	39
2.1 Introduction	40
2.2 Cadre théorique	42
2.2.1 Orientation des dipôles dans les sites de l'yttrium	42
2.2.2 Construction d'un système en Λ	45
2.2.3 Optimisation du champ magnétique appliqué	49
2.2.4 Splittings et rapport de branchement pour différents sites	53
2.3 Expérience	58
2.3.1 Démarche expérimentale	58
2.3.2 Montage	60
2.3.3 Techniques mises en œuvre	62
2.4 Résultats expérimentaux	71
2.4.1 Mesure du tenseur gyromagnétique	71

TABLE DES MATIÈRES

2.4.2	Durée de vie des populations	77
2.4.3	Elargissement inhomogène Raman	80
2.4.4	Mesure directe du rapport de branchement	85
2.5	Conclusion	95
3	Manipulation optique d'une cohérence de spin : principes et théorie	97
3.1	Historique du domaine	98
3.1.1	Détection des populations dans les sous-niveaux de spin	98
3.1.2	Détection d'une cohérence de spin	99
3.2	Analyse théorique	105
3.2.1	Motivation	105
3.2.2	Absorption linéaire et diffusion Raman cohérente	106
3.2.3	Excitation optique de la cohérence Raman par une impulsion monochromatique	112
3.2.4	Excitation optique d'une cohérence de spin par une impulsion bichromatique	114
3.2.5	Impulsion rephasante : écho Raman	125
3.3	Conclusion	127
4	Etude d'une onde de spin dans le Tm^{3+} :YAG	129
4.1	Battements Raman cohérents dans le Tm :YAG	130
4.1.1	Battements Raman cohérents dans l'état excité	130
4.1.2	Battements Raman cohérents dans l'état fondamental	136
4.2	Extension de l'étude théorique à un système à 4 niveaux	139
4.2.1	Excitation d'une cohérence de spin par une impulsion bichromatique	139
4.2.2	Détection d'une cohérence de spin dans un système à 4 niveaux	144
4.2.3	Impulsion rephasante	146
4.3	Résultats expérimentaux	147
4.3.1	Dispositif expérimental	147
4.3.2	Élimination de l'écho de photon	150
4.3.3	Optimisation expérimentale du signal	156
4.3.4	Mesure de T_2	159
4.4	Origine de la relaxation des cohérences Raman	162
4.4.1	Mécanismes responsables de la décohérence	162
4.4.2	Comparaison avec les résultats expérimentaux	164
4.4.3	Bilan	166
4.5	Conclusion	168

5	Passage adiabatique par effet Raman stimulé (STIRAP)	171
5.1	Transferts de population dans un système en Λ	172
5.2	Le STIRAP : principes généraux	175
5.2.1	Description théorique du STIRAP dans un système à 3 niveaux . .	175
5.2.2	STIRAP dans un système réel	179
5.3	Expériences	181
5.3.1	Dispositif expérimental	181
5.3.2	Séquence d'impulsions	181
5.4	Résultats expérimentaux	185
5.4.1	Mesure de l'efficacité de transfert	185
5.4.2	Largeur optique des atomes transférés	188
5.4.3	Signature du STIRAP	189
5.5	Conclusion	190
	Conclusion générale	191

TABLE DES MATIÈRES

Introduction générale

On sait depuis longtemps préparer des états quantiques collectifs de la matière [1], par exemple en excitant un ensemble d'atomes avec un champ électromagnétique résonnant. Ces états sont habituellement décrits comme des états séparables, où chaque atome peut être considéré indépendamment. La préparation de ces états peut être réalisée à l'aide de processus transitoires cohérents, comme les techniques de résonance magnétique nucléaire [2, 3], les échos de photons [4], ou encore la transparence auto-induite [5]. Ces processus permettent d'enregistrer et de restituer les propriétés spectro-temporelles et spatiales du champ. En effet, en tant qu'objets quantiques, les atomes peuvent enregistrer la phase du champ exciteur.

De nombreuses équipes de recherche travaillent aujourd'hui à la réalisation d'une mémoire quantique optique, c'est-à-dire un système atomique qui serait capable d'enregistrer un signal lumineux, puis de restituer à la demande un signal possédant non seulement les mêmes propriétés spectro-temporelles et spatiales, mais aussi les mêmes propriétés statistiques quantiques que le champ incident. Pour cela, les états atomiques résultant de l'enregistrement d'un champ non classique doivent être décrits par des états intriqués, et non plus seulement par des états séparables. C'est le cas par exemple pour l'excitation unique distribuée sur un ensemble d'atomes telle qu'elle est décrite par Dicke [6, 7].

Pour parvenir à enregistrer les propriétés non classiques d'un champ dans un système matériel, il faut que la lumière soit totalement convertie en excitation atomique. Pour cela, un couplage fort entre la lumière et la matière est nécessaire. Ce couplage peut être obtenu par l'excitation résonnante d'une transition atomique. Cependant, l'interaction avec un seul atome reste insuffisante pour piéger efficacement un photon. On peut augmenter ce couplage en plaçant par exemple l'atome dans une cavité de très grande finesse. Des techniques permettant de transférer l'état quantique de la lumière à un atome isolé dans une cavité ont été développées [8]. Des expériences démontrant la possibilité d'un tel transfert entre un photon unique et un système individuel ont été réalisées : ce système peut être constitué d'un atome de Rydberg en cavité [9], d'un ion piégé [10], ou d'un atome neutre en cavité [11]. Cependant, il est impossible de restituer à la demande le champ piégé dans un atome en cavité. Pour pouvoir restituer le champ incident à la

demande, tout en bénéficiant d'un couplage atome-champ important, on se tourne vers des systèmes atomiques opaques, constitués d'un grand nombre d'atomes.

Pour contrôler l'interaction du signal avec un grand nombre d'atomes, il est naturel de recourir à une autre transition optique, couplée à celle qui interagit avec le champ. Un couplage simple est possible lorsque les deux transitions partagent un niveau commun, en particulier si les atomes présentent un système à 3 niveaux en Λ , où un niveau supérieur commun est couplé optiquement à deux sous-niveaux d'un état fondamental (voir la figure 1). Différents protocoles prometteurs reposent sur l'utilisation d'un tel système à 3 niveaux en Λ . On peut les décrire schématiquement de la manière suivante. Le champ incident à enregistrer excite l'une des deux transitions du Λ et crée une cohérence optique selon cette transition. Le champ de contrôle appliqué selon l'autre transition du Λ permet de convertir la cohérence optique en une cohérence Raman entre les sous-niveaux fondamentaux. Le champ incident est alors enregistré sous la forme d'un état de superposition entre les sous-niveaux fondamentaux. Cet état est insensible à la décohérence par émission spontanée. L'impulsion lumineuse peut être stockée pendant un temps limité par la durée de vie des cohérences entre les sous-niveaux de l'état fondamental. Le signal peut ensuite être restitué à un moment choisi, en effectuant l'opération inverse qui convertit l'état de superposition atomique en une cohérence optique selon la transition initialement excitée par le champ incident.

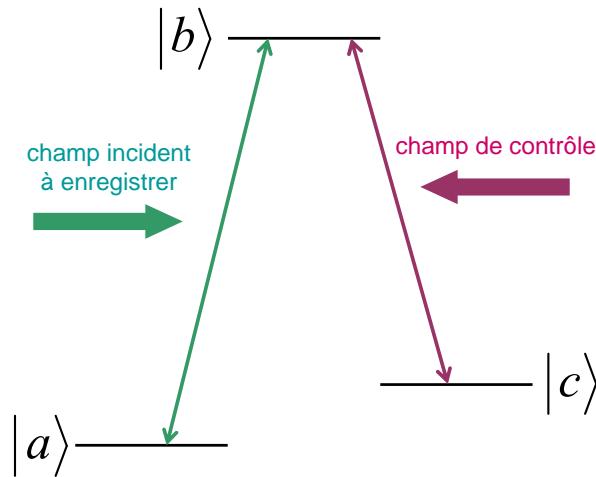


FIG. 1 – Système à trois niveaux en Λ . Les deux sous-niveaux fondamentaux $|a\rangle$ et $|c\rangle$ sont couplés à un même niveau excité par des transitions optiques. Le champ à enregistrer excite l'une des transitions du Λ . Le champ de contrôle, qui excite l'autre transition du Λ , permet de convertir cette excitation optique en un état de superposition entre les sous-niveaux $|a\rangle$ et $|c\rangle$.

Parmi les protocoles de mémoire quantique basés sur un système à 3 niveaux en Λ , on

peut distinguer d'une part ceux où le signal à enregistrer crée dans le système atomique une cohérence optique qui sera ensuite convertie en cohérence Raman, et d'autre part ceux où l'excitation est directement convertie en cohérence Raman, grâce à l'inhibition de la cohérence optique. Ainsi, le protocole dit de CRIB, basé sur un écho de photon assisté par la construction d'un élargissement inhomogène optique contrôlé [12, 13, 14, 15, 16, 17], et le protocole AFC, basé sur un peigne de fréquences atomique (AFC) [18], appartiennent à la première catégorie. En revanche, le protocole basé sur la "lumière arrêtée" (ou *stopped light*) [19], liée à la *transparence induite électromagnétiquement* (ou EIT) [20, 21] appartient à la seconde catégorie.

Une mémoire quantique de type EIT a été réalisée dans le groupe d'Alex Kuzmich, dans un nuage d'atomes froids de rubidium [22, 23]. Un photon unique a été stocké puis restitué au bout de quelques microsecondes.

Les ions de terre rare en matrice cristalline apparaissent comme de bons candidats pour réaliser des opérations démontrant des effets quantiques sur des ensembles atomiques macroscopiques. Ils offrent des propriétés similaires aux vapeurs atomiques avec l'avantage de ne pas présenter de phénomène de diffusion, de la même manière qu'un nuage d'atomes froids. La mise en œuvre d'expériences avec des ions de terre rare est néanmoins plus simple car elle ne nécessite pas de montage complexe pour ralentir optiquement les atomes. Des techniques de spectroscopie haute résolution comme le creusement de trou spectral (spectral hole burning) ou les échos de photons ont été largement utilisées pour étudier la structure hyperfine des ions de terre rare [24]. Les cohérences et les populations peuvent présenter, selon les ions et les cristaux utilisés, des durées de vie particulièrement longues. Contrairement à la plupart des milieux gazeux, les cristaux dopés aux ions de terre rare présentent des transitions optiques non sélectives en polarisation. Pour que chaque transition atomique puisse être excitée individuellement, il est indispensable que les transitions présentent des fréquences de résonance suffisamment séparées par rapport à la largeur spectrale de la source de lumière.

Parmi les différents ions de terre rare disponibles, seuls le praséodyme et l'euporium ont jusqu'ici fait l'objet d'études approfondies dans le domaine de l'excitation optique d'une cohérence de spin dans un système en Λ ou en V . On peut citer des expériences de battements Raman cohérents [25, 26], d'échos Raman [27, 28], de STIRAP (passage adiabatique Raman stimulé) [29], d'EIT [30, 31] et de lumière arrêtée [32, 33]. Comme les protocoles de mémoire quantique, ces différents processus peuvent être classés en deux grandes catégories : les battements Raman cohérents et les échos Raman font partie des

processus où l'on cherche à créer une cohérence optique dans les atomes avant de la convertir en une cohérence Raman, tandis que le STIRAP, l'EIT et la lumière arrêtée s'appuient sur l'inhibition des cohérences optiques.

Pour réaliser des mémoires quantiques dans des cristaux dopés aux ions de terre rare, le fait de devoir travailler à résonance implique de devoir contrôler les cohérences atomiques avec précision. Or, pour contrôler effectivement ces cohérences, il faut disposer d'un laser plus fin spectralement que la raie d'absorption d'un ion (typiquement de l'ordre de quelques kHz à $T = 2$ K). Les longueurs d'onde d'absorption du praséodyme et de l'euporium sont proches de 606 nm pour le Pr et de 580 nm pour l'Eu, et ne sont accessibles que par des lasers à colorant. Ce type de laser est difficile à stabiliser en dessous du MHz sur des durées de l'ordre de la milliseconde, à cause du bruit haute fréquence généré par le jet de colorant. Il existe toutefois plusieurs sources lasers à colorant ultra-stables dans le monde, réalisées en laboratoire spécialement pour la manipulation optique des ions Pr^{3+} et Eu^{3+} [34, 35, 36].

Depuis 25 ans, aucun autre ion de terre rare n'a été envisagé pour mettre en œuvre les expériences citées plus haut. Pourtant, parmi les autres ions de terre rare, le thulium présente à la fois une longueur d'onde d'absorption compatible avec un laser plus facilement stabilisable (793 nm), et des durées de vie des cohérences appréciables [37]. Il n'a pourtant pas suscité d'intérêt, parce que contrairement aux ions Pr ou Eu, il ne présente pas d'emblée une structure hyperfine sur laquelle on pourrait construire un système en Λ . Il possède néanmoins un spin nucléaire non nul ($I = 1/2$). Lorsqu'un cristal dopé aux ions thulium est plongé dans un champ magnétique, les niveaux électroniques se scindent en deux sous-niveaux. L'effet couplé de l'interaction hyperfine et l'interaction Zeeman électronique mélange les états de spin nucléaire et permet de construire le système en Λ recherché, à condition que le champ magnétique soit convenablement orienté.

En outre, l'écart énergétique entre les sous-niveaux hyperfins du thulium est ajustable car proportionnel au champ magnétique appliqué. En appliquant le champ magnétique de l'ordre de 1 tesla, on peut dépasser la bande passante des sources quantiques existantes [38, 39]. Ceci est une particularité de l'ion Tm, puisqu'à la différence des ions Pr et Eu, il ne présente pas de structure hyperfine en champ nul.

Au cours de cette thèse, nous avons cherché à caractériser le plus complètement possible le système à trois niveaux présent dans le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$, dans la perspective d'y réaliser, à terme, des expériences de stockage quantique. Ce manuscrit présente l'ensemble des travaux théoriques et expérimentaux qui ont été réalisés. Il est organisé de la façon suivante.

Le chapitre 1 présente la famille des ions de terre rare insérés dans une matrice

cristalline, et en particulier le cristal de $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ sur lequel porte l'ensemble du travail présenté ici.

Dans le chapitre 2, nous décrivons la construction d'un système à 3 niveaux en Λ dans le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ plongé dans un champ magnétique. Nous y présentons les expériences de spectroscopie par hole-burning du $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ en champ magnétique qui nous ont permis de déterminer l'orientation optimale du champ magnétique par rapport aux axes cristallins. Nous décrivons également la mesure du rapport de branchement entre les probabilités des deux transitions du Λ , le champ magnétique étant orienté dans la direction optimale. Cette mesure a été effectuée à l'aide des techniques de nutation optique et d'écho de photon.

Le chapitre 3 est consacré à la description théorique de la manipulation optique d'une cohérence de spin, dans un système à trois niveaux. La particularité de cette étude théorique est qu'elle prend en compte l'élargissement inhomogène de la transition optique qui caractérise de manière générale les ions de terre rare en matrice cristalline. Nous présentons séparément chacune des étapes dont sont constituées les expériences de battements Raman cohérents et d'échos Raman, c'est-à-dire l'excitation des cohérences de spin par une impulsion optique, l'inversion de leur sens d'évolution par une autre impulsion optique, et la détection optique de ces cohérences de spin.

Dans le chapitre 4, nous présentons les expériences de battements Raman cohérents et d'écho Raman dans le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ qui ont été effectuées au cours de cette thèse. Les échos Raman permettent de mesurer la durée de vie des cohérences de spin, en s'affranchissant de l'élargissement inhomogène sur la transition de spin. Nous avons mesuré la durée de vie des cohérences de spin dans l'état fondamental du Tm , pour des champs magnétiques entre 0, 1 et 2 teslas. Nous décrivons aussi les mécanismes responsables de la relaxation des cohérences de spin nucléaire dans le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$.

Enfin, dans le chapitre 5, nous décrivons les expériences de passage adiabatique Raman stimulé (STIRAP). Comme l'écho Raman, le STIRAP met en jeu un état de superposition entre les deux sous-niveaux fondamentaux. En revanche, il se manifeste non pas par l'émission d'un champ par les atomes, mais par une modification des populations atomique dans les différents niveaux d'énergie du système.

Chapitre 1

Les ions de terre rare en matrice cristalline

Nous présenterons dans ce premier chapitre les principales caractéristiques des ions de terre rare en matrice cristalline. Après avoir brièvement discuté de leurs propriétés physico-chimiques, nous décrirons les différentes interactions conduisant aux levées de dégénérescence de leurs niveaux d'énergie. Puis nous discuterons des diverses causes d'élargissement homogène et inhomogène des raies associées aux transitions entre ces niveaux. Nous nous intéresserons enfin au choix d'un matériau particulier pour y réaliser des opérations de stockage et de manipulation cohérente d'information. Nous présenterons en particulier les propriétés de l'ion thulium dopé dans un cristal de YAG, sur lequel a été réalisé l'ensemble des travaux présentés dans ce manuscrit.

1.1 Présentation générale

Les ions de terre rare, ou *lanthanides*, sont les 13 éléments qui suivent le lanthane dans la classification périodique des éléments donnée dans la figure 1.1. Ils ont été initialement découverts en très petite quantité dans des mélanges d'oxyde, ce qui leur a valu l'appellation de terres rares. Cette appellation est en réalité injustifiée car, en dehors du prométhéum, ils présentent une abondance naturelle comparable à celle de nombreux autres éléments tels l'iode, le mercure ou le cadmium [40].

Une caractéristique remarquable des ions de terre rare est que, pour la plupart des composés, les raies associées aux transitions optiques sont exceptionnellement fines, particulièrement à basse température. Au milieu des années 1960, les meilleurs spectromètres étaient incapables de les résoudre et il a fallu attendre le début des années 1970 et le développement des lasers accordables en fréquence pour pouvoir mesurer les raies de ces éléments élargies de façon inhomogène [41]. Puis l'apparition de techniques de spectroscopie haute résolution, comme le creusement de trou spectral (*spectral hole burning*) ou les échos de photons, a permis d'éliminer l'élargissement inhomogène, pour atteindre et mesurer des raies élargies de façon homogène de l'ordre de quelques kHz ou de quelques centaines de Hz à basse température [42]. Ces raies fines correspondent à des durées de vie élevées des cohérences atomiques. C'est pourquoi on trouve les ions de terre rare dans des domaines d'application aussi divers que le stockage d'information classique dans le domaine temporel [43] et fréquentiel [44, 45], le contrôle de faisceau optique par filtrage spatio-temporel [46, 47], l'analyse spectrale en temps réel de signaux radiofréquence large bande [48, 49], les standards secondaires de fréquence basés sur un laser asservi sur un trou spectral [50, 51, 36], et la transparence électromagnétiquement induite [30, 32]. Ils ont aussi fait l'objet de propositions pour des protocoles de calcul quantique [52, 53, 54, 55] et de mémoires quantiques basées sur la lumière arrêtée [33], sur des échos de photons par inversion d'un profil inhomogène artificiel, ou sur la construction d'un peigne de fréquences atomique [18]. Dans de telles mémoires, l'information serait stockée dans une cohérence optique [16, 14] ou hyperfine [13].

1.2 Propriétés physico-chimiques

Les ions de terre rare sont caractérisés par une couche $4f$ partiellement remplie. Leur structure électronique commune est de la forme :

$$(\text{coeur})^{46}5s^25p^64f^n5d^16s^2, \text{ avec } 1 \leq n \leq 13 \quad (1.1)$$

où n varie de 1 pour le cérium ($Z = 58$) à 13 pour l'ytterbium ($Z = 70$). Notons au passage qu'aucun isotope du prométhéum (Pm) n'existe à l'état naturel. C'est pourquoi

hydrogen 1 H 1.0079																	helium 2 He 4.0026																												
lithium 3 Li 6.941	beryllium 4 Be 9.0122											boron 5 B 10.811	carbon 6 C 12.011	nitrogen 7 N 14.007	oxygen 8 O 15.999	fluorine 9 F 18.998	neon 10 Ne 20.180																												
sodium 11 Na 22.990	magnesium 12 Mg 24.305											aluminum 13 Al 26.982	silicon 14 Si 28.086	phosphorus 15 P 30.974	sulfur 16 S 32.065	chlorine 17 Cl 35.453	argon 18 Ar 39.948																												
potassium 19 K 39.098	calcium 20 Ca 40.078	scandium 21 Sc 44.956	titanium 22 Ti 47.867	vanadium 23 V 50.942	chromium 24 Cr 51.996	manganese 25 Mn 54.938	iron 26 Fe 55.845	cobalt 27 Co 58.933	nickel 28 Ni 58.693	copper 29 Cu 63.546	zinc 30 Zn 65.39	gallium 31 Ga 69.723	germanium 32 Ge 72.61	arsenic 33 As 74.922	selecnium 34 Se 78.96	bromine 35 Br 79.904	krypton 36 Kr 83.80																												
rubidium 37 Rb 85.468	strontium 38 Sr 87.62	yttrium 39 Y 88.906	zirconium 40 Zr 91.224	niobium 41 Nb 92.906	molybdenum 42 Mo 95.94	technetium 43 Tc [98]	ruthenium 44 Ru 101.07	rhodium 45 Rh 102.91	palladium 46 Pd 106.42	silver 47 Ag 107.87	cadmium 48 Cd 112.41	indium 49 In 114.82	tin 50 Sn 118.71	antimony 51 Sb 121.76	tellurium 52 Te 127.60	iodine 53 I 126.90	xenon 54 Xe 131.29																												
caesium 55 Cs 132.91	barium 56 Ba 137.33	lutetium 71 Lu 174.97	hafnium 72 Hf 178.49	tantalum 73 Ta 180.95	wolfram 74 W 183.84	rhenium 75 Re 186.21	osmium 76 Os 190.23	iridium 77 Ir 192.22	platinum 78 Pt 195.08	gold 79 Au 196.97	mercury 80 Hg 200.59	thallium 81 Tl 204.38	lead 82 Pb 207.2	bismuth 83 Bi 208.98	polonium 84 Po [209]	astatine 85 At [210]	radon 86 Rn [222]																												
francium 87 Fr [223]	radium 88 Ra [226]	lawrencium 103 Lr [262]	rutherfordium 104 Rf [261]	dubnium 105 Db [262]	seaborgium 106 Sg [266]	bohrium 107 Bh [264]	hassium 108 Hs [269]	meitnerium 109 Mt [268]	unnilium 110 Uun [271]	ununium 111 Uuu [272]	unbibium 112 Uub [277]																																		
		<table border="1"> <tr> <td>lanthanum 57 La 138.91</td> <td>cerium 58 Ce 140.12</td> <td>praseodymium 59 Pr 140.91</td> <td>neodymium 60 Nd 144.24</td> <td>promethium 61 Pm [145]</td> <td>samarium 62 Sm 150.36</td> <td>europium 63 Eu 151.96</td> <td>gadolinium 64 Gd 157.25</td> <td>terbium 65 Tb 158.93</td> <td>dysprosium 66 Dy 162.50</td> <td>holmium 67 Ho 164.93</td> <td>erbium 68 Er 167.26</td> <td>thulium 69 Tm 168.93</td> <td>ytterbium 70 Yb 173.04</td> </tr> <tr> <td>actinium 89 Ac [227]</td> <td>thorium 90 Th 232.04</td> <td>protactinium 91 Pa 231.04</td> <td>uranium 92 U 238.03</td> <td>neptunium 93 Np [237]</td> <td>plutonium 94 Pu [244]</td> <td>americium 95 Am [243]</td> <td>curium 96 Cm [247]</td> <td>berkelium 97 Bk [247]</td> <td>californium 98 Cf [251]</td> <td>tennessium 99 Ts [252]</td> <td>fermium 100 Fm [257]</td> <td>meitnerium 101 Mt [258]</td> <td>nobelium 102 No [259]</td> </tr> </table>																lanthanum 57 La 138.91	cerium 58 Ce 140.12	praseodymium 59 Pr 140.91	neodymium 60 Nd 144.24	promethium 61 Pm [145]	samarium 62 Sm 150.36	europium 63 Eu 151.96	gadolinium 64 Gd 157.25	terbium 65 Tb 158.93	dysprosium 66 Dy 162.50	holmium 67 Ho 164.93	erbium 68 Er 167.26	thulium 69 Tm 168.93	ytterbium 70 Yb 173.04	actinium 89 Ac [227]	thorium 90 Th 232.04	protactinium 91 Pa 231.04	uranium 92 U 238.03	neptunium 93 Np [237]	plutonium 94 Pu [244]	americium 95 Am [243]	curium 96 Cm [247]	berkelium 97 Bk [247]	californium 98 Cf [251]	tennessium 99 Ts [252]	fermium 100 Fm [257]	meitnerium 101 Mt [258]	nobelium 102 No [259]
lanthanum 57 La 138.91	cerium 58 Ce 140.12	praseodymium 59 Pr 140.91	neodymium 60 Nd 144.24	promethium 61 Pm [145]	samarium 62 Sm 150.36	europium 63 Eu 151.96	gadolinium 64 Gd 157.25	terbium 65 Tb 158.93	dysprosium 66 Dy 162.50	holmium 67 Ho 164.93	erbium 68 Er 167.26	thulium 69 Tm 168.93	ytterbium 70 Yb 173.04																																
actinium 89 Ac [227]	thorium 90 Th 232.04	protactinium 91 Pa 231.04	uranium 92 U 238.03	neptunium 93 Np [237]	plutonium 94 Pu [244]	americium 95 Am [243]	curium 96 Cm [247]	berkelium 97 Bk [247]	californium 98 Cf [251]	tennessium 99 Ts [252]	fermium 100 Fm [257]	meitnerium 101 Mt [258]	nobelium 102 No [259]																																

FIG. 1.1 – Classification périodique des éléments. La famille des terres rares correspond aux éléments compris entre le cérium et l’ytterbium.

nous ne nous intéresserons pas à cet ion.

On trouve principalement les ions de terre rare au degré d’oxydation +III, qui est, à de rares exceptions près, leur seul état d’oxydation stable. Les ions triplement ionisés perdent les électrons des sous-couches $5d$ et $6s$. Les derniers niveaux d’énergie sont donc occupés par les électrons de la sous-couche $4f$, bien qu’elle soit plus interne que les sous-couches $5s$ et $5p$. Les électrons des sous-couches $5s$ et $5p$ créent un écrantage pour les électrons $4f$, ce qui confère aux ions de terre rare triplement ionisés des propriétés de finesse spectrale remarquables.

Si l’on considère les électrons de l’ion libre sans interaction et sans couplage spin-orbite, toutes les configurations à l’intérieur de la couche $4f^n$ sont dégénérées. Nous allons décrire dans la partie suivante les différentes causes de levée de dégénérescence à des degrés d’approximations successifs du hamiltonien du système.

1.3 Niveaux d'énergie

1.3.1 Hamiltonien du système

Le hamiltonien d'un ion inséré dans un cristal s'écrit :

$$H = [H_{IL} + H_{CC}] + [H_{HF} + H_Q + H_{Ze} + H_{Zn}] \quad (1.2)$$

Les deux premiers termes représentent respectivement le hamiltonien de l'ion libre, décrivant l'interaction spin-orbite et l'effet du champ cristallin. Dans le calcul des niveaux d'énergie des ions dans des cristaux, ces deux premiers termes sont souvent diagonalisés à l'intérieur de la configuration $4f$. Les termes suivants qui décrivent les propriétés magnétiques de l'ion, sont traités en perturbation car ils ont des contributions très petites devant les deux premiers termes. Ils représentent dans l'ordre, le couplage hyperfin entre les électrons $4f$ et le noyau de l'ion, l'interaction quadropolaire électrique, non nulle quand le spin nucléaire de l'ion est supérieur ou égal à 1, l'interaction Zeeman électronique et l'interaction Zeeman nucléaire.

Si l'on considère les électrons de la couche $4f$ d'un ion libre, soumis uniquement à un potentiel coulombien, toutes les configurations possibles à l'intérieur de la couche $4f$ sont dégénérées, comme le montre la figure 1.2(a). Cette dégénérescence est partiellement levée par les interactions électroniques, apparaissant dans le hamiltonien de l'ion libre H_{IL} . Elles divisent le niveau considéré en différentes configurations non-dégénérées, notées ^{2S+1}L . L'interaction spin-orbite, également contenue dans le hamiltonien de l'ion libre est importante dans les terres rares à cause de leur position basse dans la classification périodique des éléments. Elle lève la dégénérescence en $J = L + S$ à l'intérieur d'une configuration ^{2S+1}L . Les niveaux restés dégénérés par les interactions électroniques sont séparés en différents multiplets $^{2S+1}L_J$. Cette levée de dégénérescence est représentée sur la figure 1.2(b). Comme le moment angulaire total J est conservé par l'interaction spin-orbite, il est un bon nombre quantique et les différents multiplets correspondant aux différentes valeurs de J sont $(2J + 1)$ fois dégénérés. L'écart entre deux multiplets est typiquement de quelques milliers de cm^{-1} .

Les électrons $4f$ sont écrantés par les électrons $5s$ et $5p$. De ce fait les interactions avec le champ cristallin, par effet Stark, sont en général très faibles devant l'interaction spin-orbite. Elles peuvent ainsi être traitées en perturbation dans la base de diagonalisation de l'interaction spin-orbite [24]. Autrement dit, l'interaction avec le champ cristallin mélange très peu les multiplets correspondant aux différentes valeurs de J , et J reste un bon nombre quantique. Par exemple, l'état fondamental 3H_6 des ions Tm^{3+} reste ainsi un état 3H_6 à plus de 99.5% lorsque l'ion est inséré dans une matrice de YAG [56]. En revanche, le champ cristallin lève au moins partiellement la dégénérescence à l'intérieur d'un multiplet

$^{2S+1}L_J$. Les états propres du hamiltonien de l'ion en matrice se développent sur la base $|LSJM_J\rangle$ des états propres de J_z . Les multiplets sont séparés en sous-niveaux Stark, qui correspondent à des combinaisons linéaires des différentes valeurs propres permises M_J , comme représenté sur la figure 1.2(c). L'écart entre les niveaux Stark à l'intérieur d'un multiplet est typiquement de quelques dizaines de cm^{-1} . Le fait que la dégénérescence en J soit partiellement ou totalement levée par l'effet du champ cristallin dépend du nombre d'électrons de l'ion et de la symétrie du site, comme nous allons le préciser dans la section suivante.

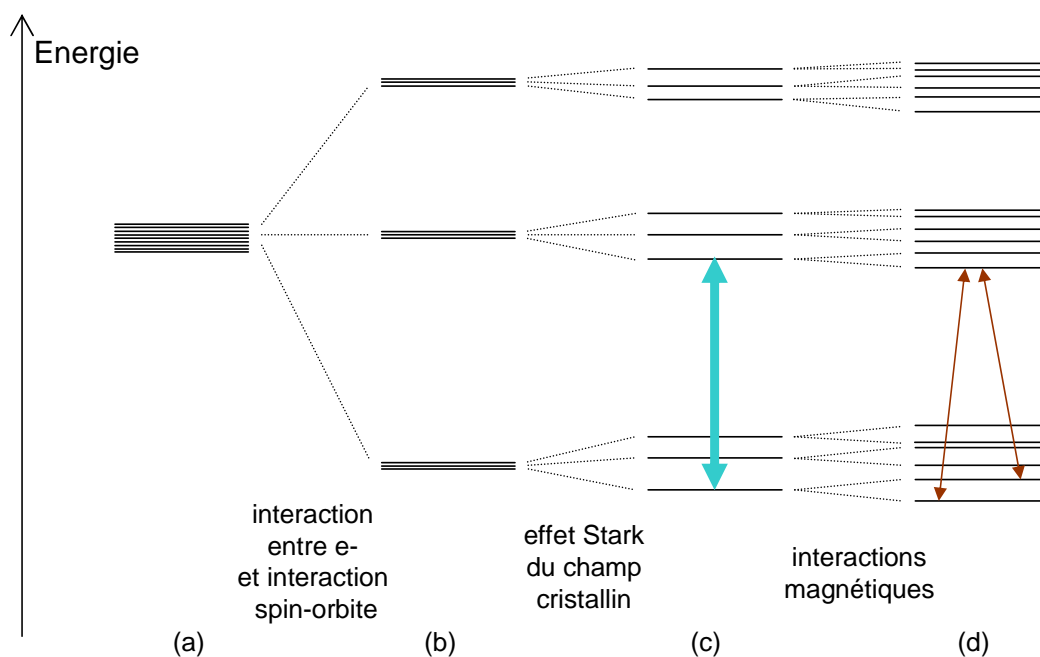


FIG. 1.2 – Niveaux d'énergie des électrons $4f$ des ions de terre rare. (a) Configurations dégénérées des électrons $4f$ d'un ion libre dans un potentiel coulombien, (b) Levée partielle ou totale de dégénérescence par les interactions entre électrons et l'interaction spin-orbite, (c) Séparation des niveaux par effet Stark du champ cristallin ; les transitions optiques ont lieu entre les niveaux les plus bas de chaque multiplet Stark. (d) Effet des interactions magnétiques, qui peuvent lever la dégénérescence hyperfine. Les deux flèches rouges matérialisent un système en Λ possible construit sur la structure hyperfine du niveau fondamental.

1.3.2 Symétrie par renversement du temps et dégénérescence de Kramers

La présentation de l'opération de renversement du temps que nous allons faire ici est décrite plus en détail dans les références [57] (pages 567 à 581) et [58] (pages 639 à

650). Cette discussion se place dans le cadre plus général des invariances et des lois de conservation qui leurs sont associées en physique, et en particulier en mécanique quantique.

Parmi toutes les transformations faisant intervenir le temps, la plus simple est la translation dans le temps, par rapport à laquelle l'invariance du système entraîne la loi de conservation de l'énergie. Il arrive fréquemment que les systèmes étudiés soient invariants, non seulement par translation dans le temps, mais aussi par l'opération appelée *renversement du temps*. Cette opération correspond en fait à un renversement du sens du mouvement, c'est-à-dire qu'elle renverse toutes les vitesses du système, y compris celles associées au mouvement de rotation des électrons sur eux-mêmes. Les spins sont donc inversés par une telle opération. L'invariance du hamiltonien d'un système par cette opération a des conséquences très importantes sur ses propriétés magnétiques, comme nous allons le montrer ici.

Nous appellerons θ l'opérateur de renversement du temps. On peut montrer que θ est un opérateur antilinéaire et antiunitaire, et que $\theta^2 = \pm 1$ [57, 58]. La détermination de cet opérateur dépend de la base choisie. Pour une particule sans spin, en représentation \vec{r} , on peut identifier θ à l'opérateur de conjugaison complexe K_0 , qui à une fonction d'onde $\phi(\vec{r})$ associe son complexe conjugué $\phi^*(\vec{r})$. On considère maintenant une particule de spin 1/2 dans la représentation standard dans laquelle les composantes du spin s_x et s_z sont réelles et la composante s_y est imaginaire. On a dit plus haut que, comme tout moment cinétique, le spin était inversé par l'opération de renversement du temps. L'opérateur θ peut donc s'écrire :

$$\theta = i\sigma_y K_0 \quad (1.3)$$

avec σ_y la matrice de Pauli associée à la composante y dans la représentation standard. On vérifie alors aisément que $\theta^2 = -1$. Si on considère enfin un système de n particules de spin 1/2, l'opérateur de renversement du temps sera le produit des opérateurs associés à chaque particule :

$$\theta = \prod_{p=1}^n \theta_p \quad (1.4)$$

et on aura donc $\theta^2 = (-1)^n$. La parité du nombre de particules n est essentielle lorsque l'on cherche à décrire les propriétés magnétiques des ions. Supposons par exemple que le hamiltonien H du système soit invariant par renversement du temps, c'est-à-dire qu'il commute avec θ . C'est le cas en l'absence de champ magnétique car les énergies cinétique, potentielle, et les interactions spin-spin et spin-orbite sont invariantes par renversement du temps. Si $|\Phi\rangle$ est un état propre de H , associé à la valeur propre E :

$$H(\theta|\Phi\rangle) = \theta(H|\Phi\rangle) = \theta(E|\Phi\rangle) = E\theta|\Phi\rangle \quad (1.5)$$

Donc l'image de l'état $|\Phi\rangle$ par l'opération de renversement du temps est aussi état propre

du hamiltonien H , avec la même énergie. On note $|\Psi\rangle = \theta|\Phi\rangle$. On s'intéresse à présent au produit scalaire $\langle\Phi|\Psi\rangle$.

On dit d'un opérateur qu'il est antiunitaire s'il est antilinéaire et s'il conserve le produit scalaire à une conjugaison complexe près. Comme θ est antiunitaire :

$$\langle\Phi|\Psi\rangle = \langle\Phi|\theta\Phi\rangle = \langle\theta\Phi|\theta^2\Phi\rangle^* = \langle\theta^2\Phi|\theta\Phi\rangle = \langle\theta^2\Phi|\Psi\rangle \quad (1.6)$$

Dans le cas d'un système à nombre pair d'électrons, $\theta^2 = 1$, on obtient simplement l'identité $\langle\Phi|\Psi\rangle = \langle\Phi|\Psi\rangle$. En revanche, dans le cas d'un système à nombre impair d'électrons, pour lequel $\theta^2 = -1$, on obtient :

$$\langle\Phi|\Psi\rangle = -\langle\Phi|\Psi\rangle = 0 \quad (1.7)$$

Les états $|\Psi\rangle$ et $|\Phi\rangle$ sont orthogonaux, donc distincts. Il en résulte que les valeurs propres du hamiltonien sont au moins deux fois dégénérées. Cette dégénérescence porte le nom de *dégénérescence de Kramers*. L'état $|\Psi\rangle = \theta|\Phi\rangle$ est appelé le *conjugué de Kramers* de $|\Phi\rangle$.

Parmi les ions de terre rare, ceux qui possèdent un nombre impair d'électrons $4f$ (Ce, Nd, Sm, Gd, Dy, Er, Yb) seront désignés par la suite comme des *ions Kramers*. Pour ces ions, tant que le hamiltonien commute avec l'opérateur de renversement du temps (c'est-à-dire en l'absence de champ magnétique), les niveaux électroniques forment des *doublets de Kramers*. Pour cette raison, l'effet Stark du champ cristallin ne peut lever complètement la dégénérescence en J et les multiplets sont séparés en au plus $J + 1/2$ niveaux distincts.

Les ions de terre rare possédant un nombre pair d'électrons (Eu, Pr, Tb, Ho, Tm) sont dits *non-Kramers*, et ne sont pas soumis à cette dégénérescence. Les dégénérescences électroniques peuvent alors être complètement levées par le champ cristallin, les niveaux d'énergie se présentant alors sous forme de $2J + 1$ singulets électroniques. Ceci a lieu dans des environnements de basse symétrie, qui n'introduisent pas de dégénérescence additionnelle. C'est le cas par exemple des sites de l'yttrium de symétrie D_2 dans la matrice de YAG. En revanche, dans les sites possédant une symétrie axiale ou plus, il peut exister des dégénérescences qui conduisent à des états électroniques dits *doublets non-Kramers*. Une telle dégénérescence d'ordre 2 existe par exemple dans un environnement de symétrie cubique.

La dégénérescence à l'intérieur d'un multiplet $^{2S+1}L_J$ est donc partiellement ou totalement levée par l'effet Stark du champ cristallin. Les niveaux d'énergie plus élevée de chaque multiplet Stark relaxent rapidement vers le niveau de plus basse énergie du multiplet sous l'effet de processus non radiatifs. Les temps caractéristiques de ces processus sont typiquement inférieurs à $1 \mu s$. On s'intéresse donc aux transitions entre les niveaux de plus basse énergie des différents multiplets Stark. Nous discuterons plus loin dans ce

chapitre les différentes causes d'élargissement homogène et inhomogène des raies associées à ces transitions.

En vue de réaliser des expériences de stockage d'information, nous souhaitons mettre en évidence un système à 3 niveaux en Λ . Ce système pourra s'appuyer sur deux sous-niveaux hyperfins de l'état fondamental qui est le niveau le plus bas du premier multiplet Stark, reliés à un même niveau électronique appartenant à un multiplet Stark d'énergie plus élevée, comme indiqué sur la figure 1.2(d). Pour déterminer la faisabilité d'un tel système, nous allons étudier les interactions magnétiques qui permettent de séparer ces niveaux hyperfins.

1.3.3 Interaction magnétique et structure hyperfine

Les propriétés magnétiques des ions proviennent des termes H_{HF} , H_Q , H_{Ze} et H_{Zn} du hamiltonien du système donné dans l'équation (1.2). Ces termes sont très petits devant le hamiltonien de l'ion libre H_{IL} et devant celui du champ cristallin H_{CC} . C'est pourquoi ils peuvent être traités en perturbation dans la base des états propres de $H_{IL} + H_{CC}$.

Le premier terme représente l'interaction hyperfine :

$$H_{HF} = -A_J \vec{I} \cdot \vec{J} \quad (1.8)$$

où A_J représente le paramètre de l'interaction hyperfine [24].

Le deuxième terme représente l'interaction quadrupolaire électrique et s'écrit :

$$H_Q = P \left[I_{z'}^2 - \frac{I(I+1)}{3} + \frac{\eta}{3}(I_{x'}^2 - I_{y'}^2) \right] \quad (1.9)$$

où P est la constante de couplage quadrupolaire, η le paramètre d'asymétrie du gradient de champ électrique, et x' , y' , et z' les axes principaux du tenseur du gradient de champ électrique. Ce terme (non nul pour les ions présentant un spin nucléaire supérieur ou égal à 1) a des contributions dues au réseau, aux électrons $4f$ et aux électrons des autres couches dont la distribution de charge est modifiée par le champ électrique du réseau.

Le troisième terme représente l'interaction Zeeman électronique sous l'effet d'un champ magnétique \vec{B} et s'écrit :

$$H_{Ze} = g_J \mu_B \vec{B} \cdot \vec{J} \quad (1.10)$$

où μ_B représente le magnéton de Bohr et g_J le facteur de Landé :

$$g_J = \frac{3}{2} - \frac{L(L+1) - S(S+1)}{2J(J+1)} \quad (1.11)$$

Le quatrième terme, qui représente l'interaction Zeeman nucléaire, est égal à :

$$H_{Zn} = -\hbar \gamma_n \vec{B} \cdot \vec{I} \quad (1.12)$$

où \hbar est la constante de Planck réduite, γ_n le facteur gyromagnétique du noyau et \vec{I} le spin nucléaire.

Pour discuter de l'importance de ces différents effets, il convient de distinguer le cas des ions Kramers et celui des ions non-Kramers. Parmi ces cas, on traitera plus en détail celui des ions non-Kramers dans des sites de basse symétrie, car c'est dans cette configuration que l'on sera amené à travailler.

Ions non-Kramers

Lorsque la dégénérescence des niveaux électroniques est complètement levée dans un ion à nombre pair d'électrons situé dans un site de basse symétrie, la symétrie par renversement du temps conduit à une propriété remarquable appelée blocage ou *quenching* du moment angulaire [58]. Comme on l'a vu précédemment, en raison du nombre pair d'électrons, la fonction d'onde électronique totale est fonction propre du carré de l'opérateur renversement du temps θ^2 avec la valeur propre +1. Le moment angulaire total \vec{J} est impair par rapport au renversement du temps, comme tous les moments cinétiques :

$$\theta \vec{J} \theta^{-1} = -\vec{J}^\dagger \quad (1.13)$$

On a vu dans la partie 1.3.2 que le hamiltonien électronique commute avec l'opérateur de renversement du temps θ . D'après l'équation (1.5), le conjugué de Kramers de chaque état propre du hamiltonien électronique est aussi vecteur propre de H avec la même valeur propre. Or, la dégénérescence des niveaux électroniques est complètement levée grâce à la basse symétrie du site, donc chaque état propre coïncide avec son conjugué à un facteur de phase près [58]. La valeur moyenne du moment angulaire total \vec{J} est égale à $\langle \Psi | \vec{J} | \Psi \rangle$, donc proportionnelle à $\langle \Psi | \vec{J} | \theta \Psi \rangle$. Puisque θ est antilinéaire et antiunitaire, on a :

$$\langle \theta \Psi | \theta \Phi \rangle = \langle \Phi | \Psi \rangle \quad (1.14)$$

En faisant agir l'opérateur \vec{J} à droite ou à gauche dans l'expression de la valeur moyenne, on obtient :

$$\langle \Psi | \vec{J} | \theta \Psi \rangle = \langle \Psi | \vec{J} \theta \Psi \rangle \quad \text{et} \quad \langle \Psi | \vec{J} | \theta \Psi \rangle = \langle \vec{J}^\dagger \Psi | \theta \Psi \rangle \quad (1.15)$$

Appliquons la relation (1.14) à $\langle \Psi | \vec{J} \theta \Psi \rangle$:

$$\langle \Psi | \vec{J} | \theta \Psi \rangle = \langle \theta \vec{J} \theta \Psi | \theta \Psi \rangle \quad (1.16)$$

En introduisant θ^{-1} dans le membre de droite, on obtient, compte tenu de l'équation (1.13) :

$$\langle \Psi | \vec{J} | \theta \Psi \rangle = \langle \theta \vec{J} \theta^{-1} \theta^2 \Psi | \theta \Psi \rangle \quad (1.17)$$

$$= - \langle \vec{J}^\dagger \theta^2 \Psi | \theta \Psi \rangle \quad (1.18)$$

$$= - \langle \vec{J}^\dagger \Psi | \theta \Psi \rangle \quad (1.19)$$

Car pour un ion non-Kramers, $\theta^2 |\Psi\rangle = |\Psi\rangle$. En comparant à l'équation (1.15), on a :

$$\langle \Psi | \vec{J} | \theta \Psi \rangle = - \langle \Psi | \vec{J} | \theta \Psi \rangle = 0 \quad (1.20)$$

Et on obtient enfin :

$$\langle \vec{J} \rangle = 0 \quad (1.21)$$

Cette propriété est appelée blocage, ou *quenching* du moment angulaire. Elle a pour conséquence l'annulation au premier ordre de tous les termes du hamiltonien proportionnels à \vec{J} . C'est le cas en particulier du terme d'interaction Zeeman électronique $H_{Ze} = g_J \mu_B \vec{B} \cdot \vec{J}$ et du terme d'interaction hyperfine $H_{HF} = A_J \vec{I} \cdot \vec{J}$. En effet, la fonction d'onde décrivant l'état du système peut s'écrire comme le produit de la fonction d'onde électronique $|\Psi\rangle$ et de la fonction d'onde nucléaire $|\chi\rangle$. La valeur moyenne du terme d'interaction hyperfine H_{HF} peut donc s'écrire :

$$\langle \Psi \otimes \chi | H_{HF} | \Psi \otimes \chi \rangle = A_J \langle \chi | \vec{I} | \chi \rangle \cdot \langle \Psi | \vec{J} | \Psi \rangle = 0 \quad (1.22)$$

On peut alors écrire le terme $[H_{HF} + H_Q + H_{Ze} + H_{Zn}]$ sous la forme du hamiltonien effectif suivant, en appliquant la théorie des perturbations au second ordre [24] :

$$H_{eff} = - \underbrace{(A_J^2 \vec{I} \cdot \Lambda \cdot \vec{I} + H_Q)}_{\text{interaction hyperfine}} - \underbrace{(2A_J g_J \mu_B \vec{B} \cdot \Lambda \cdot \vec{I} - H_{Zn})}_{\text{couplage interaction hyperfine et Zeeman électronique}} - \underbrace{g_J^2 \mu_B^2 \vec{B} \cdot \Lambda \cdot \vec{B}}_{\text{déplacement Zeeman électronique quadratique}} \quad (1.23)$$

où Λ est un tenseur d'ordre 3 défini par :

$$\Lambda_{\alpha\beta} = \sum_{n=1}^{2J+1} \frac{\langle 0 | J_\alpha | n \rangle \langle n | J_\beta | 0 \rangle}{E_n - E_0} \quad (1.24)$$

où E_0 est l'énergie de l'état $|0\rangle$ de plus basse énergie, et E_n l'énergie d'un autre état $|n\rangle$ du même multiplet électronique.

Le premier terme $A_J^2 \vec{I} \cdot \Lambda \cdot \vec{I}$ représente l'interaction hyperfine au deuxième ordre de perturbation, aussi appelée interaction pseudo-quadrupolaire. On peut le réécrire de la façon suivante :

$$H_{HF}^{(2)} = D_{pq} \left(I_z^2 - \frac{I(I+1)}{3} \right) + E_{pq} [I_x^2 - I_z^2] \quad (1.25)$$

avec

$$D_{pq} = A_J^2 \left(\frac{\Lambda_{xx} - \Lambda_{yy}}{3} - \Lambda_{zz} \right) \quad (1.26)$$

$$E_{pq} = \frac{A_J^2}{2} (\Lambda_{yy} - \Lambda_{xx}) \quad (1.27)$$

Ce terme est responsable avec le hamiltonien quadrupolaire électrique de la levée de dégénérescence des niveaux hyperfins dans les ions de Kramers. Cette levée de dégénérescence est illustrée sur la figure 1.2(d). Ces niveaux hyperfins se présentent alors sous la forme de $I + \frac{1}{2}$ doublets de spin. Il apparaît d'après l'équation (1.25) que le hamiltonien d'interaction hyperfine au second ordre de perturbation $H_{HF}^{(2)}$ s'annule comme l'interaction quadrupolaire électrique lorsque le spin est inférieur à 1. Ceci est le cas par exemple des ions thulium, de spin nucléaire égal à $\frac{1}{2}$. L'ion Tm est donc dépourvu de structure hyperfine au premier ordre et au second ordre lorsqu'il est placé dans un site de basse symétrie.

Le troisième terme $2A_J g_J \mu_B \vec{B} \cdot \Lambda \cdot \vec{I}$ de l'expression (1.23) représente le couplage au deuxième ordre entre l'interaction hyperfine et l'effet Zeeman électronique. On peut le voir comme la réponse des noyaux à une redistribution du nuage électronique sous l'effet d'un champ magnétique. Ce terme est en général beaucoup plus important que l'interaction Zeeman nucléaire H_{Zn} . La combinaison de ces deux interactions correspond à l'interaction dite *Zeeman nucléaire exacerbée*. Lorsque le tenseur Λ est diagonal (ce qui est notamment le cas pour le Tm³⁺:YAG du fait de la symétrie D_2 du site de l'yttrium), le hamiltonien correspondant s'écrit :

$$H'_{Zn} = -\hbar (\gamma_x B_x I_x + \gamma_y B_y I_y + \gamma_z B_z I_z) \quad (1.28)$$

où x , y , et z sont les axes principaux du tenseur Λ , et où les facteurs gyromagnétiques sont donnés par :

$$\gamma_\alpha = \gamma_n + \frac{2g_J \mu_B A_J \Lambda_{\alpha\alpha}}{\hbar} \quad \text{où } \alpha = x, y \text{ ou } z \quad (1.29)$$

En l'absence de champ magnétique, les ions thulium sont dépourvus de structure hyperfine du fait de leur faible spin nucléaire. Pour construire le système à trois niveaux désiré, on devra appliquer un champ magnétique extérieur et on utilisera l'anisotropie du tenseur Λ , comme on le verra dans le chapitre suivant.

Le cinquième terme $g_J^2 \mu_B^2 \vec{B} \cdot \Lambda \cdot \vec{B}$ de l'expression (1.23) représente l'interaction Zeeman électronique au second ordre, aussi appelé *déplacement Zeeman électronique quadratique*. Dans le cas des ions non-Kramers situés dans des sites de basse symétrie, cette interaction produit en effet un simple déplacement des niveaux d'énergie électroniques, la dégénérescence de ceux-ci étant déjà complètement levée sous l'effet du champ cristallin.

On peut noter que, dans le cas d'ions non-Kramers dans des sites de symétrie axiale ou plus, l'existence de doublets électroniques non-Kramers permet au moment cinétique orbital d'avoir des composantes non nulles dans l'axe de symétrie, et d'éviter le quenching du moment angulaire total. La partie magnétique de l'hamiltonien du système est alors dominée au premier ordre par l'effet Zeeman électronique parallèle à l'axe de symétrie, ainsi que par le terme hyperfin comprenant les composantes de spin électronique et nucléaire dans cette même direction. Les termes du second ordre décrits précédemment sont présents sous la forme de l'interaction Zeeman nucléaire exacerbée et de l'hamiltonien pseudo-quadrupolaire.

Ions Kramers

Comme on l'a vu dans la partie 1.3.2, la dégénérescence de Kramers est due à l'invariance par renversement du temps. Les seules interactions capables de lever une telle dégénérescence sont celles qui ne commutent pas avec l'opérateur de renversement du temps θ . C'est le cas de l'interaction Zeeman électronique et de l'interaction hyperfine. La partie magnétique du hamiltonien sera là encore dominée par les interactions au premier ordre.

Nous avons décrit ici les spectres de niveaux d'énergie des ions de terre rare en matrice cristalline. Nous allons maintenant nous intéresser aux transitions optiques entre ces différents niveaux d'énergie et présenter les causes diverses d'élargissement homogène et inhomogène de ces transitions.

1.4 Élargissement homogène et inhomogène

Comme nous l'avons évoqué dans le paragraphe précédent, les ions de terre rare en matrice cristalline sont remarquables par la finesse de leurs raies spectrales. Les mécanismes responsables de cet élargissement peuvent être classés en deux catégories : ceux qui causent un élargissement *homogène* et ceux qui causent un élargissement *inhomogène*. La largeur homogène est la largeur que l'on mesurerait si on pouvait travailler avec un seul ion. La largeur inhomogène est due au fait que l'on étudie un ensemble macroscopique d'ions qui ne sont pas exactement identiques. C'est la largeur inhomogène qui est accessible par les spectromètres et les lasers balayés en fréquence, tandis qu'il faut utiliser des techniques plus élaborées pour accéder à la largeur homogène, comme par exemple le creusement spectral (*spectral hole burning*) ou les échos de photons.

Dans cette partie, nous présenterons les diverses causes d'élargissement des raies spectrales des ions de terre rare en matrice cristalline, puis nous discuterons des moyens disponibles pour améliorer la finesse de ces raies, et des conséquences de ceci sur le choix du

matériau utilisé pour réaliser des opérations de stockage des propriétés quantiques de la lumière.

1.4.1 Largeur inhomogène

L'élargissement inhomogène d'une raie atomique se traduit par l'étalement des fréquences de transition des ions. Dans un gaz, il résulte principalement de l'effet Doppler. Dans le cas des ions insérés en matrice cristalline, il provient des perturbations statiques de l'environnement de ces ions, occasionnées par la présence de défauts dans la structure cristalline. Les défauts peuvent être produits au cours du refroidissement du cristal depuis sa température de solidification, ou par des dislocations. Ils peuvent aussi provenir du dopant lui-même ou d'autres impuretés présentes dans le cristal. Ainsi, à cause du désordre et des imperfections de la matrice hôte, chacun des dopants voit un environnement qui lui est propre. Les énergies de transition des ions se répartissent de façon inhomogène sur un domaine spectral noté Γ_{inh} . Cet élargissement inhomogène subsiste même à température nulle.

Le fait d'avoir un élargissement inhomogène grand devant la largeur homogène peut être souhaitable, par exemple dans le domaine du traitement de l'information. Ceci permet en effet de disposer de nombreux canaux spectraux que l'on peut manipuler indépendamment, puisqu'ils répondent à différentes fréquences de résonance. Les projets d'analyse spectrale [48, 49] et de calcul quantique [54, 55] dans les ions de terre rare en matrice cristalline reposent sur ce principe.

1.4.2 Largeur homogène

La largeur homogène est la largeur qui est propre à un seul système, c'est-à-dire ici à un seul ion. Elle correspond à la largeur totale à mi-hauteur de sa raie d'absorption. On l'écrit en fonction de la durée de vie T_2 de la cohérence associée à la transition optique considérée :

$$\Gamma_h = \frac{1}{\pi T_2} \quad (1.30)$$

Sous cette forme, la largeur homogène Γ_h s'exprime en Hz.

Si on s'intéresse à un ion isolé dans le vide, T_2 est ultimement limité par le couplage de l'ion aux modes du champ électromagnétiques du vide par émission spontanée :

$$\Gamma_{h(min)} = \frac{1}{\pi T_{2(max)}} = \frac{1}{2\pi T_1} \quad (1.31)$$

où T_1 représente la durée de vie du niveau excité vis-à-vis de l'émission spontanée [59]. Pour espérer bénéficier de longues durées de vie des cohérences T_2 , il importe donc de disposer de matériaux possédant des longues durées de vie des niveaux excités.

Les ions de terre rare, avec leur couche $4f$ partiellement remplie, répondent favorablement à ce critère. En effet, les transitions dipolaires électriques entre états de même parité sont interdites pour un ion isolé. Les seules transitions autorisées à l'intérieur de la configuration $4f$ devraient donc être de type dipolaire magnétique. Cependant, si l'ion est situé dans un site sans symétrie d'inversion, la configuration $4f^n$ peut être mélangée avec la configuration de parité opposée $4f^{n-1}5d$, ce qui autorise la transition dipolaire électrique. Comme le processus dipolaire électrique est de 5 ordres de grandeur plus fort que le processus dipolaire magnétique, il peut dominer même dans le cas d'un faible mélange d'états de parités opposées. Ces raies *quasi-interdites* présentent une probabilité de transition très faible (de l'ordre de 10^{-8}), ce qui donne aux niveaux excités une longue durée de vie.

Lorsque l'ion est placé dans un environnement, la largeur homogène de la transition optique augmente du fait du couplage dynamique de l'ion avec son environnement :

$$\Gamma_h = \Gamma_{h(max)} + C \quad (1.32)$$

C représente l'effet d'élargissement des raies provenant du couplage avec l'environnement. Nous allons ici présenter les causes de cet élargissement et en tirer des conséquences sur le choix des ions de terre rare et des matrices cristallines à utiliser.

Couplage avec les vibrations du réseau

Les phonons contribuent à l'élargissement homogène par l'intermédiaire de deux mécanismes principaux [58, 60] : le processus d'Orbach et le processus Raman, représentés sur la figure 1.3.

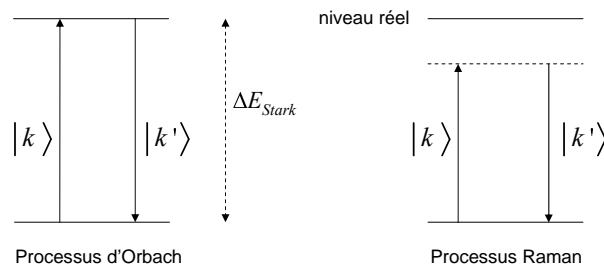


FIG. 1.3 – Schémas des processus d'Orbach et Raman de couplage par phonons entre deux sous-niveaux Stark séparés par une énergie ΔE_{Stark} . $|k\rangle$ et $|k'\rangle$ représentent les vecteurs d'onde du phonon incident ou diffusé.

Le processus d'Orbach met en jeu le couplage résonnant avec le sous-niveau Stark le plus proche, par l'absorption d'un phonon $|k\rangle$ suivie de l'émission d'un phonon $|k'\rangle$, . Le sous-niveau Stark étant situé à distance ΔE_{Stark} au-dessus du niveau impliqué dans la

transition électronique, la contribution du processus d'Orbach à l'élargissement homogène est proportionnelle à :

$$e^{-\frac{\Delta E_{Stark}}{kT}} \quad (1.33)$$

où T est la température du cristal. On peut en réduire l'impact en abaissant la température de travail : il devient généralement négligeable en dessous de 2 ou 3 K. Compte tenu du fait que les écarts ΔE_{Stark} entre sous-niveaux Stark dépendent de la matrice, l'importance de ce processus varie d'un matériau à l'autre pour un même ion. Ainsi, ΔE_{Stark} vaut 27 cm^{-1} et 72 cm^{-1} respectivement dans les états électroniques 3H_6 et 3H_4 pour le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ [56], mais cette distance se réduit à environ 6 cm^{-1} dans l'état électronique 3H_6 du $\text{Tm}^{3+}:\text{Y}_2\text{Si}_2\text{O}_7$ [61]. Ainsi à 4 K, l'élargissement de la largeur homogène est 400 fois plus faible dans le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ que dans $\text{Tm}^{3+}:\text{Y}_2\text{Si}_2\text{O}_7$.

Le processus Raman met en jeu le couplage non résonnant avec un sous-niveau Stark virtuel, situé au-dessus du niveau impliqué dans la transition électronique. Ce processus n'est dominant que dans les quelques rares cas où le premier niveau Stark réel est très éloigné. C'est le cas dans l'euprômium, où ce niveau est situé à plus de 200 cm^{-1} du niveau fondamental. A basse température, la contribution de ce processus à l'élargissement homogène varie comme $(T/T_D)^7$ pour les ions non-Kramers et $(T/T_D)^9$ pour les ions de Kramers, où T_D est la température de Debye. Avec une température de Debye typique de plusieurs centaines de kelvins (1000 K environ dans le YAG), le processus Raman contribue peu à l'élargissement homogène pour des températures inférieures à 5 K.

La contribution du processus direct est, elle, non négligeable à 5 K. Elle devient par contre extrêmement faible lorsque la température est abaissée à 2 – 3 K [62]. Elle peut même devenir inférieure à la largeur intrinsèque du niveau si l'on diminue suffisamment la température. Dans $\text{Pr}^{3+}:\text{LaF}_3$ par exemple, on attend une largeur du processus direct de 50 Hz à 2 K et de 0,4 Hz à 1,5 K [63, 64]. A ces températures, c'est la contribution des interactions ion-ion qui devient largement prépondérante.

Interactions ion-matrice et ion-ion

Parmi les autres contributions à l'élargissement homogène, on retrouve les interactions entre les ions de terres rares et la matrice, et entre les ions de terres rares eux-mêmes. Ces deux types d'élargissement proviennent des fluctuations du champ magnétique local. Pour les cristaux dopés avec de faibles concentrations en ions terres rares (typiquement 0,01 at. %), la largeur de la transition est surtout affectée par les fluctuations du champ magnétique local qui résulte des fluctuations d'orientation des spins nucléaires des ions ligands. Il faut donc que la matrice hôte soit majoritairement constituée d'ions à faibles spins et moments nucléaires. D'après le tableau 1.1, cela signifie que l'on privilégiera les cristaux constitués d'ions de spin nucléaire nul, comme l'oxygène, d'ions à faible abondance

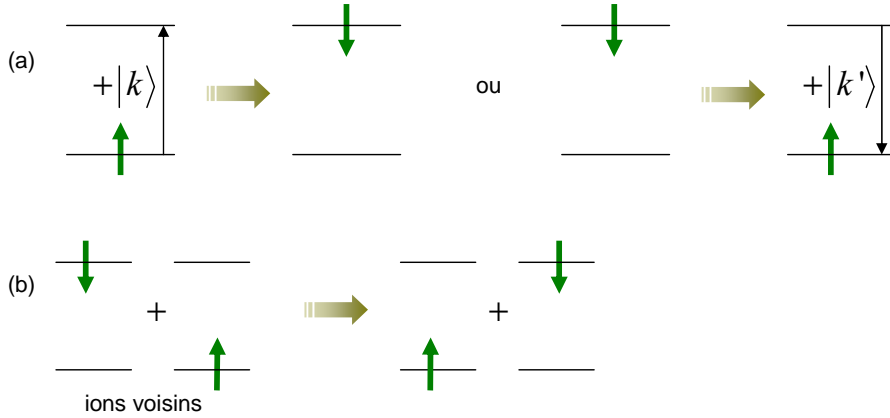


FIG. 1.4 – Schémas des processus de basculement de spins nucléaires (a) assistés par un phonon (processus direct) et (b) de type *flip-flop*. Les flèches épaisses représentent un état de spin. $|k\rangle$ et $|k'\rangle$ représentent les vecteurs d'onde des phonons absorbés ou émis au cours du basculement du spin.

isotopique, comme le silicium, ou d'ions à faible moment magnétique, comme l'yttrium. On optera donc plutôt pour des cristaux d'oxydes que pour des matrices fluorées. Ainsi, les matrices les plus utilisées sont le grenat d'yttrium et d'aluminium (YAG, $Y_3Al_5O_{12}$) et l'orthosilicate d'yttrium (YSO, Y_2SiO_5). Pour plusieurs ions de terres rares, c'est dans ces matrices qu'ont été obtenues les largeurs homogènes les plus faibles à basse température [65].

Elément	^{19}F	^{35}Cl	^{139}La	^{27}Al	^{28}Si	^{29}Si	^{89}Y	^{16}O
I	1/2	3/2	7/2	5/2	0	1/2	1/2	0
$\mu(\mu_N)$	2,63	0,82	2,78	3,64	0	-0,554	-0,137	0

TAB. 1.1 – Spins nucléaires I et moments magnétiques nucléaires μ de quelques éléments intervenant comme ligands

- Les changements d'orientation des spins peuvent survenir en suivant deux processus :
- les basculements assistés par phonons, ou *processus directs*, schématisés dans la figure 1.4(a), dans lesquels un retournement du spin s'accompagne de l'émission ou de l'absorption d'un ou plusieurs phonons.
 - les basculements de type *flip-flop* représentés dans la figure 1.4(b), où deux basculements de spins inverses et simultanés interviennent dans deux ions ligands. Ces processus sont particulièrement efficaces car ils ont lieu à énergie constante.

Pour discuter de l'effet des ces fluctuations sur la largeur homogène, il convient de distinguer encore une fois le cas des ions de Kramers de celui des ions non-Kramers.

Elément	^{141}Pr	^{151}Eu	^{153}Eu	^{159}Tb	^{165}Ho	^{169}Tm
I	5/2	5/2	5/2	3/2	7/2	1/2
$\mu(\mu_N)$	4,136	3,4718	1,5331	2,014	4,173	-0,232

TAB. 1.2 – Spins nucléaires I et moments magnétiques nucléaires μ des ions de terre rare non-Kramers.

En ce qui concerne les ions non Kramers à nombre pair d'électrons (Eu, Pr, Tb, Ho, Tm), le moment angulaire total est "quenché" et les états électroniques sont des états singulets, comme on l'a montré dans la partie 1.3.2. A faible concentration des ions de terre rare actifs (0,01 at. %), l'interaction de ces ions entre eux contribue peu à l'élargissement homogène. En revanche, le couplage du spin nucléaire de l'ion avec le spin nucléaire des ions ligands occasionne des largeurs de raie de l'ordre de plusieurs kHz. On peut affiner modérément ces raies en appliquant un champ magnétique de quelques dizaines de Gauss qui affecte la dynamique du spin nucléaire en supprimant les termes non séculaires du couplage dipôle-dipôle [41]. La réduction du couplage dipôle-dipôle permet de diminuer aussi bien l'interaction des ions de terre rare avec leur environnement, que l'interaction des ions de l'environnement entre eux. Ainsi, dans un cristal de $\text{Pr}^{3+}:\text{YSO}$ refroidi à 1,5 K, Fraval *et al.* ont pu rallonger de deux ordres de grandeur la durée de vie des cohérences hyperfines en appliquant un champ magnétique permanent [66].

Dans les ions Kramers à nombre impair d'électrons (Ce, Nd, Sm, Gd, Dy, Er, Yb), un renversement de spin électronique peut se produire à l'intérieur même du doublet de Kramers par basculement entre états dégénérés. De plus, l'interaction entre les spins électroniques des ions est beaucoup plus importante que celle du spin nucléaire ($g_e \simeq 1800g_n$). L'interaction des ions de terre rare entre eux devient donc une forte source d'élargissement homogène des raies puisque le basculement de type *flip-flop* des spins électroniques est très efficace et peut survenir entre les ions. Pour cette raison, en l'absence de champ magnétique, les ions Kramers présentent des largeurs de raie très élevées par rapport à celles présentées par les ions non-Kramers [41]. L'application d'un champ magnétique extérieur peut améliorer la situation dans certains cas. En effet, en plus de la réduction du couplage dipôle-dipôle décrite dans le cas des ions non-Kramers, un champ magnétique permet de lever la dégénérescence de Kramers. A basse température, ceci permet de ne garder peuplé que le niveau de plus basse énergie. On inhibe ainsi les fluctuations de spin et les mécanismes de *flip-flop* à énergie constante entre les ions. Ceci nécessite néanmoins un champ magnétique nettement plus intense que dans le cas des ions non-Kramers, de l'ordre de plusieurs teslas à 1,6 K. Ainsi, une largeur de raie record de 50 Hz a été mesurée par Sun *et al.* dans l' $\text{Er}^{3+}:\text{YSO}$ sous un champ magnétique de 7 T [65].

1.5 Choix de l'ion et de la matrice

Comme nous venons de le voir, les ions Kramers présentent en général des durées de vie des cohérences beaucoup plus courtes que les ions non-Kramers, à cause des processus de basculements de spins qui sont très efficaces. Il est possible dans certains cas de résoudre ce problème en utilisant un champ magnétique adapté, mais cela nécessite d'utiliser des champs intenses. Sans être un obstacle insurmontable, ceci représente une lourde complication expérimentale qu'il semble sage d'éviter, du moins dans un premier temps. On est alors naturellement amené à se tourner vers les ions non-Kramers, qui sont au nombre de cinq : Eu, Pr, Tb, Ho, et Tm.

On cherche à sélectionner parmi ces ions ceux qui présentent un système à trois niveaux en Λ comme celui de la figure 1.5, dans lequel des opérations de stockage quantique de la lumière pourront être réalisées. Le système en Λ serait construit sur deux sous-niveaux hyperfins de l'état électronique fondamental, et un sous-niveau hyperfin d'un état électronique excité. Les transitions optiques devront être manipulées par des sources laser très stables, pour tirer parti des longues durées de vie des cohérences optiques et Raman attendues dans de tels systèmes.

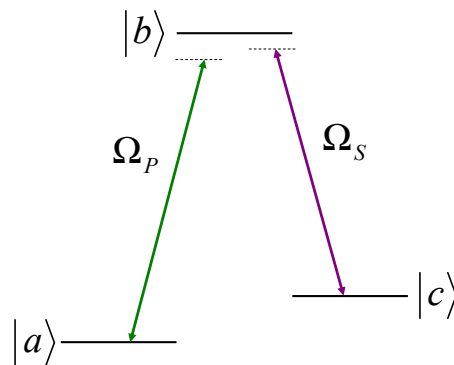


FIG. 1.5 – Système à trois niveaux en Λ . Les deux sous-niveaux fondamentaux $|a\rangle$ et $|c\rangle$ sont couplés à un même niveau excité par des transitions optiques.

Les ions Pr et Eu présentent tous deux un spin nucléaire de $I = 5/2$. Chaque niveau électronique est séparé en trois sous-niveaux hyperfins deux fois dégénérés, eux-mêmes séparés par des écarts en fréquence de l'ordre de 10 MHz. De ce fait, les cristaux dopés avec les ions praséodyme ou europium présentent d'emblée un système à 3 niveaux en Λ , avec des écarts énergétiques adaptés. Leurs longueurs d'onde d'absorption sont proches de 606 nm pour le Pr et de 580 nm pour l'Eu, et ne sont accessibles que par des lasers à colorant. Ce type de laser est difficile à stabiliser en dessous du MHz sur des durées de l'ordre de la milliseconde, à cause du bruit haute fréquence généré par le jet de colorant. Il existe toutefois plusieurs sources lasers à colorant ultra-stables dans le monde, réalisées

en laboratoire spécialement pour la manipulation optique des ions Pr [67, 35, 68, 36] ou Eu [34] en matrice cristalline. Ces sources permettent de tirer parti des durées de vie des cohérences de l'ordre de la centaine de μs ou de la ms offertes par les ions. Il est aussi possible d'atteindre les longueurs d'onde du praséodyme ou de l'euprécium sans passer par des lasers à colorant, mais grâce à des sources de type Oscillateur Paramétrique Optique. Le développement d'une telle source ultra-stable capable d'atteindre la longueur d'onde du praséodyme est actuellement en cours au Laboratoire Aimé Cotton, dans le cadre de la thèse de Thu-Hien My [69].

Pour éviter l'obstacle que constitue la longueur d'onde d'absorption des ions Pr et Eu, on peut aussi se tourner vers des ions contrôlables par des lasers plus faciles à stabiliser : de ce point de vue, les ions terbium, holmium et thulium semblent bien plus attrayants, car leurs longueurs d'onde d'absorption sont accessibles par des diode lasers, ou des diodes lasers doublées en fréquence : 490 nm pour le Tb, 640 nm pour le Ho, et 793 nm pour le Tm. Le terbium et le holmium présentent des durées de vie des cohérences optiques insuffisantes, autour de 50 ns par exemple pour le $\text{Ho}^{3+} : \text{YVO}_4$ [70] et de 11 μs pour le $\text{Tb}^{3+} : \text{LiYF}_4$ [71] à 1,3 K. Les ions Tb et Ho ne peuvent donc constituer un système adéquat pour le stockage quantique de l'information.

L'ion restant, le thulium, présente à la fois une longueur d'onde permettant l'utilisation de lasers à diode, et des durées de vie des cohérences optiques intéressantes [37]. Seulement, il ne présente pas de structure hyperfine, ni au premier ordre de perturbation, à cause du blocage du moment angulaire total J , ni au deuxième ordre, car son spin nucléaire est de $I = 1/2$. C'est la raison principale pour laquelle il n'a jamais été considéré comme un support possible pour une mémoire quantique dans un solide. Pourtant, lorsqu'il est soumis à un champ magnétique modéré, l'ion Tm^{3+} présente un écart énergétique entre ses sous-niveaux hyperfins de l'ordre du MHz. Le thulium présente donc trois avantages de taille sur les autres ions de terre rare non-Kramers : sa longueur d'onde accessible aux lasers à diode, ses longues durées de vie des cohérences et sa structure hyperfine adaptée, même si elle nécessite l'application d'un champ magnétique. Ces avantages font de lui un candidat prometteur pour le stockage quantique de l'information.

Dans la partie 1.4.2, on a vu qu'il était préférable de doper les ions de terre rare dans des cristaux d'oxyde plutôt que dans des matrices fluorées : en effet, comme ces derniers contiennent moins de spins nucléaires, la contribution à l'élargissement homogène des fluctuations de spin est réduite. En dopant les ions de terre rare dans des cristaux d'oxydes, on peut donc s'attendre à de meilleures durées de vie des cohérences. Les matrices les plus utilisées sont le grenat d'yttrium et d'aluminium (YAG, $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$) et le pyrosilicate d'yttrium (YPS, $\text{Y}_2\text{Si}_2\text{O}_7$). On a choisi de travailler dans un cristal de YAG, car lorsque le Tm est dopé dans cette matrice, son premier niveau Stark se trouve beaucoup plus éloigné de l'état fondamental que dans un cristal de $\text{Y}_2\text{Si}_2\text{O}_7$. On limite ainsi les processus

Matériau	λ	splittings hyperfins	T_1	T_2	Γ_h	Γ_{inh}
Eu :YSO	580 nm	75 MHz ; 102 MHz	1,9 ms	2,6 ms	122 Hz	4,1 GHz
Pr :YSO	606 nm	10,2 MHz ; 17,3 MHz	164 μ s	111 μ s	2,9 kHz	4,4 GHz
Tb :LiYF ₄	490 nm	27 GHz		11 μ s	28 kHz	
Ho :YVO ₄	640 nm	qq GHz		50 ns	6,5 MHz	15 GHz
Tm :YAG	793 nm	qq 10 MHz/T	800 μ s	105 μ s	3 kHz	20 GHz

TAB. 1.3 – Données spectroscopiques sur quelques ions de terre rare non-Kramers en matrice cristalline. T_1 désigne la durée de vie du niveau excité de la transition optique, et T_2 désigne la durée de vie de la cohérence optique.

de décohérence thermique associés aux vibrations du réseau.

Dans la partie suivante, nous allons décrire plus en détail les propriétés de l'ion Tm^{3+} lorsqu'il est inséré dans une matrice cristalline de YAG.

1.6 $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$

Le seul isotope du thulium, ^{169}Tm , possède 69 protons et 100 neutrons, correspondant à un spin nucléaire total de $I = 1/2$. L'ion thulium trivalent Tm^{3+} possède 66 électrons, dont 12 électrons de la couche $4f$. La configuration correspondante est $4f^{12}$, $S = 1$, $L = 5$.

Lorsque des ions thulium sont dopés dans un cristal de YAG, ils se substituent à des ions yttrium dans des sites de symétrie D_2 . Cette symétrie est suffisamment basse pour que le champ cristallin puisse lever complètement les dégénérescences électroniques qui dégraderaient la durée de vie des cohérences du système. Les sites de substitution sont situés au centre d'un cube déformé dont les huit sommets sont occupés par des atomes d'oxygène de spin nucléaire nul (tableau 1.1). Les ions d'aluminium, porteurs d'un spin nucléaire $I = 5/2$, sont à la fois moins nombreux et plus éloignés. La structure cristalline du YAG est représentée sur la figure 1.6, tirée de la référence [72]. Ainsi, dans cette matrice, les fluctuations de spin nucléaire des ions ligands vus par les ions Tm^{3+} sont limitées. R. M. Macfarlane a mesuré une largeur homogène de la transition optique à 793 nm de 3 kHz dans un échantillon de $\text{Tm}:\text{YAG}$ de faible concentration (0,1 at. %) à une température de 1,5 K [37]. Ceci correspond à une durée de vie des cohérences optiques de 105 μ s. La largeur inhomogène du profil d'absorption correspondant à cette transition est, elle, de l'ordre de 20 GHz.

On peut trouver le diagramme détaillé des niveaux d'énergie de $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ dans la référence [56]. Comme on l'a justifié au début de ce chapitre, on s'intéresse uniquement aux transitions entre les niveaux de plus basse énergie de chaque multiplet Stark. Le

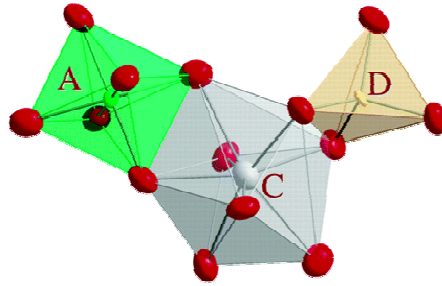


FIG. 1.6 – Polyèdres de coordination du cristal YAG. Les sommets des polyèdres sont occupés par des atomes d'oxygène. Les atomes d'aluminium sont placés en A et D, et les ions yttrium sont placés en C. Figure extraite de la référence [72].

schéma simplifié de ces niveaux est représenté sur la figure 1.7. Dans ce travail de thèse, les ions sont excités sur la transition ${}^3H_6(0) \rightarrow {}^3H_4(0)$ à la longueur d'onde 793 nm grâce à un laser à diode en cavité étendue offrant une stabilité de 250 Hz sur une durée de 10 ms [73]. Dans un échantillon de $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ dopé à 0,1%, le niveau excité, d'une durée de vie de 800 μs [74], se désexcite préférentiellement de façon non radiative par émission multiphonon vers le niveau 3F_4 , en passant par le niveau 3H_5 de courte durée de vie [75, 76]. Le niveau 3F_4 relaxe ensuite essentiellement radiativement vers l'état fondamental 3H_6 . Le niveau 3F_4 est appelé niveau métastable ou "relais" en raison de sa longue durée de vie (~ 10 ms).

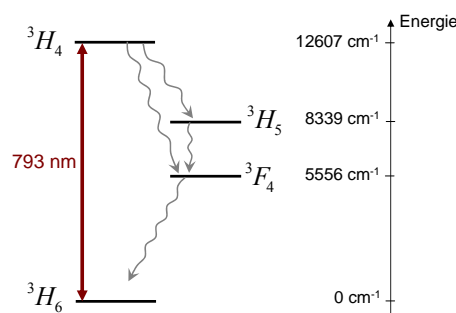


FIG. 1.7 – Schéma des niveaux du $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$

Comme on l'a évoqué dans ce chapitre, l'ion thulium dopé dans une matrice de YAG ne présente pas de structure hyperfine au premier ni au deuxième ordre de perturbation. On verra dans le chapitre suivant comment on peut révéler la structure de spin nucléaire et y créer un système à trois niveaux en Λ à l'aide d'un champ magnétique appliqué.

1.7 Pr³⁺ :YSO

Il est intéressant de situer le thulium par rapport aux autres ions de terre rare non-Kramers dans lesquels des travaux similaires à ceux présentés dans cette thèse sont poursuivis. En particulier, c'est l'ion praséodyme qui suscite le plus d'intérêt depuis une trentaine d'années. Il a été dopé dans une grande variété de matrices cristallines [41] (on peut citer entre autres les cristaux de LaF₃ [64], YAlO₃ [77, 26], YSO [78], YAG [25], CaF₂ [79] ou encore plus récemment, La₂W₃O₁₂ [80]). Parmi toutes ces matrices, c'est dans l'orthosilicate d'yttrium (YSO) qu'ont été réalisées la majeure partie des expériences de manipulation de cohérences de spin. Ces expériences seront passées en revue dans le chapitre 3.

Lorsqu'il est dopé dans le YSO, le Pr se substitue aux ions Y³⁺ dans des sites de symétrie C_1 . Cette symétrie est suffisamment basse pour assurer la levée complète de dégénérescence des états électroniques. Il existe deux sites de substitution cristallographiquement inéquivalents dans cette matrice, appelés sites 1 et 2. Nous ne nous intéresserons ici qu'aux ions du site 1, car les ions du site 2 présentent des forces d'oscillateurs 15 fois moins importantes, et un écart énergétique des niveaux hyperfins plus faible que ceux du site 1, malgré des durées de vie plus longues [78].

On a mesuré une largeur homogène de la transition optique à 606 nm de 2,8 kHz dans un échantillon de Pr :YSO de faible concentration (0,02 at. %), en l'absence de champ magnétique et à une température de 1,4 K. Ceci correspond à une durée de vie des cohérences optiques de 111 μ s [78]. La largeur inhomogène du profil d'absorption correspondant à cette transition est, elle, de 4,4 GHz. L'état excité 1D_2 a une durée de vie de $T_1 = 164 \mu$ s.

Le praséodyme a un spin nucléaire $I = 5/2$. Malgré le quenching du moment angulaire total dû à la basse symétrie des sites de l'yttrium, il possède une structure hyperfine en l'absence de champ magnétique, représentée sur la figure 1.8, avec 3 doublets hyperfins dans l'état fondamental 3D_4 et 3 doublets hyperfins dans l'état excité 1D_2 . Ces sous-niveaux sont notés $|\pm n/2\rangle$ avec $n = 1, 3, 5$, même si les états propres du hamiltonien sont en général loin des états propres de la projection du moment angulaire J_z . Dans ce matériau, un système en Λ peut être construit sur deux sous-niveaux hyperfins de l'état fondamental, de façon à ce que chacune des transitions du Λ ait une force d'oscillateur raisonnable. Les forces d'oscillateurs relatives de chacune des 9 transitions existantes sont données dans le tableau 1.4 [81]. On voit dans ce tableau que deux systèmes en Λ peuvent être utilisés, s'appuyant tous deux sur les sous-niveaux $|\pm 1/2\rangle$ et $|\pm 3/2\rangle$ de l'état fondamental 3H_4 . L'un utilise le sous-niveau $|\pm 1/2\rangle$ de l'état excité 1D_2 , et l'autre utilise $|\pm 3/2\rangle$ comme niveau intermédiaire. C'est le premier d'entre eux, plus équilibré, qui est généralement utilisé pour des expériences mettant en jeu un système en Λ tels les échos

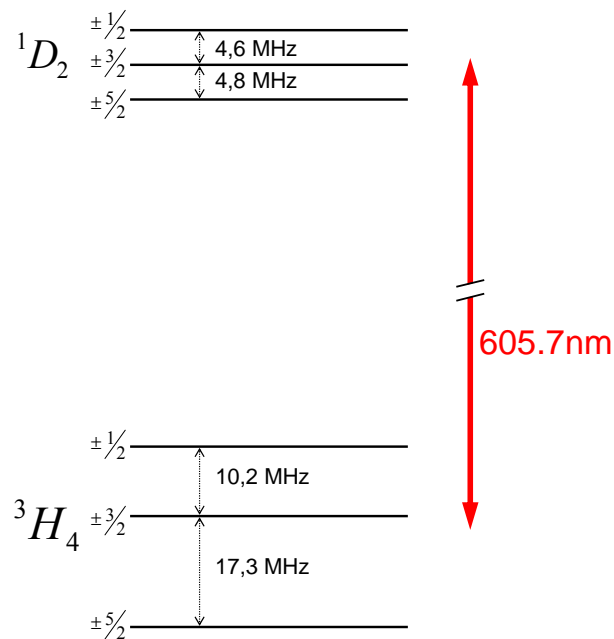


FIG. 1.8 – Structure hyperfine du Pr :YSO

Raman [82], le passage adiabatique Raman stimulé (STIRAP) [83, 29], la transparence induite électromagnétiquement [30], ou encore la lumière arrêtée [32]. Ce système en Λ présente un écart en fréquence entre les deux sous-niveaux hyperfins fondamentaux de 10,3 MHz.

La durée de vie des populations dans les sous-niveaux hyperfins est de plusieurs minutes dans le Pr :YSO [84]. La durée de vie des cohérences entre les deux sous-niveaux hyperfins $|\pm 3/2\rangle$ et $|\pm 1/2\rangle$ est de $500 \mu\text{s}$ à une température de 2 K. En appliquant un champ magnétique permanent de quelques centaines de Gauss, Fraval *et al.* ont observé une réduction du couplage dipôle-dipôle se manifestant par une augmentation dramatique de T_2 jusqu'à 82 ms [66]. Ils ont réussi à augmenter encore cette durée de vie jusqu'à 30 secondes, en utilisant des techniques issues de la résonance magnétique nucléaire [68].

		Etat excité		
		$\pm 1/2$	$\pm 3/2$	$\pm 5/2$
Etat fondamental	$\pm 1/2$	<i>0,55</i>	0,38	0,07
	$\pm 3/2$	<i>0,40</i>	0,60	0,01
	$\pm 5/2$	0,05	0,02	0,93

TAB. 1.4 – Forces d’oscillateurs relatives des neuf transitions possibles dans Pr :YSO [81]. Les rangées correspondent aux différents sous-niveaux de l’état fondamental, et les colonnes aux sous-niveaux de l’état excité. Deux systèmes en Λ peuvent être considérés. Ils sont matérialisés par les caractères *italiques* pour l’un, et **gras** pour l’autre.

Chapitre 2

Construction d'un système en Λ dans le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$

Dans les cristaux dopés aux ions de terre rare usuels, à savoir les cristaux dopés aux ions Pr ou Eu, le système en Λ est construit sur la structure hyperfine de l'état fondamental. En revanche, dans les cristaux dopés au ions Tm^{3+} , il est nécessaire d'appliquer un champ magnétique externe pour révéler la structure hyperfine.

Dans ce chapitre, nous allons décrire la construction d'un système à 3 niveaux de type Λ dans l'ion thulium dopé dans une matrice de YAG, à partir d'un ensemble de sous-niveaux hyperfins dégénérés. Nous verrons en particulier l'importance de l'orientation du champ magnétique appliqué sur l'efficacité de ce système en Λ .

Nous décrirons ensuite les techniques expérimentales qui ont permis de mesurer l'efficacité du système en Λ obtenu, à savoir la spectroscopie par hole-burning, la nutation optique, et les échos de photons.

2.1 Introduction

La plupart des protocoles de stockage d'un signal lumineux dans un système atomique reposent sur l'existence d'un système à 3 niveaux atomiques de type Λ , où deux sous-niveaux d'un état électronique sont reliés par des transitions optiques à un même niveau électronique d'énergie supérieure, comme représenté en figure 2.1.

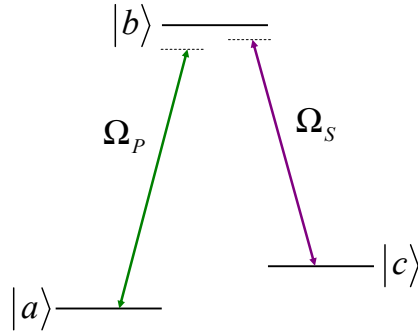


FIG. 2.1 – Système à trois niveaux en Λ . Les deux sous-niveaux fondamentaux $|a\rangle$ et $|c\rangle$ sont couplés à un même niveau excité par des transitions optiques.

Dans le chapitre 2, nous avons décrit les niveaux d'énergie des ions en matrice cristalline et avons observé que l'ion Tm ne possède pas de structure hyperfine en l'absence de champ magnétique externe, ni au premier, ni au deuxième ordre de perturbation. Les deux sous-niveaux hyperfins $|m_I = +\frac{1}{2}\rangle$ et $|m_I = -\frac{1}{2}\rangle$ correspondants aux états propres de l'opérateur I_z sont donc dégénérés.

Dans un tel système, une transition optique ne peut pas retourner le spin nucléaire. Cela se traduit par la règle de sélection : $\Delta m_I = 0$. On a alors deux systèmes à 2 niveaux indépendants, constitués pour l'un, des deux sous-niveaux $|m_I = +\frac{1}{2}\rangle$ de l'état fondamental et de l'état excité, et pour l'autre, des deux sous-niveaux $|m_I = -\frac{1}{2}\rangle$ de l'état fondamental et de l'état excité, comme représenté sur la figure 2.2(a). Pour construire un système à 3 niveaux, il faut donc non seulement lever la dégénérescence sur les sous-niveaux $|m_I\rangle$, mais il faut aussi relaxer la règle de sélection. En présence d'un champ magnétique, l'effet Zeeman nucléaire seul induit un écart énergétique entre les sous-niveaux, identique dans les deux états électroniques. Cependant, les deux systèmes à deux niveaux restent indépendants, comme le montre la figure 2.2(b). L'effet Zeeman nucléaire ne suffit donc pas pour créer un système à 3 niveaux où les deux sous-niveaux de l'état fondamental seraient reliés par des transitions optiques au *même* sous-niveau de l'état électronique excité.

Comme nous l'avons présenté dans la partie 1.3.3, les ions en matrice subissent d'autres interactions magnétiques que l'effet Zeeman nucléaire : l'interaction hyperfine, l'effet Zeeman électronique, l'interaction quadropolaire électrique, le couplage entre l'interaction hyperfine et l'effet Zeeman électronique, et l'effet Zeeman nucléaire. L'effet Zeeman

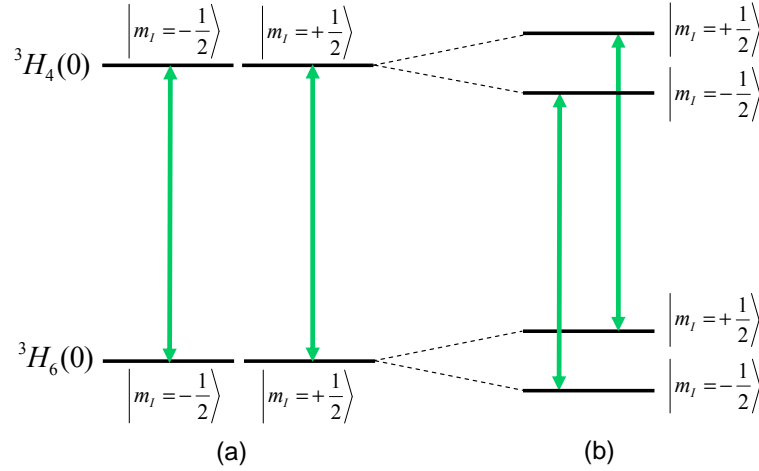


FIG. 2.2 – Ensemble de deux systèmes à deux niveaux indépendants dans Tm :YAG (a) sans champ magnétique (b) avec champ magnétique, en ne tenant compte que de l'effet Zeeman nucléaire. Seules les transitions optiques autorisées par la règle de sélection sont représentées.

électronique n'occasionne qu'un simple déplacement des niveaux, sans levée de dégénérescence. Parmi toutes ces interactions, outre l'effet Zeeman nucléaire et l'effet Zeeman électronique, la seule dont la contribution ne s'annule pas est le couplage au deuxième ordre entre l'interaction Zeeman électronique et l'interaction hyperfine. Dans le hamiltonien, le terme correspondant s'écrit :

$$2A_J g_J \mu_B \vec{B} \cdot \Lambda \cdot \vec{I} \quad (2.1)$$

où Λ est un tenseur d'ordre 3 défini par :

$$\Lambda_{\alpha\beta} = \sum_{n=1}^{2J+1} \frac{\langle 0 | J_\alpha | n \rangle \langle n | J_\beta | 0 \rangle}{E_n - E_0} \quad (2.2)$$

où E_0 est l'énergie de l'état $|0\rangle$ de plus basse énergie, et E_n l'énergie d'un autre état $|n\rangle$ du même multiplet électronique.

Le tenseur Λ étant a priori anisotrope, les états propres de l'interaction Zeeman nucléaire exacerbée seront des mélanges des états propres de l'interaction Zeeman nucléaire $|m_I = +\frac{1}{2}\rangle$ et $|m_I = -\frac{1}{2}\rangle$. Comme Λ dépend de chaque état électronique, ce mélange entre les états $|m_I = \pm\frac{1}{2}\rangle$ peut être différent dans l'état fondamental et dans l'état excité. Ceci permettrait de coupler optiquement les deux sous-niveaux de l'état fondamental à un même sous-niveau de l'état excité, sans violer pour autant la règle de sélection $\Delta m_I = 0$. On obtiendrait alors un système à trois niveaux efficace.

Nous allons présenter maintenant les différentes étapes de la construction d'un système en Λ dans le Tm :YAG.

2.2 Cadre théorique

2.2.1 Orientation des dipôles dans les sites de l'yttrium

Le groupe ponctuel de symétrie diédral d'ordre n , appelé D_n , est constitué du groupe des rotations d'angle $2k\pi/n$ (avec k entier) autour d'un axe d'ordre n (appelé axe principal), combinées avec n rotations de π autour d'axes d'ordre 2 orthogonaux à l'axe principal [85]. Dans le YAG, les sites de l'yttrium possèdent une symétrie D_2 . Ce groupe se réduit à trois axes de symétrie d'ordre 2 perpendiculaires deux à deux. Le produit de deux rotations de π autour de deux de ces axes correspond à une rotation de π autour du troisième axe.

On a vu par ailleurs que comme l'ion thulium est un ion non-Kramers, lorsqu'il est dopé dans un site de basse symétrie, tous les états électroniques sont des états singulets. Comme les opérateurs de rotation du groupe de symétrie commutent avec le hamiltonien du système, les états électroniques sont des états propres des opérateurs rotation, avec les valeurs propres ± 1 . Ainsi, chaque état électronique possède un jeu de valeurs propres qui caractérise ses propriétés de rotation autour des trois axes d'un site donné. Le produit de ces trois valeurs propres doit être égal à $+1$.

Chaque élément de matrice de la transition entre deux états électroniques doit rester inchangé à travers toute opération de symétrie, et cette invariance n'est satisfaite que pour une seule des composantes du dipôle le long des axes du site. Nous allons illustrer cela par un exemple. Considérons le cas décrit dans le tableau 2.1, où les états fondamental et excité sont respectivement associés aux jeux de valeurs propres $(1, 1, 1)$ et $(1, -1, -1)$ pour les trois rotations. La valeur propre associée à l'élément de matrice $\langle g | \mu_u | e \rangle$ où $u \in \{x, y, z\}$ pour une rotation autour de l'un des axes locaux est donnée par le produit des valeurs propres respectivement associées à l'état fondamental $|g\rangle$, la composante selon u du dipôle $\vec{\mu}$ et à l'état excité $|e\rangle$, pour la rotation considérée. Dans cet exemple, on constate que seul l'élément de matrice selon x est invariant par toutes les opérations de symétrie. Ainsi, dans cet exemple, les composantes du dipôle de transition sont nulles suivant les axes y et z .

Si on généralise cet exemple à tous les jeux de valeurs propres possibles pour l'état fondamental et l'état excité, on trouve que le moment dipolaire de la transition est nécessairement aligné le long de l'un des trois axes du site, et qu'il y a 3 orientations possibles du dipôle de transition, qui sont dirigées selon les 3 axes x , y , et z . En prenant en compte la symétrie cubique du cristal, on compte au total 9 orientations possibles pour le dipôle de transition, bien que les sites soient tous équivalents du point de vue cristallographique. On dit que les sites sont *orientationnellement inéquivalents*. Expérimentalement, seules six de ces neuf orientations ont été observées. On a représenté en figure 2.4 ces six groupes

		Valeur propre par rotation de π autour de		
		Ox	Oy	Oz
Etat fondamental		1	1	1
Etat excité		1	-1	-1
Moment dipolaire	x	1	-1	-1
	y	-1	1	-1
	z	1	-1	-1
Elément de matrice	x	1	1	1
	y	-1	-1	1
	z	-1	1	-1

TAB. 2.1 – Propriétés de symétrie des éléments de matrice des composantes du dipôle de transition entre l'état fondamental associé aux valeurs propres $(1, 1, 1)$ et l'état excité associé aux valeurs propres $(1, -1, -1)$.

de sites par des prismes orthorhombiques, c'est-à-dire des parallélépipèdes rectangles, qui symbolisent la symétrie D_2 du champ cristallin [86, 87]. On définit pour chaque site un repère local (x, y, z) , tel que par convention, le moment dipolaire est orienté dans la direction y [56]. Les axes locaux (x, y, z) du site 1 sont orientés respectivement selon les directions $[1\bar{1}0]$, $[110]$ et $[001]$. Les systèmes d'axes locaux des autres sites se déduisent de celui-ci par les opérations de symétrie cubique du cristal. Considérons la maille élémentaire de forme cubique représentée dans la figure 2.3. Une rotation d'angle π autour de l'axe reliant le milieu de deux arêtes opposées du cube transforme le site 3 en site 6. Les sites 3 et 5 (respectivement, les sites 2 et 4) s'obtiennent à partir du site 1 (respectivement à partir du site 6) par des rotation d'angle $2\pi/3$ autour de la direction $[111]$. Cette rotation amène également le site 6 sur les sites 2 et 4.

Une conséquence de l'existence de ces six sites est la multiplicité des pulsations de Rabi lorsque le cristal de $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ est excité par un faisceau lumineux [87]. En effet, la pulsation de Rabi est définie par :

$$\Omega = \frac{\vec{\mu} \cdot \vec{E}}{\hbar} \quad (2.3)$$

où $\vec{\mu}$ représente le moment dipolaire de la transition et \vec{E} le champ électrique. Si le champ électrique forme un angle différent avec chacun des 6 groupes de dipôles, alors la pulsation de Rabi pourra prendre jusqu'à 6 valeurs différentes selon le site considéré. On a tout intérêt à faire en sorte que les sites excités présentent tous la même projection du moment dipolaire sur la direction de polarisation du champ exciteur, afin que les pulsations de Rabi non nulles soient toutes égales. Dans les travaux présentés ici, on a fixé

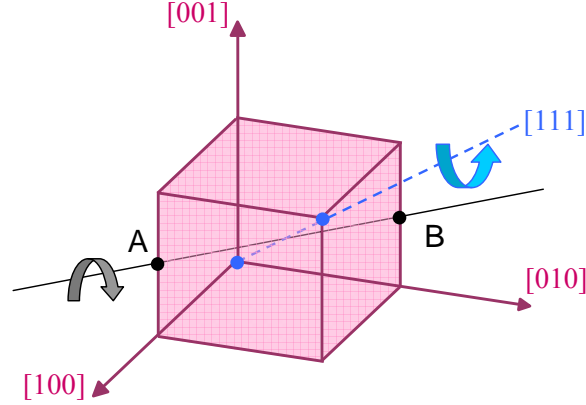


FIG. 2.3 – Rotations du groupe de symétrie cubique : rotation d'axe $2\pi/3$ autour de l'axe $[111]$. (ligne pointillée), et rotation d'angle π autour de l'axe AB reliant les milieux des arêtes opposées (ligne continue).

la direction de propagation du champ exciteur le long de $[1\bar{1}0]$ dans le repère cristallin, comme illustré dans la figure 2.4. Le vecteur champ électrique sera donc orienté dans le plan orthogonal à $[1\bar{1}0]$. Dans ce cas, il existe au moins deux polarisations du champ pour lesquelles tous les ions sont excités avec la même pulsation de Rabi :

- (a) Si le champ électrique est polarisé selon $[111]$, les pulsations de Rabi qui décrivent l'interaction entre la lumière et les ions des sites 2, 4, et 6, sont nulles. En effet, les dipôles correspondants sont perpendiculaires au champ électrique, donc ces ions ne sont pas excités. Les trois sites restants, 1, 3, et 5, ont même pulsation de Rabi. Le produit scalaire du vecteur unitaire colinéaire au champ électrique et du vecteur unitaire colinéaire au dipôle du site 1 par exemple, vaut :

$$\begin{pmatrix} 1/\sqrt{3} \\ 1/\sqrt{3} \\ 1/\sqrt{3} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} 1/\sqrt{2} \\ 1/\sqrt{2} \\ 0 \end{pmatrix} = \sqrt{\frac{2}{3}} \quad (2.4)$$

- (b) Si le champ est polarisé selon $[001]$, ce sont les sites 1 et 2 qui ne sont pas excités car leurs moments dipolaires sont orthogonaux au champ électrique. Les dipôles des sites restants (3, 4, 5, et 6) forment un angle de $\pi/4$ avec la direction du champ électrique. Le produit scalaire du vecteur unitaire colinéaire au champ électrique et du vecteur unitaire colinéaire au dipôle du site 3 par exemple, vaut :

$$\begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} 0 \\ 1/\sqrt{2} \\ 1/\sqrt{2} \end{pmatrix} = \frac{1}{\sqrt{2}} \quad (2.5)$$

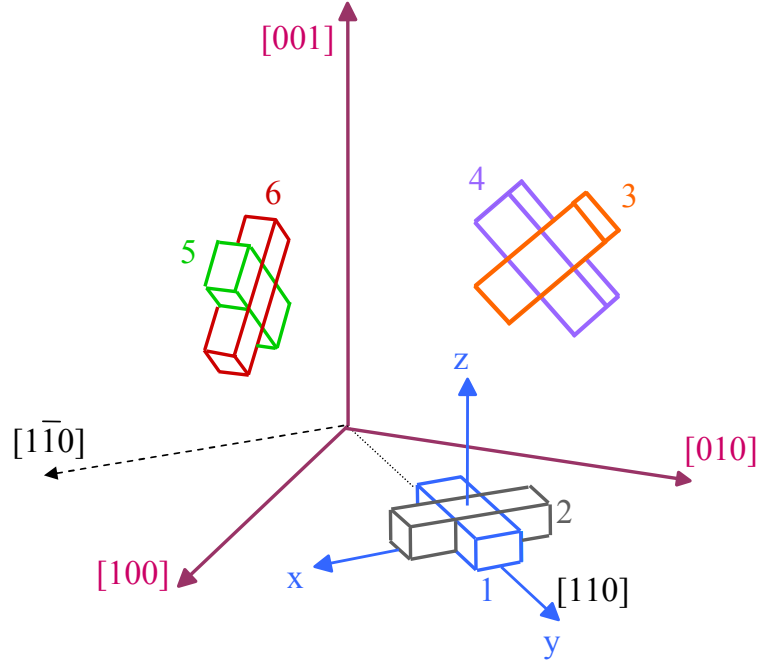


FIG. 2.4 – Orientation des 6 sites de l'yttrium dans le YAG. Chaque parallélépipède symbolise la symétrie D_2 du champ cristallin. Le dipôle de transition de chaque site est orienté selon la direction de la plus grande dimension du parallélépipède, c'est-à-dire l'axe y . Les axes x , y et z représentés ici sont les axes locaux du site 1. Le faisceau exciteur se propage dans la direction $[1\bar{1}0]$.

La pulsation de Rabi est $2/\sqrt{3}$ plus grande dans le cas (a) que dans le cas (b). Le coefficient d'absorption α , lui, est proportionnel au nombre d'ions excités et au carré de la projection du moment dipolaire le long du champ électrique. On a donc :

$$\frac{\alpha_{[111]}}{\alpha_{[001]}} = \frac{3(\sqrt{\frac{2}{3}})^2}{4(\frac{1}{\sqrt{2}})^2} = 1 \quad (2.6)$$

Le coefficient d'absorption est donc le même dans les deux cas considérés. Le plus grand nombre d'atomes excités dans le cas (b) compense la plus faible interaction avec le champ électrique.

2.2.2 Construction d'un système en Λ

Interaction Zeeman nucléaire exacerbée

Comme on l'a vu précédemment, au deuxième ordre de perturbation, le terme dominant du hamiltonien donné par l'équation (1.23) est le terme H'_{Z_n} d'*interaction Zeeman nucléaire exacerbée*, qui décrit l'interaction Zeeman nucléaire et le couplage au deuxième

ordre entre l'interaction hyperfine et l'effet Zeeman électronique. Or comme les sites sont de symétrie D_2 , leurs axes locaux (x, y, z) sont également les axes principaux du tenseur Λ défini par l'équation (2.2). Cela signifie que le tenseur Λ est diagonal dans le repère local de chaque site défini en partie 2.2.1. La définition de l'orientation du site est cruciale quand un champ magnétique extérieur est appliqué, puisque Λ est anisotrope et n'est donc pas invariant vis-à-vis de la permutation des axes. Dans le repère local d'un site donné, H'_{Zn} peut donc s'écrire :

$$H'_{Zn} = -\hbar(\gamma_x B_x I_x + \gamma_y B_y I_y + \gamma_z B_z I_z) \quad (2.7)$$

où x, y et z sont les axes principaux du tenseur Λ , qui coïncident avec le repère local de chaque site. Les facteurs gyromagnétiques sont donnés par :

$$\gamma_\alpha = \gamma_n + \frac{2g_J \mu_B A_J \Lambda_{\alpha\alpha}}{\hbar} \quad (2.8)$$

Soit $|+\rangle = |m_I = +\frac{1}{2}\rangle$ et $|-\rangle = |m_I = -\frac{1}{2}\rangle$ les états propres de l'opérateur I_z . Dans la base $\{|+\rangle, |-\rangle\}$, les opérateurs I_x, I_y , et I_z s'écrivent :

$$I_x = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \quad I_y = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & i \\ -i & 0 \end{pmatrix} \quad I_z = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} \quad (2.9)$$

Dans cette base, le hamiltonien H'_{Zn} s'écrit :

$$H'_{Zn} = -\frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} \gamma_z B_z & \gamma_x B_x + i\gamma_y B_y \\ \gamma_x B_x - i\gamma_y B_y & -\gamma_z B_z \end{pmatrix} \quad (2.10)$$

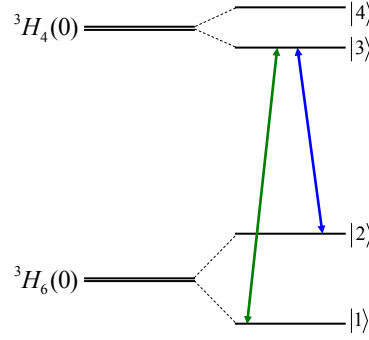
Soient $|1\rangle$ et $|2\rangle$ les états propres du hamiltonien total dans l'état électronique fondamental, et $|3\rangle$ et $|4\rangle$ les états propres du hamiltonien dans l'état électronique excité. Un système à trois niveaux en Λ est caractérisé par le rapport R entre les probabilités de transition selon les deux branches du Λ . S'il est construit par exemple sur les états $|1\rangle, |2\rangle$ et $|3\rangle$ de l'état excité, comme schématisé sur la figure 2.5, le rapport R peut s'écrire :

$$R = \left| \frac{\langle 2|3\rangle}{\langle 1|3\rangle} \right|^2 \quad (2.11)$$

Les états $|1\rangle$ et $|2\rangle$ (respectivement, $|3\rangle$ et $|4\rangle$) ont la même fonction d'onde électronique car ils appartiennent tous deux à l'état électronique fondamental ${}^3H_6(0)$ (respectivement, excité ${}^3H_4(0)$). Ils peuvent s'écrire comme le produit tensoriel de l'état électronique $|\Psi_g\rangle$ ou $|\Psi_e\rangle$ et de leur partie nucléaire :

$$|1\rangle = |\Psi_g\rangle \otimes |1\rangle_{nucl} \quad \text{et} \quad |2\rangle = |\Psi_g\rangle \otimes |2\rangle_{nucl} \quad (2.12)$$

$$|3\rangle = |\Psi_e\rangle \otimes |3\rangle_{nucl} \quad \text{et} \quad |4\rangle = |\Psi_e\rangle \otimes |4\rangle_{nucl} \quad (2.13)$$

FIG. 2.5 – Système à 3 niveaux construit sur les états $|1\rangle$, $|2\rangle$ et $|3\rangle$.

Le rapport de branchement s'exprime donc simplement en fonction des parties nucléaires des états sur lesquels est construit le système en Λ :

$$R = \left| \frac{\langle \Psi_g | \otimes |2\rangle_{nucl} | \Psi_e \rangle \otimes |3\rangle_{nucl} \rangle}{\langle \Psi_g | \otimes |1\rangle_{nucl} | \Psi_e \rangle \otimes |3\rangle_{nucl} \rangle} \right|^2 = \left| \frac{\langle \Psi_g | \Psi_e \rangle \langle 2|3 \rangle_{nucl}}{\langle \Psi_g | \Psi_e \rangle \langle 1|3 \rangle_{nucl}} \right|^2 \quad (2.14)$$

$$R = \left| \frac{\langle 2|3 \rangle_{nucl}}{\langle 1|3 \rangle_{nucl}} \right|^2 \quad (2.15)$$

Dans un système en Λ idéal, les deux transitions ont des probabilités égales, et le rapport de branchement est égal à 1. Si par contre l'une des transitions est interdite, alors $R = 0$ ou $R = \infty$.

Dans toute la suite, on définit le rapport de branchement comme le quotient entre la probabilité de la transition faible et la probabilité de la transition forte du système en Λ . Il est donc toujours inférieur à 1. Optimiser le système en Λ consiste donc à maximiser le rapport de branchement.

On a considéré jusqu'ici le système en Λ construit sur les 3 niveaux $|1\rangle$, $|2\rangle$ et $|3\rangle$. On peut construire de manière équivalente le système en Λ sur les niveaux $|1\rangle$, $|2\rangle$ et $|4\rangle$. Leurs rapports de branchement sont égaux. En effet, les probabilités des transitions $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ et $|2\rangle \rightarrow |4\rangle$ sont égales. De même, les probabilités des transitions $|1\rangle \rightarrow |4\rangle$ et $|2\rangle \rightarrow |3\rangle$ sont égales.¹

$$R_{123} = \left| \frac{\langle 2|3 \rangle}{\langle 1|3 \rangle} \right|^2 = \left| \frac{\langle 1|4 \rangle}{\langle 2|4 \rangle} \right|^2 = R_{124} \quad (2.16)$$

Le choix parmi les deux sous-niveaux de l'état excité ne modifie donc pas le rapport de branchement.

Champ magnétique effectif

On peut se représenter l'interaction Zeeman nucléaire exacerbée comme un effet Zeeman nucléaire dû à un champ magnétique effectif \vec{B}_{eff} , égal à la somme du champ ma-

¹Nous verrons dans le chapitre 3 que les moments dipolaires de ces transitions, eux, ne sont pas égaux.

gnétique appliqué et du champ magnétique additionnel dû à la réorientation des nuages électroniques sous l'effet du champ magnétique appliqué. En effet, l'opérateur hamiltonien Zeeman nucléaire exacerbé H'_{Zn} donné dans l'équation (2.7) peut s'écrire aussi sous la forme :

$$H'_{Zn} = -\hbar\gamma_n\vec{B}_{\text{eff}} \cdot \vec{I} \quad (2.17)$$

où γ_n est le facteur gyromagnétique du noyau, et \vec{B}_{eff} est le champ magnétique effectif, défini par :

$$\vec{B}_{\text{eff}} = \frac{1}{\gamma_n} (\gamma_x B_x, \gamma_y B_y, \gamma_z B_z) \quad (2.18)$$

On définit enfin le vecteur unitaire \vec{b}_{eff} comme le vecteur directeur du champ magnétique effectif \vec{B}_{eff} .

Le hamiltonien Zeeman nucléaire exacerbé H'_{Zn} est donné sous forme matricielle dans l'équation (2.10). Il admet deux valeurs propres distinctes :

$$\begin{cases} E_1 &= -\frac{\hbar}{2} \sqrt{\gamma_x^2 B_x^2 + \gamma_y^2 B_y^2 + \gamma_z^2 B_z^2} \\ E_2 &= +\frac{\hbar}{2} \sqrt{\gamma_x^2 B_x^2 + \gamma_y^2 B_y^2 + \gamma_z^2 B_z^2} \end{cases} \quad (2.19)$$

L'interaction Zeeman nucléaire exacerbée provoque donc une levée de dégénérescence des sous-niveaux de spin nucléaire. L'éclatement (ou *splitting*) en fréquence Δ entre les sous-niveaux est :

$$\Delta = \frac{E_2 - E_1}{\hbar} = \sqrt{\gamma_x^2 B_x^2 + \gamma_y^2 B_y^2 + \gamma_z^2 B_z^2} \quad (2.20)$$

Le champ magnétique effectif unitaire \vec{b}_{eff} peut s'écrire de façon simple :

$$\vec{b}_{\text{eff}} = \frac{1}{\Delta} (\gamma_x B_x, \gamma_y B_y, \gamma_z B_z) = (X, Y, Z) \quad (2.21)$$

Dans la base $\{|+\rangle, |-\rangle\}$, en fonction des coordonnées de \vec{b}_{eff} , le hamiltonien H'_{Zn} se met sous la forme :

$$H'_{Zn} = -\frac{\hbar\Delta}{2} \begin{pmatrix} Z & X + iY \\ X - iY & -Z \end{pmatrix} \quad (2.22)$$

Soit $|1\rangle$ et $|2\rangle$ les deux vecteurs propres du hamiltonien H'_{Zn} relatifs aux valeurs propres E_1 et E_2 . On a :

$$|1\rangle = \frac{1}{\sqrt{2(1-Z)}} \begin{pmatrix} X + iY \\ 1 - Z \end{pmatrix} \quad \text{et} \quad |2\rangle = \frac{1}{\sqrt{2(1+Z)}} \begin{pmatrix} X + iY \\ -1 - Z \end{pmatrix} \quad (2.23)$$

$$\text{avec} \quad E_1 = -\frac{\hbar\Delta}{2} \quad \text{et} \quad E_2 = +\frac{\hbar\Delta}{2} \quad (2.24)$$

D'après l'expression (2.15), on peut montrer que le rapport de branchement s'exprime directement comme une fonction des vecteurs unitaires \vec{b}_{eff}^g et \vec{b}_{eff}^e :

$$R = \frac{\|\vec{b}_{\text{eff}}^e \times \vec{b}_{\text{eff}}^g\|^2}{(1 + \vec{b}_{\text{eff}}^e \cdot \vec{b}_{\text{eff}}^g)^2} \quad (2.25)$$

Cette expression peut aussi se mettre sous la forme suivante :

$$R = \left(\frac{1 - \vec{b}_{\text{eff}}^e \cdot \vec{b}_{\text{eff}}^g}{1 + \vec{b}_{\text{eff}}^e \cdot \vec{b}_{\text{eff}}^g} \right)^2 = \left(\frac{1 - \cos \alpha_{\text{eff}}}{1 + \cos \alpha_{\text{eff}}} \right)^2 = \tan^2 \frac{\alpha_{\text{eff}}}{2} \quad (2.26)$$

où α_{eff} représente l'angle formé par les deux vecteurs \vec{B}_{eff}^g et \vec{B}_{eff}^e . Le rapport de branchement dépend exclusivement de la *direction relative* des vecteurs \vec{B}_{eff}^g et \vec{B}_{eff}^e . Si les champs magnétiques effectifs sont colinéaires, alors $R = 0$. Si au contraire les champs magnétiques sont orthogonaux, on obtient un système en Λ idéal, avec $R = 1$.

Remarquons aussi que, pour maximiser le rapport de branchement R , il faut que l'angle α_{eff} soit aussi proche de $\pm\pi/2$ que possible. Cela équivaut à maximiser la quantité $|\sin \alpha_{\text{eff}}|$ qui est égale à la norme du produit vectoriel $\|\vec{b}_{\text{eff}}^e \times \vec{b}_{\text{eff}}^g\|$.

2.2.3 Optimisation du champ magnétique appliqué

Propriétés d'anisotropie du tenseur gyromagnétique

Un calcul complet du champ cristallin dans le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ a été réalisé en 2005 par Olivier Guillot-Noël et Philippe Goldner [88], en particulier afin de déterminer théoriquement les composantes du tenseur gyromagnétique, et de prévoir comment obtenir un système à 3 niveaux en Λ optimal. Les valeurs théoriques des composantes du tenseur Λ et du tenseur gyromagnétique γ sont données dans le tableau 2.2.

	Etat fondamental ${}^3H_6(0)$	Etat excité ${}^3H_4(0)$
Λ_{xx}	-4×10^{-4}	-7×10^{-4}
Λ_{yy}	$-1,7 \times 10^{-2}$	$-2,7 \times 10^{-3}$
Λ_{zz}	-2×10^{-4}	-1×10^{-4}
γ_x (MHz/T)	18,9	22,3
γ_y (MHz/T)	559,6	75,2
γ_z (MHz/T)	11,2	6,3

TAB. 2.2 – Valeurs théoriques des composantes des tenseurs Λ et γ dans le repère local de chaque site du $\text{Tm}:\text{YAG}$ [88].

On peut déduire de ces valeurs plusieurs propriétés :

- (i) Le tenseur γ est fortement anisotrope, dans l'état fondamental comme dans l'état excité :

$$\begin{cases} \gamma_y^{(g)} \gg \gamma_x^{(g)}, \gamma_z^{(g)} \\ \gamma_y^{(e)} \gg \gamma_x^{(e)}, \gamma_z^{(e)} \end{cases} \quad (2.27)$$

(ii) L'anisotropie dans le plan (x, z) est similaire dans les états fondamental et excité :

$$\left(\frac{\gamma_x^{(g)}}{\gamma_z^{(g)}} - \frac{\gamma_x^{(e)}}{\gamma_z^{(e)}} \right)^2 \ll \left(\frac{\gamma_x^{(g)}}{\gamma_z^{(g)}} + \frac{\gamma_x^{(e)}}{\gamma_z^{(e)}} \right)^2 \quad (2.28)$$

(iii) L'anisotropie dans le plan (x, y) est bien plus importante dans l'état fondamental que dans l'état excité :

$$\frac{\gamma_y^{(g)}}{\gamma_x^{(g)}} \gg \frac{\gamma_y^{(e)}}{\gamma_x^{(e)}} \quad (2.29)$$

Nous appellerons cette propriété la *disparité d'anisotropie* du tenseur gyromagnétique dans le plan (x, y) .

(iv) Le tenseur gyromagnétique présente aussi une *disparité d'anisotropie* dans le plan (y, z) , mais celle-ci est moins importante que dans le plan (x, y) .

$$\frac{\gamma_y^{(g)}/\gamma_x^{(g)}}{\gamma_y^{(e)}/\gamma_x^{(e)}} \gg \frac{\gamma_y^{(g)}/\gamma_z^{(g)}}{\gamma_y^{(e)}/\gamma_z^{(e)}} \quad (2.30)$$

On peut tout d'abord étudier les conséquences de la propriété (i) qui rend compte de la forte anisotropie du tenseur γ . Si le champ magnétique appliqué possède une composante importante selon Oy , les champs magnétiques effectifs dans les deux états électroniques vont être quasiment alignés avec l'axe Oy . L'angle α_{eff} entre ces deux champs effectifs sera alors très faible, et le rapport de branchement quasiment nul. On a donc intérêt à orienter le champ magnétique appliqué \vec{B} de façon à ce qu'il ait une faible composante selon Oy . Cependant, le champ magnétique ne doit pas non plus être appliqué orthogonalement à l'axe Oy . En effet, la propriété (ii) signifie que les deux champs magnétiques effectifs seraient alors quasiment colinéaires dans le plan (x, z) .

Considérons un champ magnétique appliqué dans le plan (x, z) . Si, partant de 0, on ajoute progressivement à ce champ une composante à ce champ sur l'axe Oy , la composante selon Oy du champ effectif \vec{B}_{eff}^g va croître beaucoup plus rapidement que celle du champ \vec{B}_{eff}^e , à cause de la propriété (iii) (disparité d'anisotropie dans le plan (x, y)). L'angle α_{eff} entre les deux champs magnétiques effectifs devrait être important dans cette configuration où la composante B_y du champ magnétique appliqué est faible mais non nulle.

Borne inférieure pour le rapport de branchement

Dans cette partie, nous allons chercher à optimiser le rapport de branchement R , dans le cas particulier où le champ magnétique appliqué ne peut évoluer que dans un plan spécifique, et pas dans tout l'espace. Nous obtiendrons alors une borne inférieure pour le rapport de branchement maximal attendu sans cette contrainte.

Supposons que le champ magnétique appliqué soit contenu dans le plan (x, y) . On cherche l'orientation optimale du champ appliqué qui donnera un rapport de branchement proche de 1. D'après les remarques précédentes, on sait que cette orientation sera obtenue pour un angle ξ entre le champ magnétique appliqué et l'axe Ox assez faible. Si $\xi \ll 1$, les coordonnées dans le repère (x, y, z) du champ \vec{B} peuvent s'écrire :

$$\vec{B} = \begin{pmatrix} B_x \\ B_y \\ B_z \end{pmatrix} \simeq \begin{pmatrix} B_0 \\ B_0 \xi \\ 0 \end{pmatrix} \quad (2.31)$$

Les splittings sont donnés par l'expression (2.20). Dans le cas particulier considéré,

$$\Delta_j \simeq \gamma_y^{(j)} B_0 \sqrt{r_j^2 + \xi^2} \quad (2.32)$$

où $r_j = \gamma_x^{(j)} / \gamma_y^{(j)}$ et (j) désigne l'état électronique considéré : (g) pour le fondamental et (e) pour l'excité. Les champs magnétiques effectifs unitaires donnés par l'expression (2.21) deviennent ici :

$$\vec{b}_{\text{eff}}^{(j)} \simeq \frac{1}{\sqrt{r_j^2 + \xi^2}} \begin{pmatrix} r_j \\ \xi \\ 0 \end{pmatrix} \quad (2.33)$$

Comme on l'a remarqué dans la partie 2.2.2, pour maximiser le rapport de branchement, il suffit de maximiser la norme du produit vectoriel entre les deux champs magnétiques effectifs unitaires $\vec{b}_{\text{eff}}^{(e)}$ et $\vec{b}_{\text{eff}}^{(g)}$. Celle-ci s'écrit :

$$\|\vec{b}_{\text{eff}}^{(e)} \times \vec{b}_{\text{eff}}^{(g)}\| = |\sin \alpha_{\text{eff}}| = \frac{|\xi(r_e - r_g)|}{\sqrt{r_e^2 + \xi^2} \sqrt{r_g^2 + \xi^2}} \quad (2.34)$$

Cette quantité est maximale pour $\xi = \xi_0 = \pm \sqrt{r_e r_g}$ et elle vaut :

$$|\sin \alpha_{\text{eff}}| = \frac{|r_e - r_g|}{r_e + r_g} \quad (2.35)$$

On en déduit aisément :

$$\cos \alpha_{\text{eff}} = \sqrt{1 - \sin^2 \alpha_{\text{eff}}} = \frac{2\sqrt{r_e r_g}}{r_e + r_g} \quad (2.36)$$

Le rapport de branchement maximum obtenu pour $\xi = \xi_0$ est donc :

$$R_{\text{max}} = R(\xi = \xi_0) = \frac{1 - \cos \alpha_{\text{eff}}}{1 + \cos \alpha_{\text{eff}}} = \left(\frac{\sqrt{r_e} - \sqrt{r_g}}{\sqrt{r_e} + \sqrt{r_g}} \right)^2 \quad (2.37)$$

Soit $\Delta_g^{(0)}$ et $\Delta_e^{(0)}$ les splittings respectifs des états fondamental et excité lorsque $B_y = 0$. D'après l'équation (2.32),

$$\Delta_j^{(0)} = \gamma_y^{(j)} B_0 r_j \quad (2.38)$$

Le rapport de branchement maximal et l'angle ξ_0 pour lequel ce rapport de branchement est obtenu peuvent s'écrire en fonction de ces splittings :

$$R_{max} = \left(\frac{\sqrt{\Delta_g^{(0)}/\gamma_y^{(g)}} - \sqrt{\Delta_e^{(0)}/\gamma_y^{(e)}}}{\sqrt{\Delta_g^{(0)}/\gamma_y^{(g)}} + \sqrt{\Delta_e^{(0)}/\gamma_y^{(e)}}} \right)^2 \quad (2.39)$$

$$\xi_0 = \frac{1}{B_0} \sqrt{\frac{\Delta_g^{(0)} \Delta_e^{(0)}}{\gamma_y^{(g)} \gamma_y^{(e)}}} \quad (2.40)$$

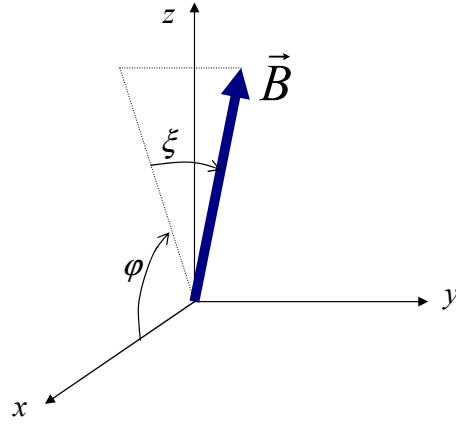


FIG. 2.6 – Définition des coordonnées du champ magnétique appliqué \vec{B} dans le repère (x, y, z) pour la détermination d'une borne inférieure pour le rapport de branchement.

Ce résultat peut être généralisé au cas où le champ magnétique appliqué \vec{B} n'est pas nécessairement dans le plan (x, z) . Supposons que le champ magnétique appliqué \vec{B} soit donné par les angles polaires ξ et φ comme représenté dans la figure 2.6. L'angle φ est fixé, et on recherche l'angle ξ pour lequel le rapport de branchement sera optimal. Comme dans la discussion du paragraphe précédent, on s'intéresse à la quantité $\|\vec{b}_{\text{eff}}^{(e)} \times \vec{b}_{\text{eff}}^{(g)}\|$. Si les anisotropies dans le plan (x, z) entre l'état électronique excité et le fondamental étaient égales, on pourrait calculer analytiquement l'angle ξ'_0 pour lequel la quantité $\|\vec{b}_{\text{eff}}^{(e)} \times \vec{b}_{\text{eff}}^{(g)}\|$ est maximale :

$$\tan \xi'_0 = \frac{\sqrt{\Delta_g \Delta_e}}{\sqrt{\gamma_y^{(g)} \gamma_y^{(e)}}} \quad (2.41)$$

Or, d'après la propriété (ii) énoncée en partie 2.2.3, ces anisotropies sont similaires, et non pas égales. L'angle ξ'_0 ne correspond donc pas exactement au maximum de $\|\vec{b}_{\text{eff}}^{(e)} \times \vec{b}_{\text{eff}}^{(g)}\|$, qui est obtenu pour l'angle ξ_0 . En revanche, par définition du maximum, le rapport de branchement calculé à la position ξ'_0 est nécessairement inférieur au rapport de branchement maximum en $\xi = \xi_0$.

$$R(\xi_0) = R_{max} \geq R(\xi'_0) \quad (2.42)$$

De plus, $R(\xi'_0)$ vérifie :

$$R(\xi'_0) \geq \left(\frac{\sqrt{\Delta_g^{(0)}/\gamma_y^{(g)}} - \sqrt{\Delta_e^{(0)}/\gamma_y^{(e)}}}{\sqrt{\Delta_g^{(0)}/\gamma_y^{(g)}} + \sqrt{\Delta_e^{(0)}/\gamma_y^{(e)}}} \right)^2 \quad (2.43)$$

où $\Delta_g^{(0)}$ et $\Delta_e^{(0)}$ sont les splittings respectifs des états fondamental et excité mesurés pour un champ magnétique tel que $\xi = 0$ et que φ est l'angle qui a été fixé au début de la discussion.

Ainsi, on peut donner une borne inférieure au rapport de branchement maximal que l'on puisse obtenir sur un système en Λ lorsqu'on écarte progressivement le champ magnétique appliqué du plan (x, z) , en gardant un angle φ fixé :

$$R_{max} \geq \left(\frac{\sqrt{\Delta_g^{(0)}/\gamma_y^{(g)}} - \sqrt{\Delta_e^{(0)}/\gamma_y^{(e)}}}{\sqrt{\Delta_g^{(0)}/\gamma_y^{(g)}} + \sqrt{\Delta_e^{(0)}/\gamma_y^{(e)}}} \right)^2 \quad (2.44)$$

On pourra trouver la démonstration complète de ce résultat dans la référence [89].

2.2.4 Splittings et rapport de branchement pour différents sites

La discussion qui précède ne prend pas en compte la multiplicité des sites dans le cas particulier du Tm^{3+} :YAG. Or, dans l'expression (2.7) du hamiltonien nucléaire Zeeman exacerbé, les coordonnées du champ magnétique appliqué sont exprimées dans le repère local (x, y, z) d'un site de substitution. Comme il existe 6 orientations possibles pour les sites du Tm^{3+} inséré dans le YAG, les splittings Δ_g et Δ_e ainsi que le rapport de branchement R peuvent être différents pour chaque site. Les sites sont alors dits *magnétiquement inéquivalents*. Cependant, en orientant le champ magnétique dans une direction bien choisie, il est possible de former des groupes de sites magnétiquement équivalents, c'est-à-dire tels que les coordonnées du champ magnétique dans le repère local sont les mêmes d'un site à l'autre. Les splittings et le rapport de branchement seront donc égaux pour tous les ions des sites appartenant à un tel groupe. Par exemple, si on oriente le champ magnétique dans la direction [111], les 6 sites se divisent en 2 groupes de sites équivalents : les sites 1, 3, et 5 d'une part, et les sites 2, 4, et 6 d'autre part.

Dans toute la suite de ce manuscrit, le champ magnétique est orienté dans le plan bissecteur orthogonal à $[1\bar{1}0]$, comme représenté sur la figure 2.7. Dans cette configuration, les 6 sites peuvent se regrouper en 4 familles de sites magnétiquement équivalents : $\{1\}$, $\{2\}$, $\{3, 5\}$, et $\{4, 6\}$. On appelle θ l'angle entre la direction du champ magnétique et la direction verticale $[001]$. Dans les axes cristallins, le champ magnétique s'écrit :

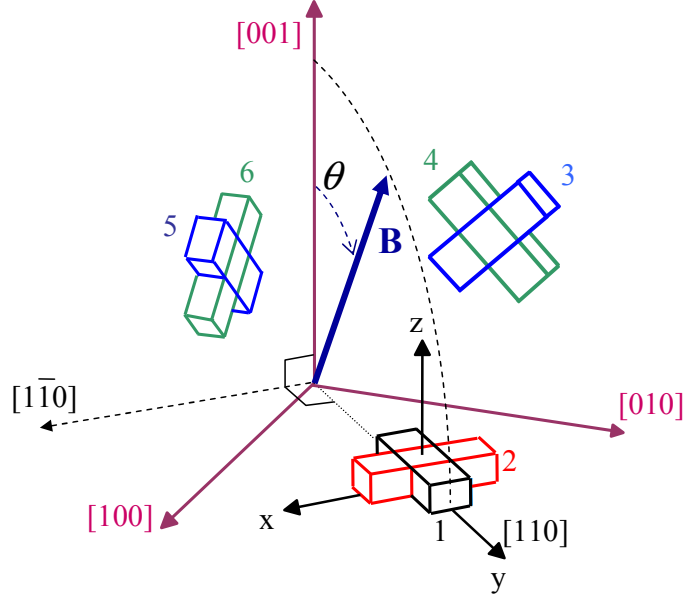


FIG. 2.7 – Equivalence des sites de substitution du thulium pour un champ magnétique \vec{B} orienté dans le plan bissecteur orthogonal à $[1\bar{1}0]$. Les sites 3 et 5 (en bleu) sont équivalents, et les sites 4 et 6 (en vert) sont équivalents. Le système d'axes locaux (x, y, z) est spécifique au site 1.

$$\vec{B} = B_0 \begin{pmatrix} \frac{\sin \theta}{\sqrt{2}} \\ \frac{\sin \theta}{\sqrt{2}} \\ \cos \theta \end{pmatrix} \quad (2.45)$$

Pour calculer les écarts énergétiques dus à l'interaction Zeeman exacerbée, on doit exprimer le champ \vec{B} dans le repère local de chacun des sites.

$$\text{Site 1 : } \vec{B} = B_0 \begin{pmatrix} 0 \\ \sin \theta \\ \cos \theta \end{pmatrix} \quad \text{Site 2 : } \vec{B} = B_0 \begin{pmatrix} \sin \theta \\ 0 \\ \cos \theta \end{pmatrix} \quad (2.46)$$

$$\text{Sites 3 et 5 : } \vec{B} = B_0 \begin{pmatrix} -\frac{\cos \theta}{\sqrt{2}} + \frac{\sin \theta}{2} \\ \frac{\cos \theta}{\sqrt{2}} + \frac{\sin \theta}{2} \\ -\frac{\sin \theta}{\sqrt{2}} \end{pmatrix} \quad \text{Sites 4 et 6 : } \vec{B} = B_0 \begin{pmatrix} \frac{\cos \theta}{\sqrt{2}} + \frac{\sin \theta}{2} \\ \frac{\cos \theta}{\sqrt{2}} - \frac{\sin \theta}{2} \\ -\frac{\sin \theta}{\sqrt{2}} \end{pmatrix} \quad (2.47)$$

Nous allons maintenant utiliser les valeurs théoriques des composantes du tenseur gyromagnétique données dans le tableau 2.2 pour prévoir les écarts énergétiques entre les sous-niveaux et le rapport de branchement d'un système en Λ construit sur ces sous-niveaux lorsqu'on applique un champ magnétique.

A partir des coordonnées du champ magnétique et de l'équation (2.20), on peut calculer les écarts énergétiques Δ_e et Δ_g entre les sous-niveaux. Les figures 2.8(a) et 2.8(b)

représentent respectivement les écarts énergétiques Δ_e et Δ_g lorsque l'angle θ varie de -90° à 90° . On a également tracé sur la figure 2.9 le rapport de branchement R calculé d'après les équations (2.21) et (2.26).

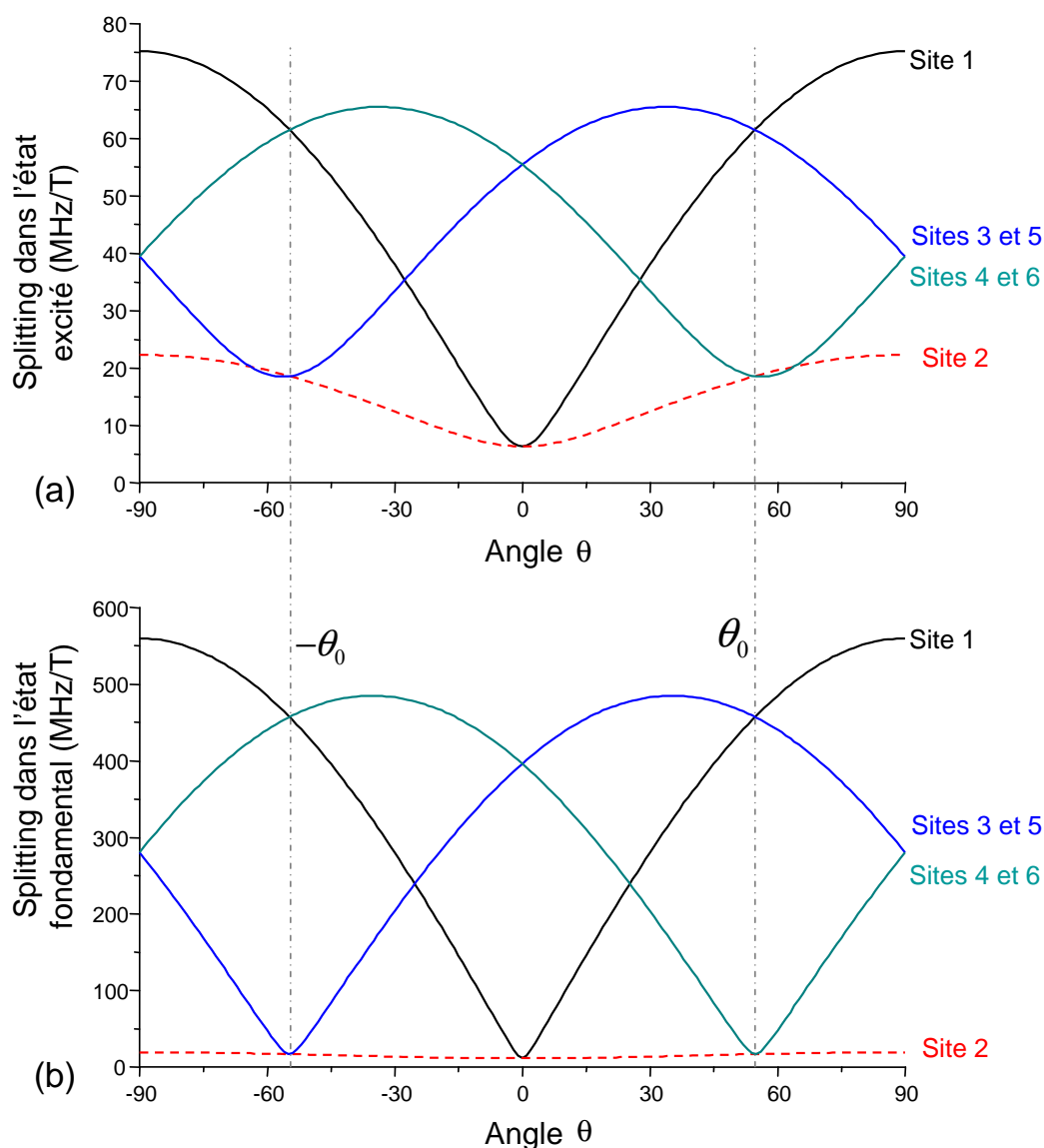


FIG. 2.8 – Ecarts énergétiques calculés pour les différentes classes de sites, en fonction de l'angle θ entre la direction du champ magnétique et la direction verticale [001]. On a utilisé les valeurs théoriques du tenseur gyromagnétique données dans le tableau 2.2. L'angle $\theta_0 = \arccos(1/\sqrt{3})$ correspond à un champ magnétique appliqué dans la direction [111].

D'après ces trois figures, on voit dans quels ions on pourra obtenir un système en Λ efficace.

Sites 4 et 6 Les écarts énergétiques Δ_e et Δ_g sont minimaux pour les sites 4 et 6 lorsque

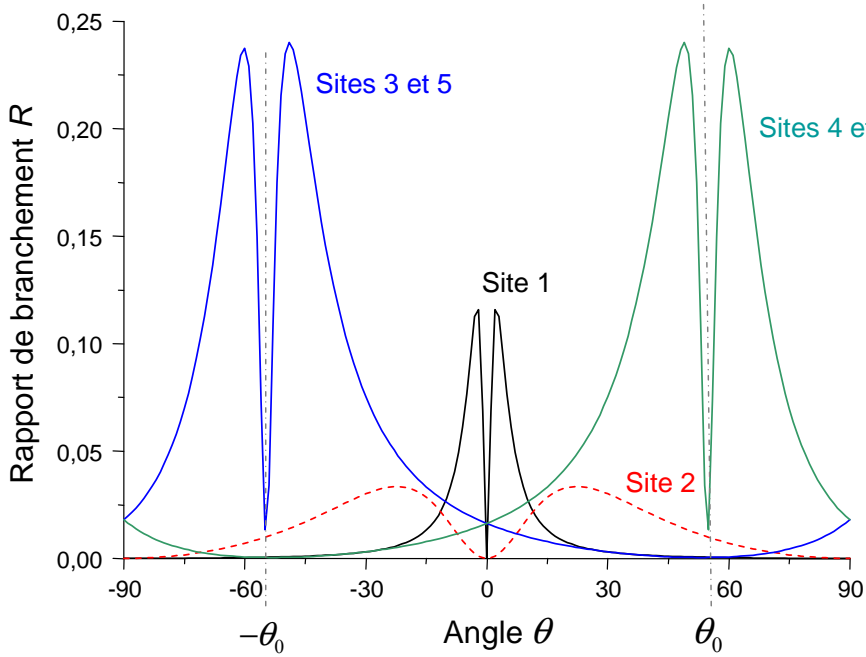


FIG. 2.9 – Rapport de branchement pour les différentes classes de sites

l'angle $\theta = \theta_0 = \arccos 1/\sqrt{3} \simeq 54,74^\circ$, c'est-à-dire lorsque le champ magnétique est dirigé selon l'axe [111]. Cela correspond à l'annulation de la composante B_y du champ appliqué dans le repère local des sites 4 et 6. Or on a vu dans la partie 2.2.3 que le maximum du rapport de branchement devait se trouver à proximité de cette orientation. Si on s'intéresse à la figure 2.9, on peut constater que le rapport de branchement est effectivement minimum en $\theta = \theta_0$, et croît rapidement autour de cette valeur. Dans les sites 4 et 6, le rapport de branchement est maximum pour $\theta = 49^\circ$ ($R_{max} = 0,240$) et $\theta = 60,1^\circ$ ($R_{max} = 0,237$).

Sites 3 et 5 Les sites 3 et 5 ont un comportement symétrique des sites 4 et 6 par rapport à $\theta = 0$. Le rapport de branchement passe par deux maxima, symétriques de ceux des sites 4 et 6 : $\theta = -49^\circ$ ($R_{max} = 0,240$) et $\theta = -60,1^\circ$ ($R_{max} = 0,237$).

Site 1 De même, les écarts énergétiques Δ_e et Δ_g sont minimaux pour le site 1 lorsque la composante B_y du champ magnétique s'annule, c'est-à-dire quand le champ magnétique est dirigé selon l'axe [001]. L'angle θ vaut alors $\theta = 0$. Cela correspond aussi à un minimum du rapport de branchement, que l'on peut voir sur la figure 2.9, Tout près de ce minimum, on observe deux maxima, en $\theta = \pm 2,3^\circ$ pour lesquels $R_{max} = 0,118$. La différence entre ce rapport de branchement maximum et celui observé pour les sites 3, 4, 5, et 6 s'explique à l'aide de la propriété (iv) énoncée dans la partie 2.2.3. En effet, quel que soit θ , le champ magnétique appliqué ne possède pas de composante selon x dans le site 1. Comme nous l'avons déjà men-

tionné, l'efficacité du système en Λ repose sur la forte disparité d'anisotropie des composantes du tenseur gyromagnétique. Or, si le champ magnétique n'a pas de composante selon x , c'est seulement l'anisotropie dans le plan (y, z) qui détermine l'efficacité du système en Λ . Et d'après la propriété (iv), la disparité d'anisotropie est plus faible dans le plan (y, z) que dans le plan (x, y) . C'est pourquoi le rapport de branchement dans le site 1 ne peut être supérieur au rapport de branchement maximal calculé pour les sites 3, 4, 5, ou 6.

Site 2 Quel que soit l'angle θ , la composante du champ magnétique sur l'axe local y du site 2 est toujours nulle. C'est pourquoi les splittings Δ_e et Δ_g pour le site 2 sont beaucoup plus faibles que dans tous les autres sites cristallins. D'autre part, d'après la propriété (ii) énoncée dans la partie 2.2.3, comme le champ magnétique est dans le plan (x, z) du site, les champs magnétiques effectifs $\bar{b}_{\text{eff}}^{(g)}$ et $\bar{b}_{\text{eff}}^{(e)}$ seront quasiment colinéaires. Ainsi, le rapport de branchement restera faible pour toutes les orientations possibles du champ magnétique considérées ici. La figure 2.9 illustre bien ce comportement spécifique du site 2.

Nous ne devons pas perdre de vue que l'objectif de cette étude est d'obtenir un groupe d'ions aussi nombreux que possibles, tous magnétiquement équivalents, et présentant un système en Λ suffisamment efficace (avec un rapport de branchement proche de 1). D'après la discussion qui précède, ce sont les ions des sites 4 et 6 d'une part, ou 3 et 5 d'autre part, qui répondent le mieux à ces critères, avec un rapport de branchement maximum de 0,24. Il faut noter ici que les sites 3 et 5 ont un comportement parfaitement symétrique de celui des sites 4 et 6. Ainsi, on pourra considérer indifféremment les sites 3 et 5 pour un champ magnétique proche de la direction $[\bar{1}\bar{1}1]$, ou les sites 4 et 6 pour un champ magnétique proche de la direction $[111]$.

Les ions du site 1 ne conviennent pas car ils présentent un rapport de branchement deux fois inférieur à celui des sites 4 et 6 par exemple, ils sont aussi deux fois moins nombreux. Enfin, les ions du site 2 sont encore moins favorables car ils sont peu nombreux et leur rapport de branchement est inférieur à 0,05. On peut éliminer ce site définitivement, en excitant le cristal de $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ avec un faisceau laser se propageant le long de la direction $[1\bar{1}0]$, c'est-à-dire parallèlement au dipôle de transition du site 2. Dans ce cas, le champ électrique étant orthogonal à la direction de propagation, la pulsation de Rabi décrivant l'interaction entre le champ exciteur et les ions du site 2 est nulle quelle que soit la direction de polarisation du champ exciteur.

Remarquons que même pour les sites les plus favorables, la transition interdite devient, au mieux, faiblement permise. Dans toute la suite de ce manuscrit, on appellera transitions fortes les transitions $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ et $|2\rangle \rightarrow |4\rangle$ et "transitions faibles" les transitions croisées $|1\rangle \rightarrow |4\rangle$ et $|2\rangle \rightarrow |3\rangle$. Ces transitions sont représentées dans la figure 2.10. Leurs moments

dipolaires seront notés μ_s pour les transitions fortes et μ_w pour les transitions faibles.

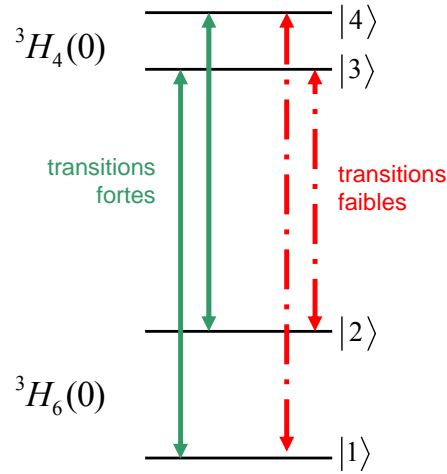


FIG. 2.10 – Transitions fortes et faibles dans le système à 4 niveaux du Tm^{3+} en champ magnétique.

2.3 Expérience

2.3.1 Démarche expérimentale

On cherche dans un premier temps à déterminer expérimentalement les composantes du tenseur gyromagnétique dans les deux états électroniques. Ces composantes sont reliées par l'équation (2.20) aux écarts énergétiques induits par le champ magnétique. Ces écarts énergétiques étant beaucoup plus faibles que l'élargissement inhomogène de la transition optique, on ne peut pas résoudre la structure hyperfine dans une expérience de spectroscopie par absorption classique. Il faut se tourner vers des techniques spécifiques, comme par exemple la spectroscopie par *hole-burning spectral*. La spectroscopie de hole-burning consiste à modifier d'abord les populations dans les états atomiques, et à étudier ensuite la transmission d'un faisceau sonde balayé en fréquence. On visualise ainsi le profil d'absorption modifié. La position des différents maxima et minima de transmission donne directement la valeur des écarts énergétiques dans l'état fondamental et dans l'état excité. Nous utiliserons la spectroscopie de hole-burning pour mesurer les écarts énergétiques pour différentes orientations du champ appliqué dans le plan orthogonal à $[1\bar{1}0]$ (voir la figure 2.7), de façon à pouvoir en déduire les composantes du tenseur gyromagnétique. A partir de ces composantes, nous déterminerons l'orientation du champ magnétique qui donne un système en Λ optimal.

Nous allons ensuite mesurer le rapport de branchement du système en Λ lorsque le

champ magnétique est appliqué dans la direction optimale déterminée auparavant. On isole pour cela l'une des transitions par pompage optique à l'aide d'une série d'impulsions balayées en fréquence, et on réalise une expérience simple sur le système à deux niveaux que constitue la transition isolée.

Une première idée consiste à étudier l'absorption du matériau sur chaque transition optique du Λ . Pour cela on observe l'intensité transmise à travers le cristal d'une impulsion monochromatique de forme rectangulaire. Au début de l'impulsion, les ions absorbent une partie du faisceau incident, donc l'intensité transmise est réduite. L'excitation sature ensuite progressivement la transition, jusqu'à ce que les populations soient égales dans le niveau fondamental et le niveau excité. Le cristal est alors parfaitement transparent, et l'intensité transmise est égale à l'intensité incidente. En comparant l'intensité transmise au début et à la fin de l'impulsion, on déduit l'absorption du matériau selon la transition optique considérée.

On peut aussi comparer les réponses radiatives à une excitation optique sur les deux branches du Λ . Nous réaliserons en particulier des expériences de nutation optique et d'écho de photon. Dans l'expérience de nutation optique, comme précédemment, on observe l'intensité transmise à travers le cristal d'une impulsion rectangulaire, mais sur une échelle de temps plus courte. Les cohérences optiques créées par l'impulsion émettent un champ électromagnétique, qui s'ajoute au champ incident et modifie la forme temporelle de l'impulsion transmise. On peut déduire la pulsation de Rabi de l'interaction à partir de la modification de la forme temporelle de l'impulsion, pour les deux transitions du Λ . Dans l'expérience d'écho de photon, on s'intéresse au champ rayonné par les cohérences optiques, séparé temporellement des impulsions excitatrices. Son intensité est fonction du moment dipolaire de la transition considérée et de la pulsation de la Rabi des impulsions excitatrices. La comparaison des signaux d'écho de photon sur les deux transitions du Λ donne accès au rapport de branchement.

Tous les processus décrits ci-dessus se produisent sur des échelles de temps variées dans le Tm :YAG :

- Les expériences de hole-burning se déroulent sur une durée inférieure à la redistribution des populations dans les sous-niveaux hyperfins dans l'état fondamental (quelques secondes).
- La mesure de l'absorption se déroule sur l'échelle de temps de la relaxation des niveaux excités (quelques centaines de μs pour 3H_4 , et quelques ms pour 3F_4).
- Enfin, les expériences mettant en jeu la réponse radiative des ions (échos de photons et nutation optique) se déroulent sur une échelle de temps inférieure à la durée de vie des cohérences (une centaine de μs).

2.3.2 Montage

Les processus que nous allons utiliser pour mesurer le rapport de branchement sont résolus dans le temps, et non dans l'espace. C'est pourquoi on peut les observer à l'aide d'un montage optique ne comportant qu'un seul faisceau.

Les expériences sont réalisées sur un échantillon de $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ de faible concentration (0,1%), d'épaisseur 5 mm, placé dans un cryostat à hélium liquide et refroidi entre 1,5 K et 5 K. Il est taillé dans la direction orthogonale à l'axe $[1\bar{1}0]$ qui coïncide avec la direction de propagation du faisceau incident. L'échantillon est placé dans un champ magnétique statique pour que la dégénérescence sur les niveaux hyperfins soit levée. Au cours de cette thèse, nous avons d'abord travaillé avec un cryostat à hélium liquide dépourvu de bobines. Le champ magnétique était alors produit par deux aimants permanents en samarium-cobalt placés de part et d'autre du cristal, comme représenté sur la figure 2.11. Un assortiment d'aimants et de porte-échantillons a été utilisé pour explorer différentes orientations et amplitudes du champ magnétique, allant jusqu'à 0,45 T. Plus tard, nous avons pu travailler avec un cryostat Spectromag SM4 (Oxford Instruments) dans lequel des bobines supraconductrices immergées dans l'hélium liquide peuvent produire un champ magnétique jusqu'à 6 teslas.

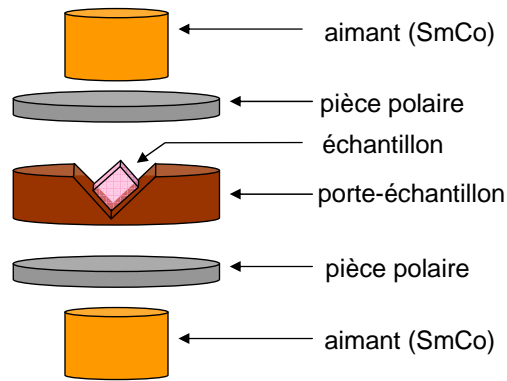


FIG. 2.11 – Vue éclatée du porte-échantillon utilisé dans le cryostat dépourvu de bobines. Le champ magnétique produit par les aimants permanents est dirigé selon l'axe vertical (dans le repère du laboratoire). L'ensemble est maintenu par des vis au bas de la canne porte-échantillon.

On utilise une diode laser à 793 nm en cavité étendue, fermée par un réseau en configuration de Littrow. Cette source est asservie sur une cavité Fabry-Pérot de 10 cm de haute finesse (environ 3000) par la méthode de Pound-Drever-Hall [90]. La boucle de rétroaction agit sur un cristal électro-optique intra-cavité. Le laser asservi offre une stabilité relative de 250 Hz sur une durée de l'ordre de 10 ms. Cet asservissement a été

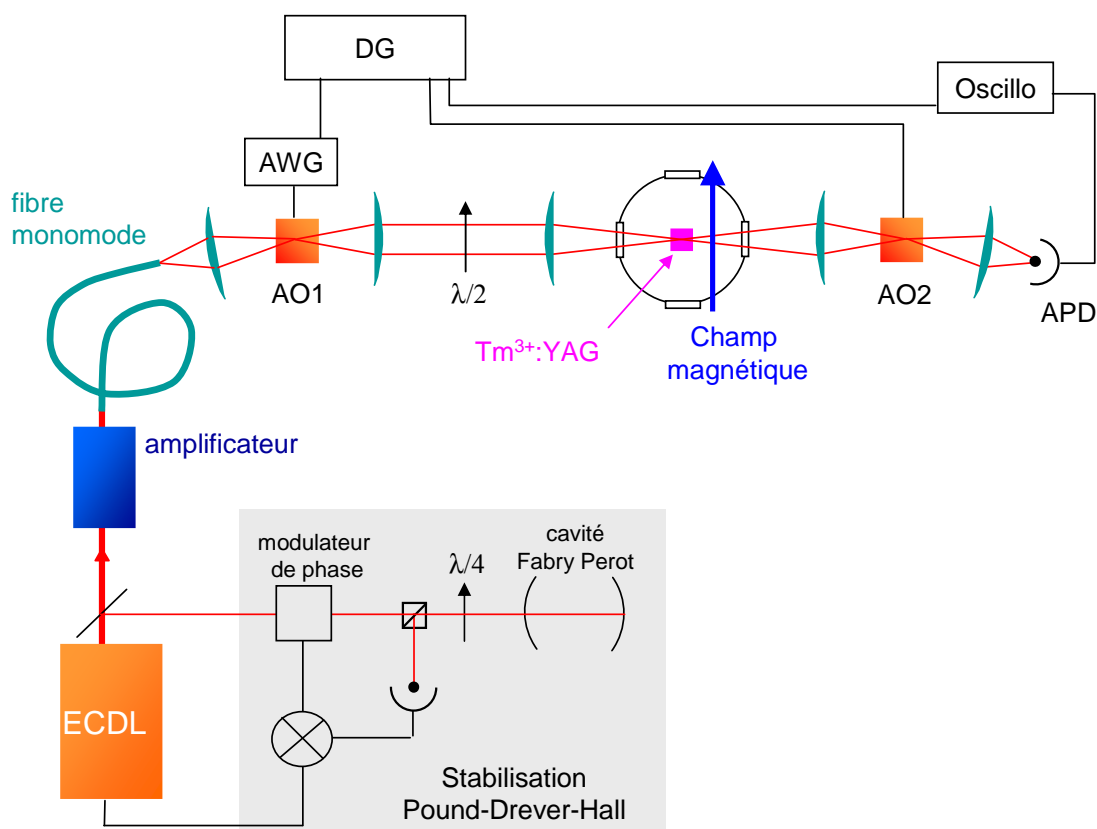


FIG. 2.12 – Montage expérimental pour la mesure des composantes du tenseur gyromagnétique (ECDL : diode laser en cavité étendue ; AWG : Générateur de formes arbitraires ; DG : générateur d’impulsions ; AO : modulateur acousto-optique ; APD : photodiode à avalanche).

réalisé par Vincent Crozatier [73]. Non asservi, le laser a une largeur de raie de quelques MHz sur plusieurs ms.

Le faisceau est amplifié à l’aide d’un amplificateur à semi-conducteur BoosTA (Top-tica). Il est ensuite filtré spatialement dans une fibre optique monomode, puis est focalisé dans un premier modulateur acousto-optique (AO1 sur la figure 2.12) qui met en forme les impulsions lumineuses en amplitude et en phase. Un générateur de formes arbitraires (Sony Tektronix AWG 520) déclenché par un générateur d’impulsions (Stanford Research DG535) produit point par point l’onde radio-fréquence utilisée pour commander le modulateur acousto-optique AO1 à travers un amplificateur rf. Ce dispositif permet de mettre en forme des impulsions avec une précision de 1 Gigaéchantillon/s. La puissance de l’onde rf est ajustée de façon que l’AO1 fonctionne en régime linéaire, c’est-à-dire que le champ électrique diffracté est proportionnel à la tension appliquée.

Une lame demi-onde placée à l’entrée du cryostat permet de tourner la polarisation

du faisceau. L'angle de déviation du faisceau induit par le modulateur acousto-optique dépend de la fréquence acoustique. Pour que la position du faisceau dans le cristal soit indépendante de cette fréquence, le faisceau est focalisé dans l'échantillon, en configuration d'imagerie avec l'AO1. Le diamètre du faisceau à $1/e^2$ sur l'échantillon est de $800 \mu\text{m}$ ou de $100 \mu\text{m}$ selon les expériences décrites dans ce chapitre. Le faisceau transmis est ensuite focalisé dans un second modulateur acousto-optique (AO2). On le détecte sur une photodiode à avalanche (Hamamatsu C5460), dont la tension de sortie est visualisée sur un oscilloscope Tektronix TDS 3032B. L'AO2 est également commandé par le générateur d'impulsions, afin que son ouverture soit synchronisée avec les signaux peu intenses, et que la photodiode soit protégée des impulsions excitatrices intenses.

2.3.3 Techniques mises en œuvre

Hole-burning spectral

Afin de mesurer les écarts énergétiques Δ_g et Δ_e entre les sous-niveaux hyperfins, nous avons réalisé des expériences de *hole-burning spectral*, ou creusement spectral. Ces expériences sont composées d'une étape de gravure, pendant laquelle les populations atomiques sont modifiées, et d'une étape de lecture, où l'on visualise cette modification des populations.

Considérons donc un échantillon de $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ plongé dans un champ magnétique. La transition à 793 nm présente un élargissement inhomogène (20 GHz) gigantesque devant les splittings hyperfins du fait des défauts cristallins. Les ions pouvant être excités selon 4 transitions possibles, une excitation monochromatique à la fréquence ν_0 peut être absorbée par 4 classes d'ions dans la largeur inhomogène. Ces 4 classes sont schématisées dans la figure 2.13(a). A l'équilibre thermique, les atomes sont également répartis dans les deux sous-niveaux fondamentaux. En effet, l'énergie thermique $k_B T$ est de l'ordre de 30 GHz à $T = 2 \text{ K}$, ce qui est très largement supérieur à l'écart énergétique des sous-niveaux hyperfins. Dans chaque classe, le faisceau de gravure déplace les ions du sous-niveau résonant vers le sous-niveau non résonant de l'état fondamental, par pompage optique. La gravure est effectuée sous forme d'impulsions intenses répétées, séparées de 10 ms pour que les ions stockés dans le niveau relais 3F_4 puissent se désexciter vers les sous-niveaux hyperfins de l'état fondamental. Si le nombre de cycles est suffisant, on arrive à quasiment vider le sous-niveau résonnant. Cette modification des populations est schématisée dans la figure 2.13(b).

On visualise maintenant le profil d'absorption modifié, à l'aide d'une impulsion balayée linéairement en fréquence et suffisamment atténuée pour ne pas induire de mouvement d'atomes. On inventorie l'ensemble des fréquences qui correspondent à une transition atomique, forte ou faible, dans le tableau 2.3. Les structures du spectre observées aux fré-

quences ν_0 , $\nu_0 \pm \Delta_g$ et $\nu_0 \pm \Delta_e$ sont dues à des processus qui font intervenir des transitions faibles et des transitions fortes. En revanche, les structures observées à $\nu_0 \pm (\Delta_g - \Delta_e)$ (respectivement, $\nu_0 \pm (\Delta_g + \Delta_e)$) font uniquement intervenir des transitions fortes (respectivement, faibles), aussi bien à la lecture qu'à la gravure. On suppose que le rapport de branchement est suffisamment faible pour que l'augmentation ou la diminution de l'absorption soit négligeable lorsque le faisceau sonde est résonnant avec une transition faible. Cela revient à supposer que le faisceau sonde ne peut lire que des transitions fortes. En particulier, la structure du spectre attendue à la fréquence $\nu_0 \pm (\Delta_g + \Delta_e)$ ne pourra être observé que lorsque le rapport de branchement atteint son maximum.

Dès que la fréquence du faisceau sonde coïncide avec celle d'une transition forte dans n'importe laquelle des quatre classes d'ions représentées dans la figure 2.13(b), la transmission est modifiée. Un manque d'atomes dans le sous-niveau résonant avec la sonde va donner lieu à un *trou*, c'est-à-dire une diminution de l'absorption, ou une augmentation de la transmission. Inversement, un excès d'atomes dans le sous-niveau résonant avec la sonde va donner lieu à un *anti-trou*, c'est-à-dire une diminution de la transmission.

- (i) Le déséquilibre de population dans les ions de la classe (i) engendre une modification de l'absorption du cristal aux fréquences ν_0 (trou) et $\nu_0 + \Delta_e - \Delta_g$ (antitrou).
- (ii) Dans les ions de la classe (ii), on observe un trou à $\nu_0 - \Delta_e$ et un antitrou à $\nu_0 - \Delta_g$.
- (iii) Dans les ions de la classe (iii), on observe un trou à ν_0 et un antitrou à $\nu_0 + \Delta_g - \Delta_e$.
- (iv) Enfin, dans les ions de la classe (iv), on observe un trou à $\nu_0 + \Delta_e$ et un antitrou à $\nu_0 + \Delta_g$.

L'intensité du faisceau sonde balayé linéairement en fréquence doit donc avoir l'allure donnée en figure 2.14.

La largeur des trous et anti-trous est intrinsèquement limitée par la largeur homogène de la transition optique (à 1,5 K, dans le Tm :YAG, elle est d'environ 3 kHz), mais ils peuvent être élargis par différents phénomènes, intervenant pendant l'étape de gravure, ou pendant l'étape de lecture, voire pendant les deux étapes de la séquence de hole-burning.

- Lors de l'étape de gravure, les ions sont portés dans le niveau excité sur une largeur spectrale égale à la largeur spectrale du laser. Cependant, les trous gravés ne seront pas élargis si l'on dispose d'une source dont la largeur est déjà inférieure à la largeur homogène des transitions optiques (voir la discussion menée dans la partie 1.5).
- A basse température, la durée de vie des populations dans les sous-niveaux hyperfins peut devenir suffisamment longue pour que les phases de gravure s'accumulent sur plusieurs dizaines de cycles. Dans ce cas, les impulsions viennent creuser un trou dans l'absorption d'un matériau déjà vide d'atomes à résonance, à cause des gravures qui ont précédé. Ce sont alors les ailes du spectre des impulsions qui sont absorbées. On appelle cet effet l'élargissement par *saturation du pompage optique*.

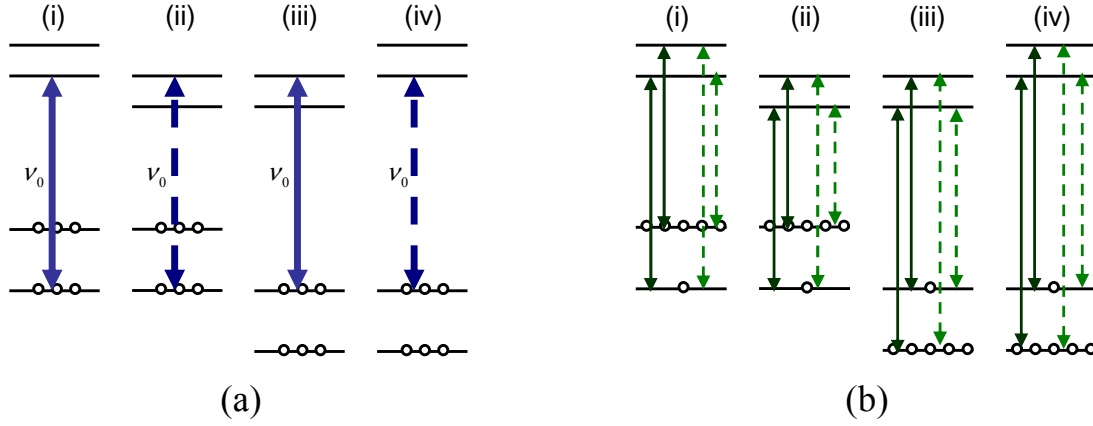


FIG. 2.13 – Principe du hole-burning spectral. (a) Etape de gravure : quatre classes d'ions peuvent être excités par un faisceau monochromatique à ν_0 , correspondant à une absorption selon 4 transitions possibles. A l'équilibre thermique, les populations sont égales dans les deux sous-niveaux de l'état fondamental. L'étape de gravure déplace les ions vers le sous-niveaux non-résonnant de l'état fondamental. (b) Etape de lecture : un faisceau peu intense et balayé en fréquence sonde les populations déséquilibrées par l'étape de gravure. Les transitions fortes et faibles sont représentées respectivement par des flèches continues et pointillées. Les états intermédiaires 3H_5 et 3F_4 ne sont pas représentés.

Fréquence	ν_0	$\nu_0 \pm \Delta_e$	$\nu_0 \pm (\Delta_g - \Delta_e)$	$\nu_0 \pm \Delta_g$	$\nu_0 \pm (\Delta_g + \Delta_e)$
Gravure	S	W	S	W	S
Lecture	S	W	W	S	W

TAB. 2.3 – Inventaire des différentes fréquences intervenant à la gravure et à la lecture dans une expérience de hole-burning spectral. On a grisé les colonnes où la lecture était effectuée sur une transition faible.

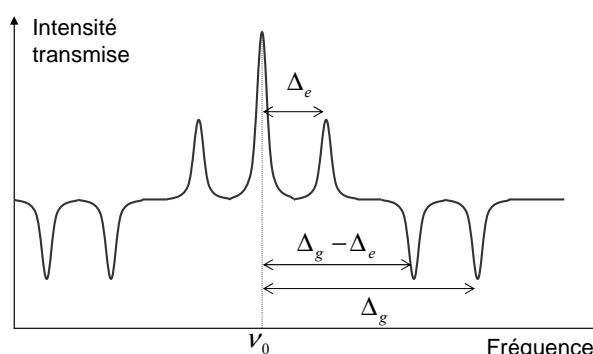


FIG. 2.14 – Exemple de spectre de hole-burning dans un système à 4 niveaux dans le cas où $\Delta_g > \Delta_e$

Les systèmes (i) et (iii) (cf figure 2.13), gravés selon une transition forte, sont plus sensibles à ce type d'élargissement que les systèmes (ii) et (iv), gravés selon une transition faible. On peut éliminer cet effet, soit en augmentant la température pour diminuer la durée de vie des populations dans les sous-niveaux hyperfins, soit en redistribuant les atomes dans les deux sous-niveaux fondamentaux à l'aide d'une impulsion intense balayée en fréquence, intercalée entre deux séquences gravure-lecture. Ainsi les phases de gravure ne pourront s'accumuler d'une séquence de à l'autre.

- Si les splittings Zeeman Δ_g et Δ_e sont affectés d'un élargissement inhomogène supérieur à la largeur spectrale des atomes excités, alors les trous et antitrous latéraux auront une largeur supérieure à celle du trou central.
- La largeur de n'importe quelle structure sondée par un faisceau balayé en fréquence est supérieure à \sqrt{r} où $r = d\nu/dt$. r est appelé le taux de chirp. Il est donc préférable de balayer la fréquence du faisceau de lecture le plus lentement possible.

Remarquons que comme le Tm :YAG ne comporte que 4 niveaux en tout, les spectres de hole-burning sont assez simples, pour peu que les splittings Δ_g et Δ_e soient assez différents. Il en va différemment dans un matériau tel que le $\text{Pr}^{3+}:\text{YSO}$. La structure des ions Pr contenant 6 niveaux (3 sous-niveaux dans l'état fondamental, et 3 sous-niveaux dans l'état excité), il en résulte une structure complexe de 7 trous et 42 anti-trous, que l'on peut voir par exemple dans la référence [81].

La séquence d'impulsions utilisée pour observer un spectre de hole-burning est représentée sur la figure 2.15. Elle est programmée dans le générateur de formes arbitraires. La séquence de gravure comprend 10 impulsions monochromatiques de $50 \mu\text{s}$ séparées de 10 ms. Après un temps d'attente de 10 ms supplémentaires, on sonde la transmission du cristal à l'aide d'une impulsion de lecture balayée linéairement en fréquence atténuée d'un facteur 100 par rapport aux impulsions de gravure. La séquence comprend également une

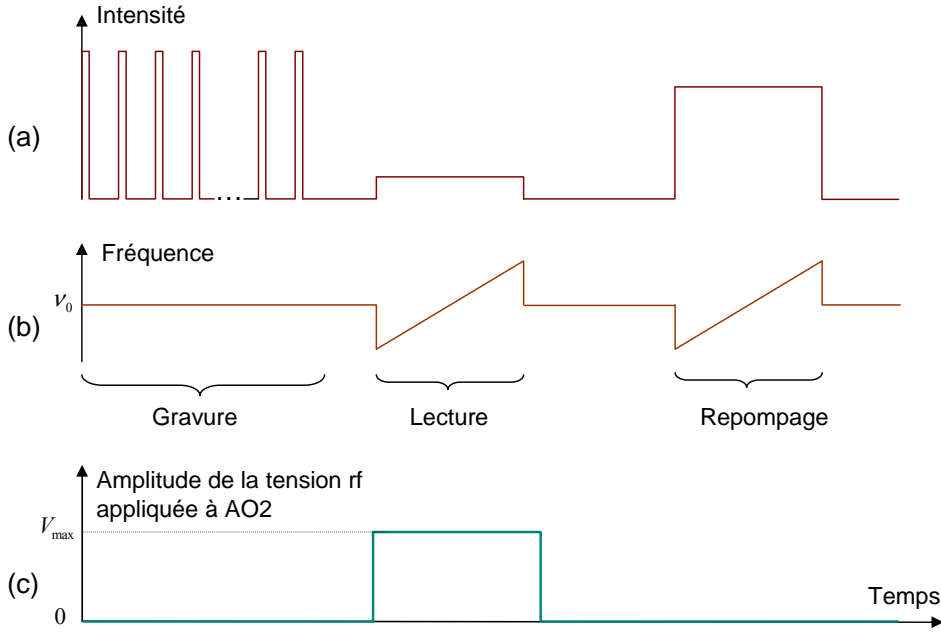


FIG. 2.15 – Séquence de hole-burning utilisée dans les expériences, comprenant les trois étapes de gravure, lecture et repompage. Amplitude (a) et fréquence (b) de la tension rf appliqué à l'AO1; (c) Amplitude de la tension rf appliqué à l'AO2.

impulsion de repompage balayée en fréquence qui permet de limiter les effets de la saturation du pompage optique. Le modulateur acousto-optique AO2 (voir figure 2.12) est ouvert au moment de l'impulsion de lecture, peu intense. Il est fermé partout ailleurs afin de couper le mieux possible les impulsions intenses lors de la gravure et du repompage.

Mesure de l'absorption

Pour mesurer l'absorption d'un matériau selon une transition optique donnée, il faut comparer l'intensité transmise par ce matériau à l'intensité incidente. Le phénomène de saturation permet de mesurer simultanément ces deux quantités.

On considère un ensemble d'atomes présentant un système à deux niveaux $|a\rangle$ et $|b\rangle$. Initialement, tous les atomes sont dans l'état de plus basse énergie $|a\rangle$. Cet ensemble est excité à $t = 0$ par une impulsion monochromatique de forme rectangulaire, d'intensité \mathcal{I}_0 et résonnante avec la transition $|a\rangle \rightarrow |b\rangle$. On observe l'intensité transmise $\mathcal{I}(t)$ à travers le cristal de cette impulsion. Au début de l'impulsion, les ions absorbent une partie du faisceau incident, donc l'intensité transmise est réduite.

$$\mathcal{I}(t = 0) = \mathcal{I}_0 e^{-\alpha L} \quad (2.48)$$

où α est le coefficient d'absorption du cristal, proportionnel à la différence de population entre les deux niveaux. L'excitation porte les atomes vers le niveau excité $|b\rangle$, jusqu'à ce

que les populations soient égales dans les deux niveaux. Le cristal est alors parfaitement transparent, c'est-à-dire que $\alpha = 0$. L'intensité transmise est égale à l'intensité incidente \mathcal{I}_0 . En comparant l'intensité transmise au début de l'impulsion et longtemps après, on déduit l'opacité αL du matériau selon la transition optique considérée.

$$\alpha L = \ln \frac{\mathcal{I}(t \rightarrow \infty)}{\mathcal{I}(t = 0)} \quad (2.49)$$

La densité optique D est reliée à l'opacité αL par :

$$e^{-\alpha L} = 10^{-D} \quad (2.50)$$

La mesure de l'intensité transmise à $t = 0$ et à $t \rightarrow \infty$ donne donc accès à la densité optique du matériau.

$$D = \log_{10} \frac{\mathcal{I}(t \rightarrow \infty)}{\mathcal{I}(t = 0)} \quad (2.51)$$

On a traité ici la saturation comme un processus incohérent, en raisonnant en termes de population des niveaux. Cette approche ne vaut en toute rigueur que sur des échelles de temps longues par rapport à la durée de vie des cohérences atomiques. Or, dans le Tm :YAG, on peut saturer la transition en un temps beaucoup plus court que la durée de vie de la cohérence qui atteint une centaine de μs [37]. Sur un temps aussi court, apparaît le phénomène cohérent de nutation optique qui permet une mesure directe de la fréquence de Rabi.

Mesure directe de la fréquence de Rabi par nutation optique

Lorsqu'un système à deux niveaux est illuminé par un champ monochromatique, il est placé dans un état de superposition entre son état fondamental $|a\rangle$ et son état excité $|b\rangle$ et il effectue des allers-retours entre les états $|a\rangle$ et $|b\rangle$, appelés *oscillations de Rabi*. En effet, lorsque l'amplitude du champ exciteur est constante, l'état de l'atome à tout instant t peut être mis sous la forme [7] :

$$|\psi(t)\rangle = a(t)e^{-i\omega_a t} |a\rangle + b(t)e^{-i\omega_b t} |b\rangle \quad (2.52)$$

où :

$$a(t) = e^{-i\Delta t/2} \left[\left(\cos \frac{\chi t}{2} + i \frac{\Delta}{\chi} \sin \frac{\chi t}{2} \right) a(0) + i \frac{\Omega}{\chi} \sin \frac{\chi t}{2} b(0) \right] \quad (2.53)$$

$$b(t) = e^{i\Delta t/2} \left[i \frac{\Omega}{\chi} \sin \frac{\chi t}{2} a(0) + \left(\cos \frac{\chi t}{2} - i \frac{\Delta}{\chi} \sin \frac{\chi t}{2} \right) b(0) \right] \quad (2.54)$$

On note $\chi = \sqrt{\Omega^2 + \Delta^2}$, Δ désigne le désaccord (en rad.s^{-1}) entre la pulsation du champ exciteur ω_L et la pulsation de la transition atomique, et Ω est la pulsation de Rabi de

l'excitation. Si l'atome est initialement dans l'état propre $|a\rangle$, la différence de population entre le niveau excité et le niveau fondamental s'écrit :

$$w(t, \Omega, \Delta) = |b(t)|^2 - |a(t)|^2 = -\frac{\Delta^2 + \Omega^2 \cos \chi t}{\chi^2} \quad (2.55)$$

Elle varie sinusoidalement avec la pulsation de Rabi généralisée $\chi = \sqrt{\Omega^2 + \Delta^2}$. De plus, la cohérence optique créée dans le milieu s'écrit :

$$\rho_{ab}(t, \Omega, \Delta) = a^*(t)b(t)e^{i(\omega_a - \omega_b)t} = -i\frac{\Omega}{\chi} \sin \frac{\chi t}{2} \left(\cos \frac{\chi t}{2} - i\frac{\Delta}{\chi} \sin \frac{\chi t}{2} \right) e^{-i\omega_L t} \quad (2.56)$$

La cohérence optique ρ_{ab} créée par le champ exciteur donne lieu à l'émission d'un rayonnement à la pulsation ω_L qui vient s'ajouter au champ exciteur. Si le milieu est optiquement mince ($\alpha L \ll 1$), le champ électrique total après traversée du milieu atomique par le faisceau peut s'écrire comme la somme du champ incident et des champs électriques émis par chacun des atomes sur l'ensemble du profil inhomogène, et sur le profil spatial transverse du faisceau.

Supposons qu'à $t = 0$, on envoie une impulsion monochromatique en forme d'échelon et de profil spatial gaussien sur un grand nombre d'atomes dont les fréquences de transition sont réparties sur une largeur inhomogène supposée infinie. On suppose que tous les atomes sont initialement dans leur état fondamental. L'intensité transmise après le début de l'impulsion est de la forme [87] :

$$\mathcal{I}(t) = \mathcal{I}_0 \left(1 - 2\alpha L \frac{J_1(\Omega t)}{\Omega t} \right) \quad (2.57)$$

où \mathcal{I}_0 est l'intensité du faisceau incident. $J_1(x)$ est la fonction de Bessel de première espèce d'ordre 1. La somme des rayonnements émis par tous les atomes vient moduler le champ exciteur, pour donner un signal oscillant très amorti, dit de *nutaton optique*. On a représenté en figure 2.16 un signal de nutation correspondant à une fréquence de Rabi de $\Omega/2\pi = 1$ MHz et une opacité de $\alpha L = 0,7$. Comme on l'avait prévu, à cause de l'élargissement inhomogène optique supposé infini, les oscillations du signal de nutation sont trop amorties pour que l'on puisse espérer en tirer une valeur précise de la période des oscillations. On peut néanmoins mesurer directement la pulsation de Rabi, en repérant l'instant t_0 auquel le premier maximum du signal est observé. Lorsque l'opacité αL de l'échantillon est faible devant 1, la position du premier maximum est indépendante de αL . Cet instant est directement lié à la pulsation de Rabi de l'interaction par l'équation :

$$\Omega t_0 = 5,1 \text{ rad} \quad (2.58)$$

Ainsi, dans l'exemple de la figure 2.16, le premier maximum se trouve à $t_0 = 0,81 \mu\text{s}$ après le début de l'impulsion rectangulaire lorsque la fréquence de Rabi est de 1 MHz.

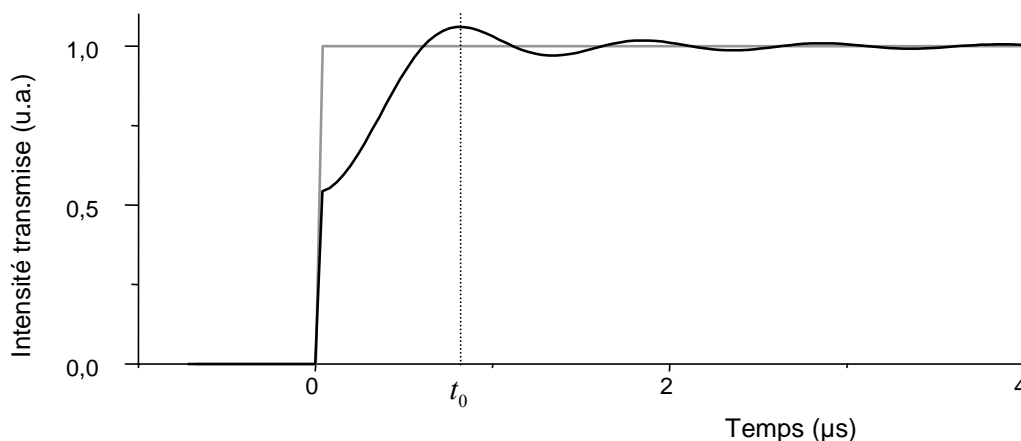


FIG. 2.16 – Signal de nutation optique calculé pour un matériau de densité optique $D = 0,3$, soit $\alpha L = 0,7$ (ligne noire), après passage d’une impulsion rectangulaire (ligne grise) à travers le matériau. La pulsation de Rabi est de $\Omega = 2\pi \times 1$ MHz, donc le premier maximum du signal de nutation est obtenu à $t_0 = 0,81 \mu\text{s}$.

La nutation optique est donc un outil extrêmement utile, puisqu’elle permet de mesurer en une seule opération la pulsation de Rabi de l’interaction laser-atomes pour les atomes résonnants avec le champ excitateur, malgré la présence de tous les autres atomes du profil inhomogène, qui perçoivent une fréquence de Rabi différente.

Comme dans la mise en évidence de la saturation optique décrite précédemment, la nutation optique permet de mesurer l’opacité de l’échantillon, en comparant l’intensité transmise au début de l’impulsion $\mathcal{I}(t = 0) = \mathcal{I}_0 e^{-\alpha L}$ et l’intensité transmise au bout de quelques oscillations, une fois que l’échantillon est transparent $\mathcal{I}(t \gg 2\pi/\Omega) = \mathcal{I}_0$.

Nous allons par la suite décrire des expériences de nutation optique séparément sur la transition forte, et sur la transition faible du système en Λ construit dans le Tm. En particulier, lorsque l’on aura isolé la transition faible, la densité optique, proportionnelle au carré du moment dipolaire μ_w^2 , sera très faible. Le signal de nutation sera donc peu contrasté et la position t_0 du premier maximum sera entachée d’erreur. En réalité, pour mesurer le rapport de branchement, une simple mesure *relative* des pulsations de Rabi (ou des moments dipolaires) suffit. La densité optique peut être évaluée avec une bien meilleure précision par une mesure de l’opacité de l’échantillon. En effet, elle nécessite seulement la mesure de l’intensité transmise à l’instant où l’impulsion est branchée ($t = 0$), et longtemps après ($t \gg 2\pi/\Omega$). La mesure de la densité optique est donc beaucoup moins sensible aux bruits de la détection que la mesure absolue de la pulsation de Rabi. Elle donne accès à la valeur relative des moments dipolaires, et donc au rapport de branchement.

Echo de photon

Le processus d'écho de photon est un phénomène caractéristique des matériaux à élargissement inhomogène possédant une longue durée de vie des cohérences optiques [7]. Après une séquence d'excitation, le milieu fournit une impulsion lumineuse décalée temporellement de l'excitation. Cette réponse cohérente est l'analogie optique de l'écho de spins [91]. L'étude de cette réponse atomique donne accès à la durée de vie des cohérences optiques. Elle est par ailleurs à la base de nouvelles méthodes de traitement optique du signal [43, 92].

Soit un ensemble d'atomes à 2 niveaux $|a\rangle$ et $|b\rangle$ dont les fréquences de transitions sont réparties sur un profil inhomogène. Une première impulsion de durée τ_1 crée une cohérence ρ_{ab} dans l'ensemble des atomes dont la fréquence de transition se trouve dans le profil de l'impulsion. On laisse ensuite le système évoluer librement pendant une durée T . Les cohérences ρ_{ab} acquièrent alors une phase ΔT , où Δ représente le désaccord entre la pulsation de la transition atomique et la pulsation optique de l'impulsion. Cette phase dépend donc de la position de l'atome considéré dans le profil inhomogène. La somme des réponses radiatives de l'ensemble des atomes à la première impulsion décroît en un temps voisin de la durée τ_1 de l'impulsion, et est appelée rayonnement précession libre, ou *free induction decay*. Après un temps d'évolution libre T long devant la durée τ_1 de la première impulsion, mais court devant la durée de vie des cohérences optiques T_2 , les cohérences optiques sont toujours présentes, mais complètement déphasées les unes par rapport aux autres, donc le rayonnement de précession libre est éteint. On applique alors une seconde impulsion, de durée τ_2 . On suppose que cette seconde impulsion se propage dans la même direction que la première. La deuxième impulsion convertit la cohérence ρ_{ab} en cohérence ρ_{ba} . Ces deux quantités sont complexes conjuguées l'une de l'autre, donc quand l'une acquiert la phase ϕ , l'autre acquiert la phase $-\phi$. Ainsi, la phase ΔT acquise par ρ_{ab} pendant la première période d'évolution libre est compensée par la phase $-\Delta T$ acquise par ρ_{ba} après une seconde période T d'évolution libre après la deuxième impulsion. Au bout d'une durée T après la seconde impulsion, les cohérences sont de nouveau en phase quel que soit le désaccord Δ . Cette remise en phase s'accompagne de l'émission d'une impulsion lumineuse, appelée écho de photon. Cet écho est émis dans la même direction et à la même fréquence que les deux impulsions excitatrices.

La séquence d'impulsions utilisée pour observer un écho de photon à deux impulsions est donnée dans la figure 2.17. Le modulateur acousto-optique AO2 sera ouvert peu après la seconde impulsion, afin que la photodiode à avalanche puisse détecter l'écho, beaucoup moins intense que les impulsions excitatrices.

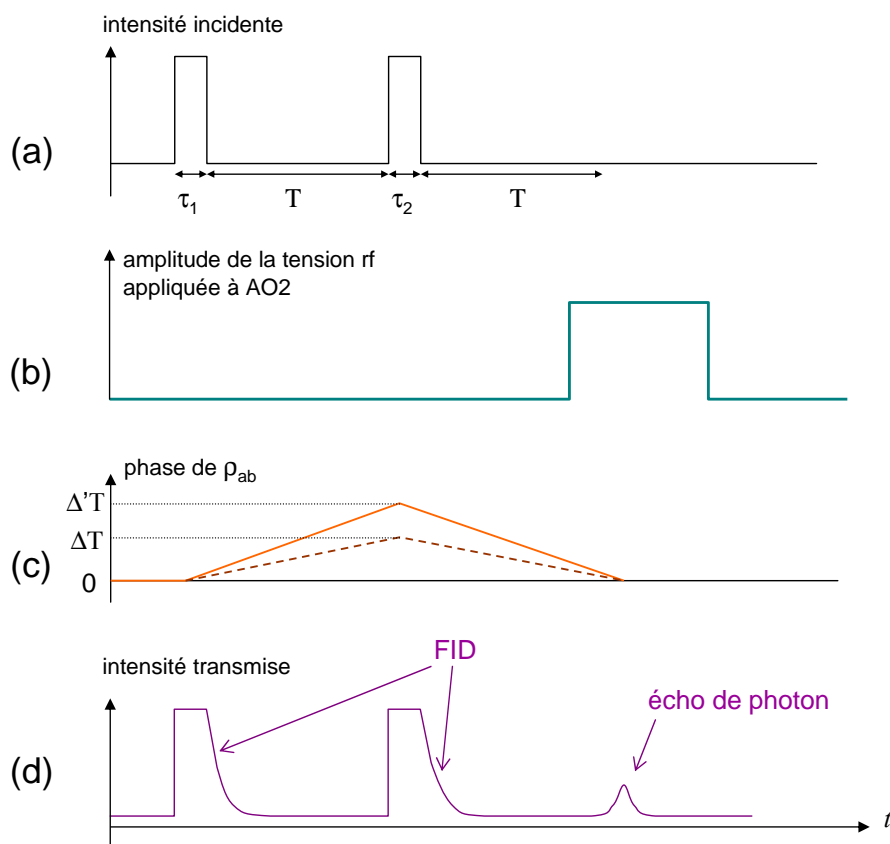


FIG. 2.17 – Séquence d'écho de photon utilisée dans les expériences, comprenant les deux impulsions excitatrices ; (a) Intensité du faisceau incident sur le cristal ; (b) Amplitude de la tension rf appliqué à l'AO2 ; (c) Evolution de la phase de la cohérence ρ_{ab} pour deux atomes excités avec des désaccords respectifs Δ et Δ' ; (d) Intensité du faisceau transmis

2.4 Résultats expérimentaux

2.4.1 Mesure du tenseur gyromagnétique

Les résultats présentés dans ce paragraphe sont dûs à Frédéric de Seze et sont décrits plus en détail dans les références [89, 93]. On cherche à mesurer les splittings des sous-niveaux hyperfins pour différents sites et pour différentes orientations du champ magnétique appliqué. Pour cela on réalise des expériences de hole-burning spectral, dont le principe est décrit en partie 2.3.3. On utilise la séquence d'impulsions décrite dans la figure 2.15, sans l'étape de repompage. La gravure est effectuée par 10 impulsions monochromatiques de $50 \mu\text{s}$ séparées par des intervalles de 10 ms. Elle est suivie d'un temps d'attente de 10 ms, puis d'une impulsion de lecture de $750 \mu\text{s}$ atténuée et balayée linéairement en fréquence sur 20 MHz. Le repompage n'est pas nécessaire car on travaille à température suffisamment élevée pour éviter l'élargissement des trous et anti-trous par

saturation du pompage optique. Le taux de répétition de la séquence gravure-lecture est de 6 s^{-1} . Le champ magnétique est produit par des aimants permanents.

Dans tout ce qui suit, on note les splittings par unité de champ magnétique $\delta_g = \Delta_g/B_0$ et $\delta_e = \Delta_e/B_0$, où B_0 est l'amplitude du champ magnétique. La figure 2.18 illustre chacune des configurations explorées.

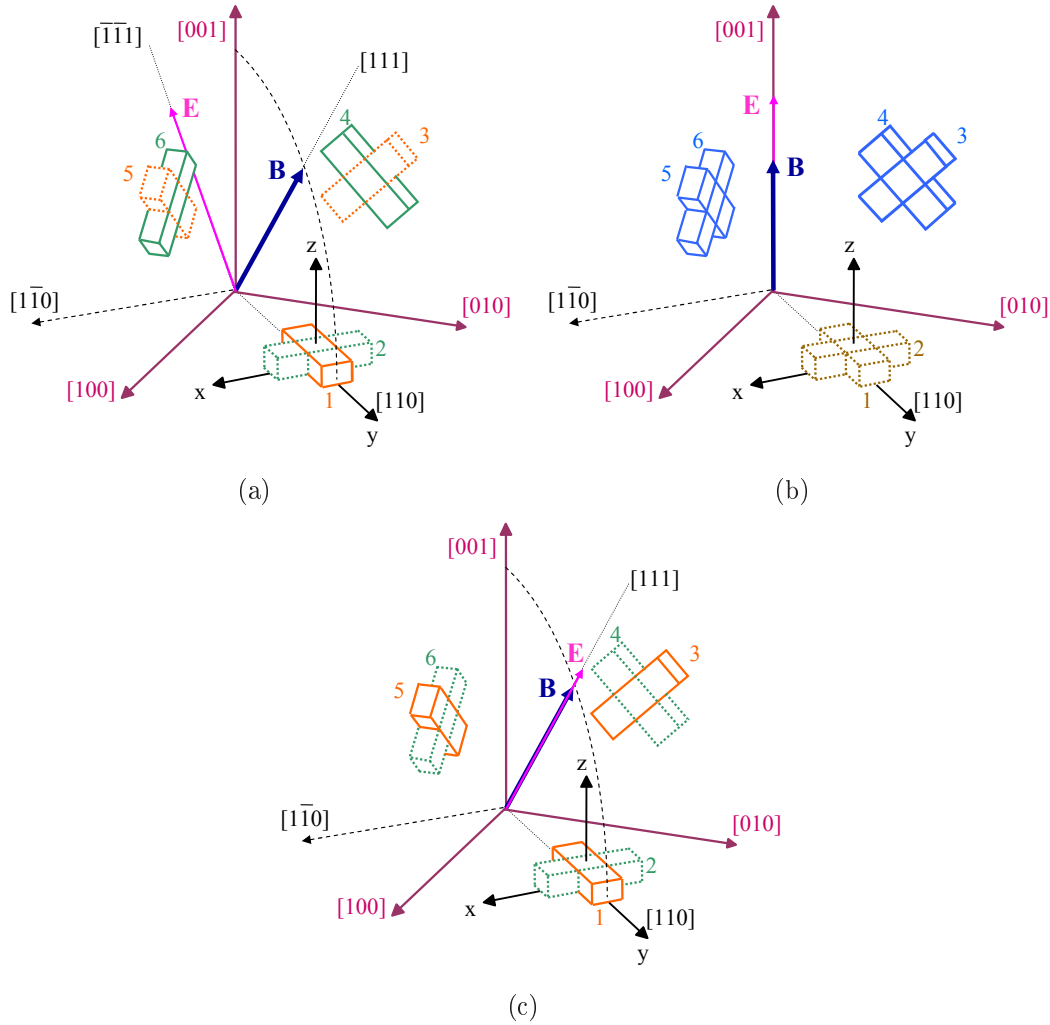


FIG. 2.18 – Différentes configurations de champ magnétique et électrique explorées. Les sites de même couleur sont magnétiquement équivalents. Les sites qui ne sont pas excités sont représentés en pointillé.

- (a) Le champ magnétique est orienté dans la direction $[111]$, c'est-à-dire que les sites 1, 3, et 5 d'une part, et 2, 4, et 6 d'autre part sont magnétiquement équivalents. Le champ électrique du laser est polarisé dans la direction $[\bar{1}\bar{1}\bar{1}]$, afin que les ions des sites 3 et 5 ne soient pas excités. La composante selon y du champ magnétique est nulle dans

les sites 4 et 6, donc les écarts énergétiques dans les sites 4 et 6 sont donnés par :

$$\delta^{(a)} = \frac{1}{\sqrt{3}} \sqrt{2\gamma_x^2 + \gamma_z^2} \quad (2.59)$$

On s'attend à des splittings bien plus grands dans le site 1, parce que la composante B_y du champ magnétique n'est pas nulle pour ce site, et parce que le tenseur gyromagnétique est fortement anisotrope (cf propriété (i) dans la partie 2.2.3). Les trous et anti-trous relatifs au site 1 seront nettement séparés des structures dues aux sites 4 et 6. Pour ces orientations du champ magnétique et de la polarisation du champ électrique, on a mesuré pour les sites 4 et 6 :

$$\delta_g^{(a)} = 15,3 \pm 0,1 \text{ MHz/T} \quad \text{et} \quad \delta_e^{(a)} = 14,4 \pm 0,1 \text{ MHz/T} \quad (2.60)$$

- (b) Le champ magnétique et la polarisation sont tous deux orientés selon [001]. Ici, les ions sont regroupés en 2 classes de sites équivalents : 1 et 2 d'une part, et 3, 4, 5, et 6 d'autre part. En polarisant le champ électrique dans la direction [001], on élimine la contribution à l'absorption des ions des sites 1 et 2. Ainsi, les structures du spectre de hole-burning ne peuvent être attribuées qu'à un ensemble de sites magnétiquement équivalents. On donne à titre d'exemple l'intensité transmise de l'impulsion de lecture dans la figure 2.19. Dans les sites 3, 4, 5, et 6, l'écart énergétique par unité de champ magnétique est donné par :

$$\delta^{(b)} = \frac{1}{\sqrt{2}} \sqrt{\gamma_x^2 + \gamma_y^2} \quad (2.61)$$

Sur les spectres de hole-burning, les positions des trous et antitrous ont donné :

$$\delta_g^{(b)} = 285 \pm 2 \text{ MHz/T} \quad \text{et} \quad \delta_e^{(b)} = 60 \pm 2 \text{ MHz/T} \quad (2.62)$$

- (c) Comme dans le cas (a), le champ magnétique est dirigé selon [111], donc les sites se regroupent en deux classes d'équivalence magnétique : 1, 3, et 5 d'une part, et 2, 4, et 6 d'autre part. La direction de polarisation choisie selon [111] cette fois annule les contributions des sites 2, 4, et 6. Dans les sites 1, 3, et 5 :

$$\delta^{(c)} = \frac{1}{\sqrt{3}} \sqrt{2\gamma_y^2 + \gamma_z^2} \quad (2.63)$$

Et les expériences ont permis de mesurer :

$$\delta_g^{(c)} = 329 \pm 2 \text{ MHz/T} \quad \text{et} \quad \delta_e^{(c)} = 67 \pm 2 \text{ MHz/T} \quad (2.64)$$

A partir de ces résultats, on peut trouver une combinaison de tous les splittings mesurés permettant de remonter aux coefficients γ_x , γ_y et γ_z dans les deux états électroniques. Par exemple, γ_y s'obtient facilement :

$$\gamma_y^2 = -\frac{3}{4}\delta^{(a)2} + \delta^{(b)2} + \frac{3}{4}\delta^{(c)2} \quad (2.65)$$

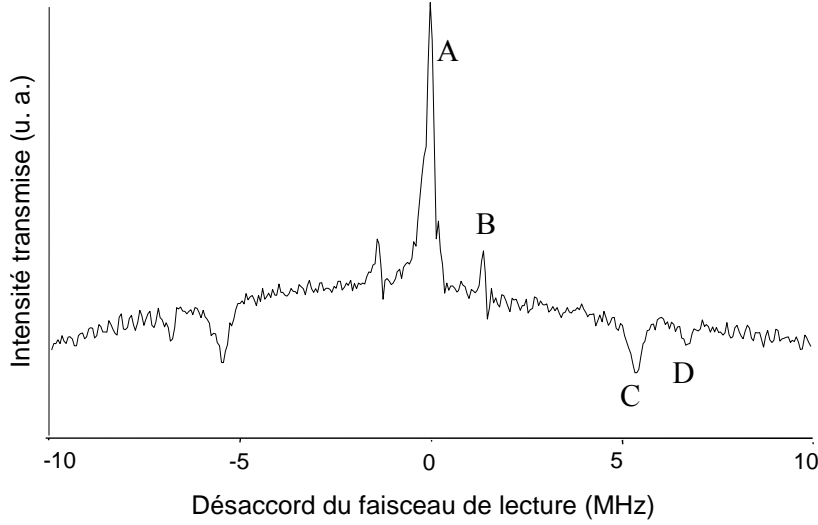


FIG. 2.19 – Spectre de hole burning pour les sites 3, 4, 5 et 6, pour un champ magnétique de 0,024 T orienté parallèlement à [001] [situation (b)]. Le trou central correspond à la fréquence de gravure. Le trou en position B est attribué à la transition vers l’autre sous-niveau excité et doit se situer à la distance Δ_e du trou central. Les anti-trous en position C et D sont attendus à des distances $\Delta_g - \Delta_e$ et Δ_g respectivement du trou central.

D’après les résultats des mesures donnés dans les équations (2.60), (2.62), (2.64), on obtient :

$$\gamma_y^{(g)} = 403 \pm 3 \text{ MHz/T} \quad \text{et} \quad \gamma_y^{(g)} = 82 \pm 3 \text{ MHz/T} \quad (2.66)$$

On peut aussi donner une valeur relativement précise de la quantité $\sqrt{2\gamma_x^2 + \gamma_z^2}$ à partir des mesures effectuées. En revanche, les coefficients γ_x et γ_z n’ont pas pu être déterminés avec précision dans l’état fondamental. Les résultats sont rassemblés dans le tableau 2.4.

Les valeurs expérimentales des composantes du tenseur gyromagnétique sont relativement proches des valeurs calculées [88]. Trois des quatre remarques qualitatives sur les propriétés d’anisotropie du tenseur données dans la partie 2.2.3 sont confirmées. La propriété (ii), dans laquelle nous avons observé que l’anisotropie dans le plan (x, z) était similaire dans l’état fondamental et dans l’état excité, ne peut être confirmée car nous n’avons pas pu mesurer séparément γ_x et γ_z dans l’état fondamental où le tenseur γ est très fortement anisotrope.

A l’université du Montana, Mingzhen Tian a réalisé une série de spectres de hole-burning dans le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ en explorant plusieurs dizaines de valeurs de l’angle θ [94], grâce à un porte-échantillon tournant. Le champ lumineux est polarisé dans la direction [111], de façon à ne pas exciter les ions des sites 4 et 6. Les sites 1, 3, et 5 sont excités avec la même fréquence de Rabi. La position des trous situés à la distance Δ_e du trou central n’a été obtenue que pour les ions du site 1. Les positions des trous et antitrous

		Etat fondamental 3H_6	Etat excité 3H_4
Expérience	γ_y	403 ± 3 MHz/T	82 ± 3 MHz/T
	γ_x/γ_y	$< 0,05$	$0,21 \pm 0,01$
	γ_z/γ_y	$\leq 0,066$	$0,042 \pm 0,01$
	$\sqrt{2\gamma_x^2 + \gamma_z^2}/\gamma_y$	$0,066 \pm 0,001$	$0,30 \pm 0,01$
Théorie	γ_y	560 MHz/T	75 MHz/T
	γ_x/γ_y	0,033	0,3
	γ_z/γ_y	0,02	0,080
	$\sqrt{2\gamma_x^2 + \gamma_z^2}/\gamma_y$	0,051	0,432

TAB. 2.4 – Résumé des différentes valeurs expérimentales et théoriques des composantes du tenseur gyromagnétique.

des spectres de hole-burning sont données dans la figure 2.20. Ces mesures ont été faites pour un champ magnétique de 0,022 T, ce qui explique la taille importante des barres d'erreur. On a reporté sur la même figure les valeurs déduites de nos mesures ainsi que les données obtenues par Mingzhen Tian. Ces données coïncident parfaitement, et confirment le comportement des splittings prévu pour les différents sites.

A partir des mesures données dans l'expression (2.60), on peut déduire une borne inférieure pour le rapport de branchement maximal possible dans le Tm :YAG. On en tire également l'angle ξ'_0 entre le champ magnétique et le plan x, z qui donne un rapport de branchement proche du maximum (cf discussion en partie 2.2.3).

A partir des équations (2.41), (2.60), et (2.74), on trouve :

$$R_{max} \geq 0,13 \pm 0,01 \quad \text{et} \quad \tan \xi'_0 = 0,082 \pm 0,003 \quad (2.67)$$

On peut relier l'angle ξ entre le champ magnétique et le plan x, z du repère local cristallin à l'angle θ entre le champ magnétique et l'axe [001], en considérant la composante B_y du champ magnétique. Par définition de ξ , cette composante est égale à $B_0 \sin \xi$. Elle est aussi donnée dans l'équation (2.47) :

$$B_y = B_0 \left(\frac{\cos \theta}{\sqrt{2}} - \frac{\sin \theta}{2} \right) = -\frac{\sqrt{3}}{2} \sin(\theta - \theta_0) \quad (2.68)$$

où $\theta_0 = \arccos 1/\sqrt{3} = 54,74^\circ$. Donc

$$\xi(\theta) = \arcsin \left(-\frac{\sqrt{3}}{2} \sin(\theta - \theta_0) \right) \quad (2.69)$$

Une variation $\delta\theta$ de l'angle θ autour de l'angle θ_0 se traduira donc par une variation de ξ autour de 0 de

$$\delta\xi = \xi'(\theta_0)\delta\theta = -\frac{\sqrt{3}}{2}\delta\theta \quad (2.70)$$

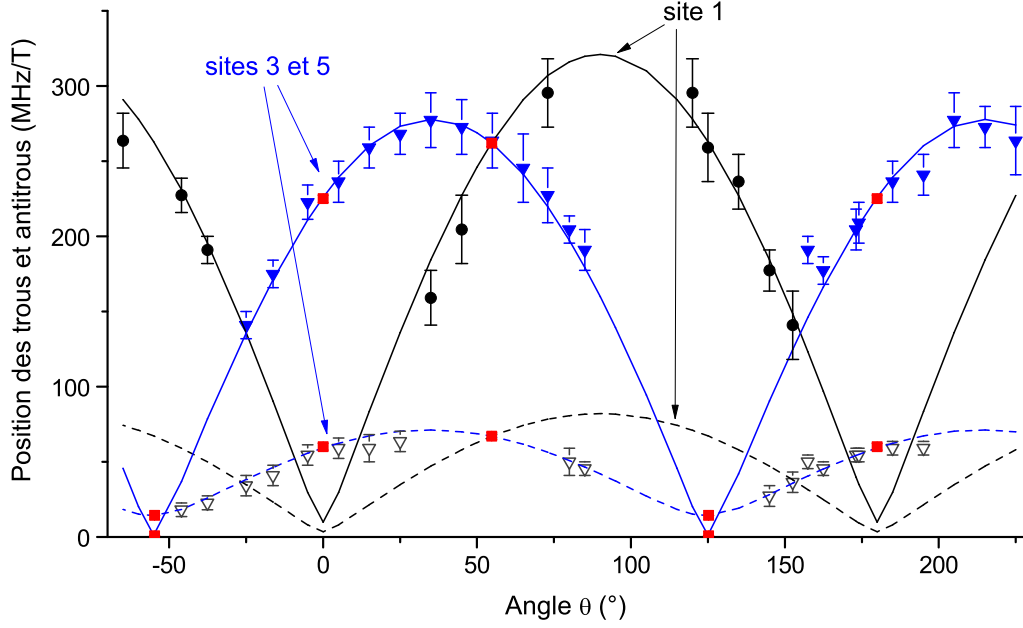


FIG. 2.20 – Position des trous (symboles ouverts) et antitrous (symboles fermés) dans les spectres de hole-burning de Tian *et al.* [94]. On a représenté par des cercles noirs (\bullet) les positions des trous relatifs aux ions du site 1, et par des triangles bleus (\blacktriangledown et \triangledown) les positions des trous et antitrous relatifs aux sites 3 et 5. Les lignes en traits pointillés (respectivement, pleins) représentent les positions des trous (respectivement, des antitrous à $\Delta_g - \Delta_e$) calculées à l'aide des valeurs expérimentales des composantes du tenseur gyromagnétique données dans le tableau 2.4, en choisissant pour l'état fondamental $\gamma_x/\gamma_y = 0,0292$ et $\gamma_z/\gamma_y = 0,0515$. On a également représenté par des carrés rouges les mesures notées (a), (b) et (c) dans le texte.

Ainsi, pour obtenir en principe un rapport de branchement supérieur à 0,13 dans les sites 4 et 6, il faut orienter le champ magnétique appliqué dans le plan bissecteur avec un angle

$$\theta_{4,6} = \theta_0 + (5,4 \pm 0,2^\circ) \quad \text{ou} \quad \theta_{4,6} = \theta_0 - (5,4 \pm 0,2^\circ) \quad (2.71)$$

Et pour les sites 3 et 5, le champ magnétique est orienté dans la direction symétrique par rapport à $[001]$:

$$\theta_{3,5} = -\theta_0 + (5,4 \pm 0,2^\circ) \quad \text{ou} \quad \theta_{3,5} = -\theta_0 - (5,4 \pm 0,2^\circ) \quad (2.72)$$

Les écarts énergétiques attendus pour les sites présentant le rapport de branchement maximal sont :

$$\Delta_g/B_0 = 35,7 \pm 2,5 \text{ MHz/T} \quad \text{et} \quad \Delta_e/B_0 = 15,9 \pm 1,5 \text{ MHz/T} \quad (2.73)$$

en choisissant pour l'état fondamental $\gamma_x/\gamma_y = 0,0292$ et $\gamma_z/\gamma_y = 0,0515$.

Les composantes du tenseur gyromagnétique du $\text{Pr}^{3+}:\text{LaF}_3$ ont été mesurées par B. R. Reddy et L. E. Erickson [95] :

$$\gamma_x^{(g)} = 48,9 \pm 0,4 \text{ MHz/T}, \gamma_y^{(g)} = 25,3 \pm 0,3 \text{ MHz/T}, \text{ et } \gamma_z^{(g)} = 101,6 \pm 0,3 \text{ MHz/T} \quad (2.74)$$

La composante dominante du tenseur gyromagnétique est 4 fois plus élevée dans le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ que dans le $\text{Pr}^{3+}:\text{LaF}_3$. L'ion thulium est donc plus sensible que le praséodyme aux fluctuations du champ magnétique induites par les basculements des spins des ions voisins. Ceci est inattendu, étant donné que le thulium présente des durées de vie de cohérences optiques plutôt longues, même lorsqu'il est inséré dans une matrice comme le YAG ou le LaF_3 contenant des spins nucléaires [37].

2.4.2 Durée de vie des populations

A l'équilibre thermique, les ions thulium sont répartis équitablement entre les deux sous-niveaux hyperfins, et ce, même à température cryogénique (~ 2 K). Toute différence de population entre ces sous-niveaux, créée par exemple par hole-burning, tend donc vers zéro à mesure que les ions reviennent à l'équilibre. Pour mesurer la durée de vie T_1 des niveaux hyperfins, il suffit donc de graver un trou dans le profil d'absorption du matériau, puis de venir sonder ce profil à différents instants après la gravure. La taille des structures décroît exponentiellement avec le temps, comme e^{-t/T_1} .

La durée de vie des sous-niveaux hyperfins a déjà été mesurée dans le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ par Ohlsson *et al.* [96] pour un champ magnétique orienté le long de l'axe c du cristal, dopé à 0,5%. Les auteurs ont mesuré des durées de vie en général plus longues pour des faibles champs magnétiques. Ces résultats sont néanmoins sujets à controverse car il s'est avéré finalement que l'échantillon de $\text{Tm}:\text{YAG}$ utilisé par ce groupe n'était pas un monocristal.

Nous ne nous intéresserons ici qu'à une seule amplitude et orientation du champ magnétique appliqué, et nous mesurerons les durées de vie des sous-niveaux hyperfins pour différentes classes de sites magnétiquement inéquivalents lorsque le cristal de $\text{Tm}:\text{YAG}$ est refroidi à $T = 2$ K. Un champ magnétique de 0,45 T produit par des aimants permanents forme un angle de $\theta = -54,5^\circ$ avec l'axe cristallin [001] (voir figure 2.7). Cette direction est très proche de $[\bar{1}\bar{1}1]$, donc les sites 1, 4, et 6 sont quasiment magnétiquement équivalents. Les splittings Δ_g et Δ_e attendus pour les sites 1, 3, 4, 5, et 6 sont donnés dans le tableau 2.5. Ils sont calculés à l'aide des composantes du tenseur mesurées expérimentalement, résumées dans le tableau 2.4.

La séquence de hole-burning utilisée ici est composée de 10 impulsions de gravure monochromatiques de 50 μs , espacées de 10 ms, et d'une impulsion de lecture de 500 μs dont la fréquence est balayée sur 25 MHz autour de la fréquence de l'impulsion de gravure.

On mesure la hauteur du trou central du spectre en fonction du temps d'attente entre la fin de la gravure et la lecture, que l'on fait varier entre 20 ms et 10 secondes. Le faisceau est focalisé dans l'échantillon sur un spot de diamètre $800 \mu\text{m}$ à $1/e^2$.

Le champ électrique est polarisé dans un premier temps selon la direction $[\bar{1}\bar{1}1]$, de façon que seuls les sites 1, 4, et 6 soient excités. Comme on peut le voir dans la figure 2.21, la hauteur du trou central ne diminue pas sur une durée de 10 secondes. La durée de vie des sous-niveaux hyperfins dans les sites 1, 4 et 6 est donc d'au moins plusieurs minutes, pour un splitting de 148 MHz environ.

Le champ électrique est ensuite polarisé dans la direction $[111]$ afin d'exciter les sites 1, 3, et 5. Ces trois sites ne sont pas magnétiquement équivalents. Il faut donc éliminer la contribution du site 1 au trou central du spectre de hole-burning. On applique pour cela une impulsion dite de blanchiment balayée en fréquence sur 25 MHz autour de la fréquence de gravure, qui a pour effet de pomper la totalité des ions vers l'autre sous-niveau hyperfin de l'état fondamental. Les ions du site 1 sont ainsi transférés vers un niveau situé à une distance de 147,7 MHz, où ils restent durant plusieurs minutes. Ils ne participent plus à l'absorption du cristal sur la largeur de 25 MHz. Les ions des sites 3 et 5, en revanche, présentent un splitting dans l'état fondamental beaucoup plus faible ($\simeq 6$ MHz). Une partie des ions des sites 3 et 5 va donc être pompée dans un sens puis dans l'autre au cours de l'impulsion de blanchiment. Une grande partie des ions des sites 3 et 5 revient donc à son état de départ. On intercale cette impulsion de blanchiment entre deux séquences de hole-burning. Comme le montre la figure 2.21, la hauteur du trou central dû uniquement aux ions des sites 3 et 5 décroît exponentiellement, avec une durée caractéristique $T_1 = 4,5 \pm 0,5$ s pour un splitting de 6 MHz.

	Δ_g (MHz)	Δ_e (MHz)	T_1
Site 1	$147,7 \pm 1$	$30,05 \pm 0,3$	> qq minutes
Sites 4 et 6	$148,4 \pm 1$	$30,2 \pm 0,3$	> qq minutes
Sites 3 et 5	$6,9 \pm 0,3$	$6,3 \pm 0,4$	$4,5 \pm 0,5$ s

TAB. 2.5 – Splittings attendus et durée de vie des sous-niveaux hyperfins mesurée pour un champ magnétique de 0,45 T selon $\theta = -54,5^\circ$ et une température de $T = 2$ K.

Ces longues durées de vie sont typiques des ions de terre rare. Ainsi, une durée de vie des sous-niveaux hyperfins de 100 secondes a été observée dans le Pr :YSO [84, 97], de plusieurs minutes dans le Tb :LiYF₄ [98], et de plus de 20 jours dans l'Eu :YSO [99].

Contrairement aux résultats de Ohlsson *et al.* [96], nos mesures montrent que le temps de vie est plus long lorsque l'écart énergétique des sous-niveaux est plus grand. Les transitions optiques n'étant pas impliquées dans les mécanismes de relaxation des spins, on

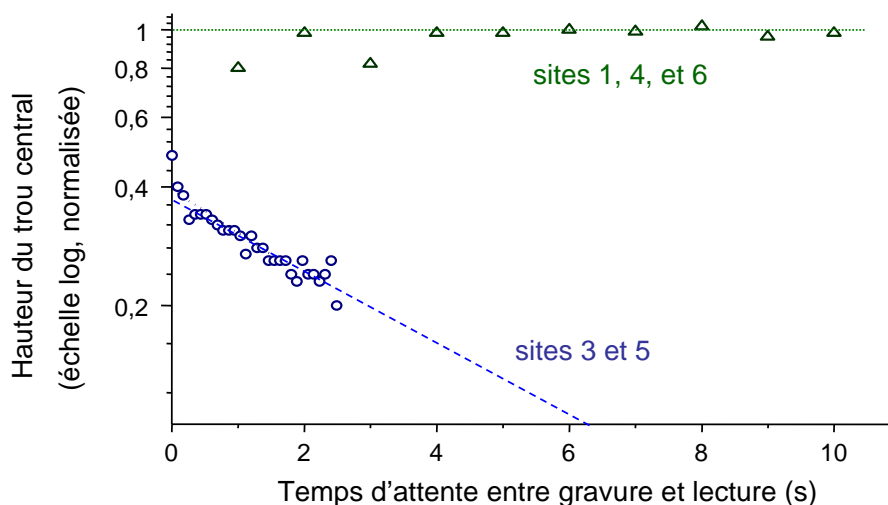


FIG. 2.21 – Décroissance du trou central dans le spectre de hole-burning après un temps d'attente entre la gravure et la lecture. Les triangles (respectivement, les cercles) représentent la hauteur du trou dans les sites 1, 4, et 6 (respectivement 3 et 5). La taille des trous est normalisée par rapport à la hauteur du fond.

s'attend à ce que la durée de vie des sous-niveaux dépende principalement du splitting de l'état fondamental. Lorsque l'on fait tourner le champ magnétique de quelques degrés par rapport à $\theta = -54,5^\circ$ (orientation pour laquelle les mesures de durée de vie rapportés ici ont été faites) le rapport de branchement varie fortement pour les ions des sites 3 à 5 (cf. figure 2.9), mais le splitting Δ_g dans l'état fondamental, proche de son minimum, varie peu (cf. tableau 2.6). On peut donc raisonnablement supposer que la durée de vie des sous-niveaux est insensible à une petite variation de l'angle θ autour de $\theta = -54,5^\circ$. On s'attend à des durées de vie des sites 3 et 5 similaires pour $\theta = -54,5^\circ$ et $\theta = -49,4^\circ$, angle pour lequel le rapport de branchement est maximum dans les sites 3 et 5. Ces résultats ont été publiés dans la référence [100].

	$\theta = -54,5^\circ$	$\theta = -49,4^\circ$
Site 1	147,7	137,8
Sites 4 et 6	148,4	152,4
Sites 3 et 5	6,9	16,1

TAB. 2.6 – Splittings dans l'état fondamental (en MHz) attendus pour un champ magnétique de 0,45 T selon $\theta = -54,5^\circ$ et $\theta = -49,4^\circ$. Ces valeurs sont calculées avec les coefficients gyromagnétiques déterminés expérimentalement, données dans le tableau 2.4.

Dans la suite de notre travail, le champ magnétique est orienté à proximité de la

direction $[\bar{1}\bar{1}1]$. La polarisation du faisceau excitateur est choisie parallèle à $[111]$ de façon que les sites 4 et 6 ne soient pas excités. Les ions des sites 1, 3 et 5 sont alors excités avec la même pulsation de Rabi et participent chacun pour un tiers de l'absorption du cristal, même si seuls les ions des sites 3 et 5 présentent un rapport de branchement intéressant. Pour se débarrasser de la contribution des ions du site 1 à l'absorption, on peut tirer parti du fait que l'écart énergétique entre les sous-niveaux Zeeman de l'état fondamental est bien plus grand dans le site 1 que dans les sites 3 et 5, comme le montre la figure 2.8(b), et de la longue durée de vie de ces niveaux dans le site 1. Une impulsion intense balayée en fréquence sur un intervalle inférieur au splitting Δ_g du site 1, permet, si elle est répétée régulièrement, de pomper tous les ions du site 1 sur un grand domaine du profil inhomogène vers le sous-niveau non-résonnant de l'état fondamental. Les ions du site 1 pompés hors du niveau résonnant ne participeront donc plus à l'absorption du cristal pendant plusieurs minutes. Il est alors possible de travailler exclusivement sur les sites qui présentent un système en Λ . Nous venons par ailleurs de montrer que la durée de vie de ces derniers sites (3 et 5, ou 4 et 6 selon la configuration choisie) est de plusieurs secondes, ce qui est largement suffisant pour les opérations de stockage quantique qui nous intéressent.

2.4.3 Elargissement inhomogène Raman

Etude d'un spectre de hole-burning

Les expériences décrites dans ce paragraphe mettent en jeu un champ magnétique appliqué formant un angle $\theta = -48,4^\circ$ avec l'axe $[001]$, créé par des bobines supraconductrices dans le cryostat Oxford Spectromag. Dans cette configuration, on s'attend à un système en Λ efficace dans les sites 3 et 5. Le faisceau laser est polarisé dans la direction $[111]$ afin d'exciter seulement les ions des sites 1, 3, et 5.

On réalise un premier spectre de hole-burning pour un champ magnétique de 0,19 T. La séquence est identique à celle décrite dans la figure 2.15. Elle comporte 10 impulsions de gravure de $50 \mu\text{s}$ séparées par des intervalles de 10 ms, une impulsion de lecture de 1 ms balayée sur 35 MHz autour de la fréquence de gravure, dont l'intensité est atténuée d'un facteur 100 par rapport à la gravure, et une impulsion de repompage intense balayée sur 35 MHz en 1 ms. L'intensité transmise de l'impulsion de lecture est reproduite dans la figure 2.22.

Grâce à l'impulsion de repompage, aucun ion du site 1 ne participe aux structures du spectre de hole-burning de la figure 2.22. L'ensemble des structures est attribué aux ions des sites 3 et 5. Le pic central noté A et appelé trou central, est observé à la fréquence de gravure. Différents trous et antitrous sont visibles à des positions symétriques par rapport à ce trou central. Le trou en position B est dû à l'émetteur radio de Villebon-sur-Yvette

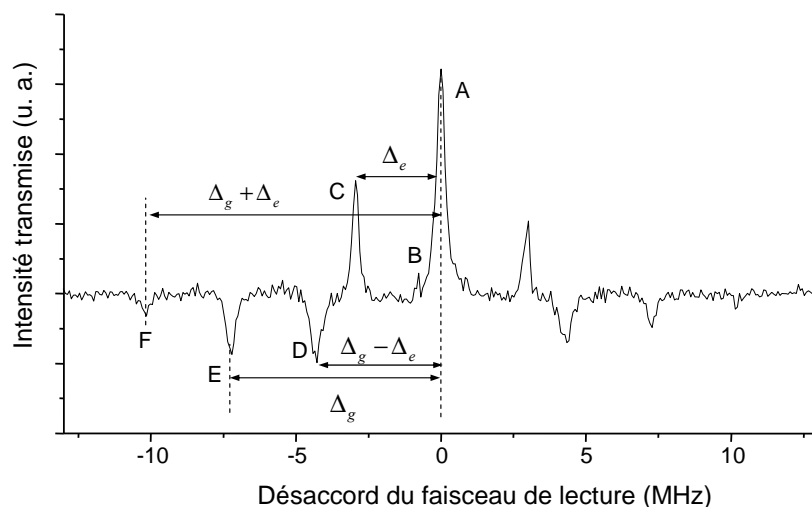


FIG. 2.22 – Spectre de hole-burning pour $\theta = -48,4^\circ$. La présence du troisième antitrou à la position notée F indique que la règle de sélection est relaxée et que les sites 3 et 5 présentent un système en Λ efficace.

situé à 4,5 km du laboratoire, qui émet à haute puissance (300 kW) à la fréquence de 864 kHz. Cette émission module le laser à travers la boucle de rétroaction. Le trou en position C est attribué à la transition vers l'autre sous-niveau de l'état excité. Il est situé à Δ_e de la fréquence de gravure. Deux antitrous sont situés respectivement à $\Delta_g - \Delta_e$ et Δ_g du trou central. Grâce aux valeurs calculées pour le splitting Δ_g , on identifie D et E comme étant ces deux antitrous. On observe cependant un troisième antitrou F, moins intense, situé à la distance $\Delta_g + \Delta_e$ de la fréquence centrale. Cet antitrou correspond nécessairement à l'absorption du faisceau sonde le long d'une transition faible du système noté (ii) dans la figure 2.13. Cet antitrou n'était pas prévu dans la description que nous avons faite de la spectroscopie par hole-burning (voir par exemple la figure 2.14), car dans cette analyse, nous avons supposé pour simplifier que le rapport de branchement était toujours très petit devant 1, et donc que la sonde ne pouvait pas percevoir une modification de la transmission du matériau sur une transition faible. Il est clair que cette hypothèse n'est pas valide dans la configuration actuelle ($\theta = -48,4^\circ$), ce qui laisse présager d'un rapport de branchement assez élevé pour les sites 3 et 5. Nous décrirons plus loin dans ce chapitre la mesure précise de ce rapport de branchement.

On a mesuré les largeurs des différentes structures sur ce spectre, et rassemblé les résultats dans le tableau 2.7. On peut faire quelques commentaires sur ces largeurs :

- L'impulsion de lecture est balayée en fréquence sur 35 MHz en 1 ms. Cela correspond à une largeur minimum des structures observées de $\sqrt{r} = 190$ kHz. Les largeurs des structures observées étant toutes largement supérieures à cette quantité, on en déduit qu'il existe d'autres facteurs d'élargissement que celui-là.

Nature	Trou	Trou	Antitrou	Antitrou
Fréquence	ν_0	$\nu_0 \pm \Delta_e$	$\nu_0 \pm (\Delta_g - \Delta_e)$	$\nu_0 \pm \Delta_g$
Largeur des structures (kHz)	400 ± 15	280 ± 15	520 ± 40	380 ± 40
Classes d'ions concernées	(i), (iii)	(ii),(iv)	(i), (iii)	(ii),(iv)

TAB. 2.7 – Largeurs des trous et antitrous du spectre de la figure 2.22.

- Les trous latéraux à $\nu_0 \pm \Delta_e$ (position C sur la figure) sont plus étroits que le trou central. Cela vient de l'effet de saturation du pompage optique qui est plus efficace dans les classes (i) et (iii) que dans les classes (ii) et (iv), comme on l'a vu dans la partie 2.3.3. En effet, les trous à $\nu_0 \pm \Delta_e$ proviennent des ions des classes (ii) et (iv), pour lesquels la gravure a été effectuée sur une transition faible.
- Par ailleurs, les antitrous latéraux sont nettement plus larges que le trou central. Parmi les diverses causes d'élargissement des structures du spectre de hole-burning énumérées dans la partie 2.3.3, la seule qui affecte les structures latérales sans élargir le trou central est l'élargissement inhomogène des sous-niveaux hyperfins. On note aussi que les trous à la fréquence $\nu_0 \pm \Delta_e$ sont plus étroits que les antitrous à la fréquence $\nu_0 \pm \Delta_g$. On en déduit donc que l'élargissement inhomogène des sous-niveaux hyperfins est plus important dans l'état fondamental que dans l'état excité.

Mesures de l'élargissement inhomogène sur les sous-niveaux hyperfins

Dans ce paragraphe, nous allons étudier l'origine de l'élargissement inhomogène des sous-niveaux hyperfins. Pour cela, nous explorons différentes amplitudes de champ magnétique en conservant son orientation $\theta = -48,4^\circ$. On donne en figure 2.23 les spectres de hole-burning réalisés pour un champ magnétique allant de 0,12 T à 0,96 T. L'utilisation d'un cryostat à bobines supraconductrices simplifie considérablement cette exploration systématique. Le champ magnétique ne peut toutefois pas être mesuré directement. On se référera donc aux sensibilités attendues pour les splittings Δ_g et Δ_e lorsque $\theta = -48,4^\circ$ calculées à partir des valeurs expérimentales des coefficients gyromagnétiques :

$$\Delta_g/B_0 = 41,3 \pm 1 \text{ MHz/T} \quad \text{et} \quad \Delta_e/B_0 = 16,5 \pm 1 \text{ MHz/T} \quad (2.75)$$

La séquence de spectroscopie par hole-burning est la même que précédemment, à ceci près que les impulsions de lecture et de repompage sont balayées linéairement en fréquence sur un intervalle de 70 MHz en 2 ms. Ce balayage en fréquence donne lieu à un élargissement des structures de $\sqrt{r} = 190$ kHz.

Conformément à nos prévisions, les splittings des niveaux fondamental et excité sont

bien des fonctions linéaires de l'amplitude B_0 du champ magnétique, et on mesure un rapport des splittings $\Delta_g/\Delta_e = 2,5$, qui correspond à l'équation (2.75).

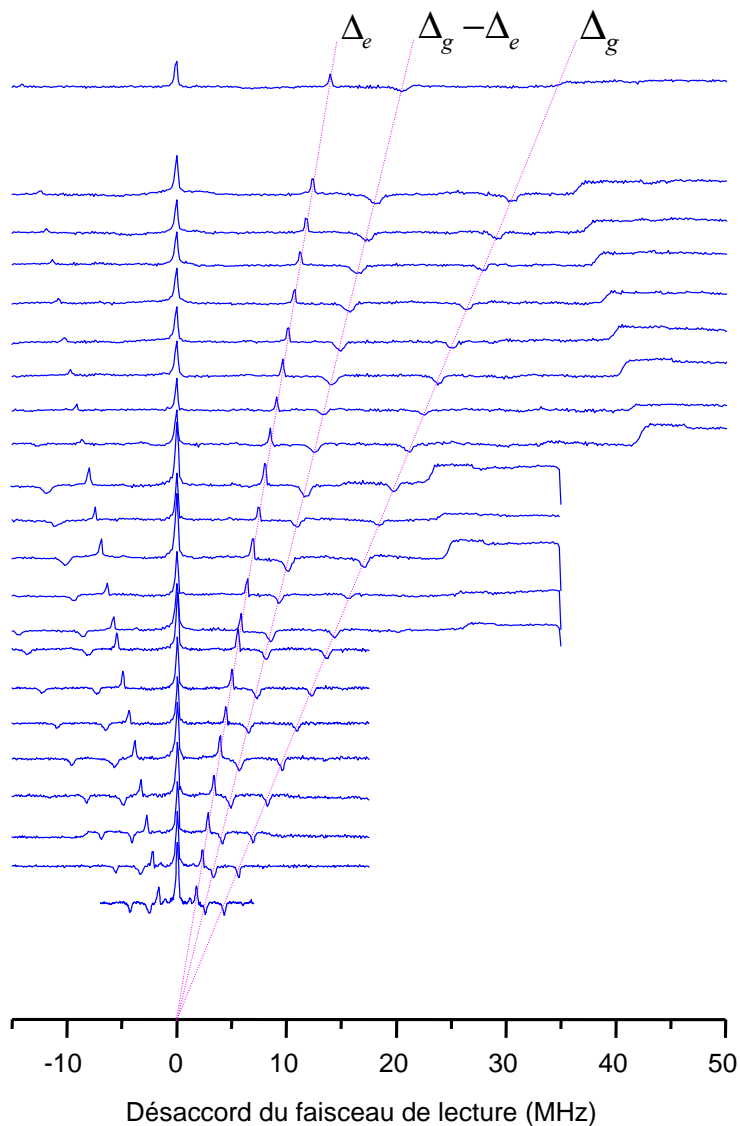


FIG. 2.23 – Spectres de hole-burning pour $\theta = -48,4^\circ$, pour différentes amplitudes de champ magnétique, de 0,12 T à 0,96 T. Chaque spectre est décalé verticalement par rapport au zéro proportionnellement à l'amplitude du champ magnétique appliqué.

On observe par ailleurs une augmentation brutale de l'intensité transmise à une distance des extrémités de l'intervalle spectral balayé égale à $\Delta_g - \Delta_e$. La présence de ces bords abrupts est une manifestation du pompage effectué par l'impulsion de lecture. En effet, les ions situés à une distance supérieure à $\Delta_g - \Delta_e$ des extrémités du domaine balayé peuvent être pompés par le faisceau de lecture vers l'autre sous niveau hyperfin mais, comme ils retombent à l'intérieur de l'intervalle sondé, ils sont repompés par le faisceau

de lecture vers leur niveau initial. Inversement, les ions situés à une distance inférieure à $\Delta_g - \Delta_e$ des extrémités du domaine balayé sont pompés vers l'autre sous-niveau hyperfin situé en dehors de l'intervalle de lecture, et ne peuvent pas être ramenés dans leur position initiale par le faisceau de lecture. Pour cette raison, le matériau est moins absorbant pour les fréquences optiques situées à une distance inférieure à $\Delta_g - \Delta_e$ des bords de l'intervalle sondé.

On s'intéresse aussi aux largeurs des différents trous et antitrous. On a représenté sur la figure 2.24 les largeurs à mi-hauteur des structures du spectre en fonction du champ magnétique appliqué. Toutes les structures semblent s'élargir de façon linéaire avec le champ magnétique. Les antitrous, où interviennent les deux splittings Δ_g et Δ_e , s'élargissent 10 fois plus vite que les trous, où n'intervient que le splitting Δ_e . Ceci prouve que l'élargissement inhomogène observé est dû à des inhomogénéités d'orientation entre le champ magnétique et les sites cristallins. En effet, à $\theta = -48,4^\circ$, le splitting Δ_g est 2,5 fois plus grand que Δ_e , mais sa *variation* en fonction de l'angle θ est 9 fois plus rapide, comme le suggère la figure 2.25. Cette étude montre donc que l'élargissement inhomogène provient d'une inhomogénéité d'orientation *relative* entre le champ magnétique et les sites cristallins. Ces résultats sont disponibles dans la référence [101].

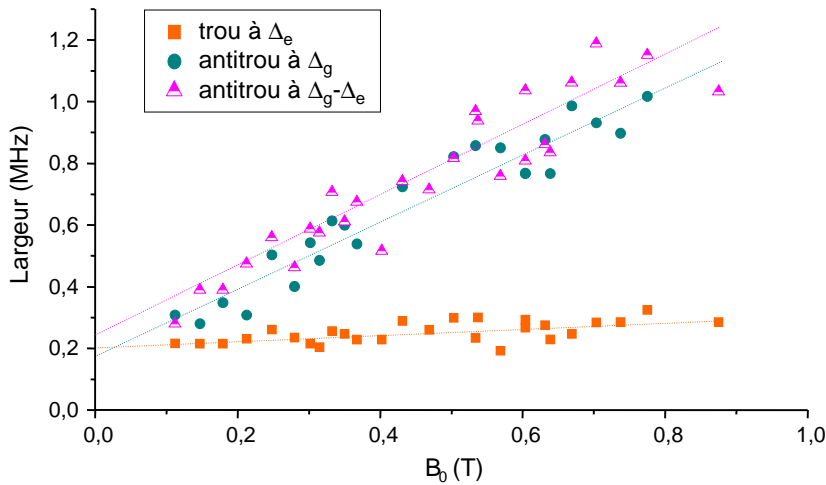


FIG. 2.24 – Largeur des trous et antitrous des spectres de la figure 2.23 aux fréquences Δ_e (carrés), Δ_g (points) et $\Delta_g - \Delta_e$ (triangles). Les droites en traits pointillés sont ajustées aux points expérimentaux. Leurs pentes respectives sont 0,093 MHz/T pour le trou à Δ_e , 0,99 MHz/T pour l'antitrou à Δ_g , 1,025 MHz/T pour l'antitrou à $\Delta_g - \Delta_e$.

En outre, si on extrapole la largeur des trous et antitrous en l'absence de champ magnétique, on trouve une largeur résiduelle proche de 200 kHz, qui correspond à l'élargissement dû au balayage en fréquence de l'impulsion de lecture.

D'autres mesures de l'élargissement inhomogène sur les sous-niveaux hyperfins ont été

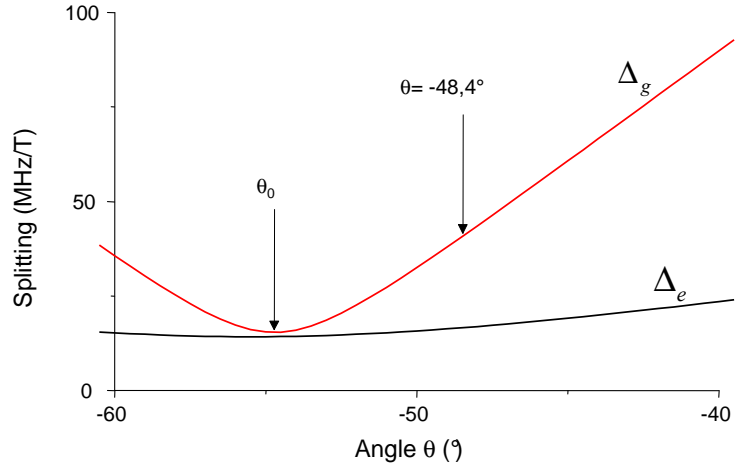


FIG. 2.25 – Splittings Δ_g et Δ_e pour les sites 3 et 5 au voisinage de $\theta = -48,4^\circ$. Les pentes de ces courbes sont dans un rapport de 10. L'angle $\theta_0 = \arccos 1/\sqrt{3}$ correspond à un champ magnétique appliqué dans la direction [111].

effectuées ultérieurement, après le remplacement des vis en inox du porte-échantillon par des vis en laiton afin de réduire les éventuelles inhomogénéités de champ magnétique. Par une analyse identique à celle décrite ci-dessus, on a trouvé un élargissement inhomogène de l'ordre de 0,34 MHz/T dans l'état fondamental et de 0,04 MHz/T environ dans l'état excité en plus des 200 kHz dûs au balayage en fréquence de l'impulsion de lecture. Cela confirme que l'élargissement inhomogène provient entre autres des inhomogénéités du champ magnétique. Pour l'heure il nous est impossible de déterminer si la largeur restante provient des inhomogénéités résiduelles du champ magnétique (dûes à d'autres pièces en inox dans le cryostat) ou des inhomogénéités d'orientation des sites cristallins dans le YAG.

2.4.4 Mesure directe du rapport de branchement

Nous venons de voir dans le paragraphe précédent que l'orientation $\theta = -48,4^\circ$ du champ magnétique laissait présager d'un rapport de branchement élevé pour les sites 3 et 5 du Tm :YAG. Nous allons maintenant mesurer directement ce rapport de branchement, afin de valider l'existence d'un système en Λ dans ce matériau.

Diverses méthodes sont à notre disposition pour mesurer le rapport entre des probabilités de transition. Une première technique assez naturelle serait de s'intéresser aux aires respectives des trous et antitrous dans les spectres de hole-burning. C'est la méthode employée par exemple par Nilsson *et al.* [81] pour calculer les forces de transition relatives des neuf transitions dans le Pr :YSO. Dans le cas du Tm :YAG, cependant, cette méthode ne nous a pas paru suffisamment fiable, compte tenu de la précision recherchée sur le

rapport de branchement. Nous avons plutôt choisi de mettre en œuvre dans le $\text{Tm}:\text{YAG}$ des processus transitoires cohérents (la nutation optique et l'écho de photon) séparément sur chacune des transitions du système en Λ . En effet, dans ces deux processus, la réponse atomique est une fonction directe de la pulsation de Rabi. On isolera les transitions grâce à une opération de pompage optique sélectif en fréquence.

Nutation optique

En l'absence de champ magnétique, le $\text{Tm}:\text{YAG}$ se comporte comme un ensemble de systèmes à deux niveaux et présente un élargissement inhomogène gigantesque. Un signal typique de nutation optique dans notre échantillon est donné dans la figure 2.26. La densité optique du cristal dopé à 0,1 % s'élève à :

$$D_0 = \log_{10} \frac{\mathcal{I}_{nut}(t \rightarrow \infty)}{\mathcal{I}_{nut}(t = 0)} = 0,32 \quad (2.76)$$

Chacun des sites 1, 3 et 5 participe pour un tiers à cette densité optique.

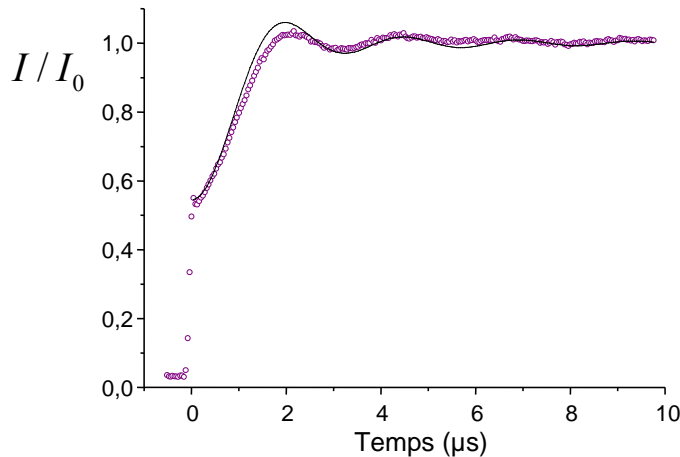


FIG. 2.26 – Exemple de signal de nutation optique en l'absence de champ magnétique, pour un échantillon refroidi à $T = 3 \text{ K}$, excité par une impulsion de $10 \mu\text{s}$ polarisée selon [111]. L'intensité transmise est normalisée par rapport à l'intensité du faisceau incident (cercles : points expérimentaux, ligne : ajustement par l'équation (2.57)).

On applique maintenant un champ magnétique dans la direction $\theta = -48,4^\circ$, pour laquelle le rapport de branchement doit être maximum pour les sites 3 et 5. Le champ magnétique divise les niveaux électroniques en deux sous-niveaux, et les ions sont répartis équitablement dans les deux sous-niveaux de l'état fondamental. Cependant, pour un champ magnétique modéré, le profil d'absorption du cristal n'est pas modifié. La densité optique du cristal reste la même, et le signal de nutation est inchangé. On s'intéresse au signal de nutation optique lorsque des impulsions rectangulaires de $10 \mu\text{s}$ sont envoyées de

façon répétée sur l'échantillon et que l'on baisse progressivement la température du cristal. Deux processus sont alors en concurrence : d'une part, le processus de thermalisation qui tend à équilibrer les populations dans les sous-niveaux hyperfins de l'état fondamental, et d'autre part l'effet de pompage optique des impulsions excitatrices répétées. Tant que la température est suffisamment élevée pour que le processus de thermalisation domine, le système peut retourner à son état initial entre deux impulsions, et le signal de nutation reste visible. A mesure que l'on baisse la température de l'échantillon, la thermalisation est de plus en plus lente, et le pompage optique finit par dominer. Le niveau résonnant avec l'impulsion excitatrice se vide de ses ions, rendant le matériau transparent à la fréquence de l'excitation, et le signal de nutation disparaît complètement.

Nous allons tirer parti de cette disparition totale du signal pour repeupler les atomes dans une classe d'ions bien choisie, afin que le signal de nutation que l'on aura récupéré soit spécifique à une seule transition. La repopulation s'effectue à l'aide d'une impulsion de repompage à la fréquence ν_R . Si l'on choisit une fréquence de repompage égale à $\nu_0 - \Delta_g$, (où ν_0 désigne la fréquence des impulsions excitatrices et Δ_g le splitting dans l'état fondamental des sites 3 et 5), l'impulsion de repompage ne repeuplera les sous-niveaux résonnants que dans les classes (i) et (ii) des ions des sites 3 et 5 (voir figure 2.27(a)). Les ions des sites 3 et 5 des classes (iii) et (iv), ainsi que les ions du site 1, quelle que soit la classe à laquelle ils appartiennent, ne seront pas repompés et ne participeront pas au signal de nutation. Si l'on choisit de repomper les atomes à la fréquence $\nu_R = \nu_0 + \Delta_g - \Delta_e$, les seuls ions qui participent au signal appartiennent à la classe notée (iii). Le signal de nutation qui en résulte sera donc issu uniquement d'ions excités selon une transition forte. Si l'on choisit plutôt de repomper les atomes à la fréquence $\nu_R = \nu_0 + \Delta_g + \Delta_e$, les seuls ions qui participent au signal appartiennent à la classe notée (iv). Le signal de nutation qui en résulte sera donc issu uniquement d'ions excités selon une transition faible.

Nous allons effectuer des expériences de nutation optique pour différentes fréquences de repompage. Comme nous l'avons évoqué lors de la description théorique du phénomène de nutation optique (en partie 2.3.3), le rapport de branchement sera obtenu en comparant les *densités optiques* pour chacune des configurations. Or, la densité optique d'un ensemble d'atomes ne dépend pas seulement de la probabilité de la transition absorbante, mais aussi du nombre d'atomes présents dans le niveau sondé. Avant de présenter ces expériences, il est donc nécessaire d'évaluer la proportion d'atomes qui se trouve dans le niveau résonnant du fait de la succession des impulsions excitatrices et des impulsions de repompage.

Soit N_1 la proportion du nombre total d'atomes dans le sous-niveau de l'état fondamental résonnant avec l'impulsion excitatrice, et N_2 la proportion du nombre total d'atomes dans l'autre sous-niveau de l'état fondamental. On suppose que le temps d'attente entre les différentes impulsions est suffisamment long pour qu'il n'y ait plus d'atomes dans l'état électronique excité, c'est-à-dire $N_1 + N_2 = 1$. Le pompage dû aux impulsions

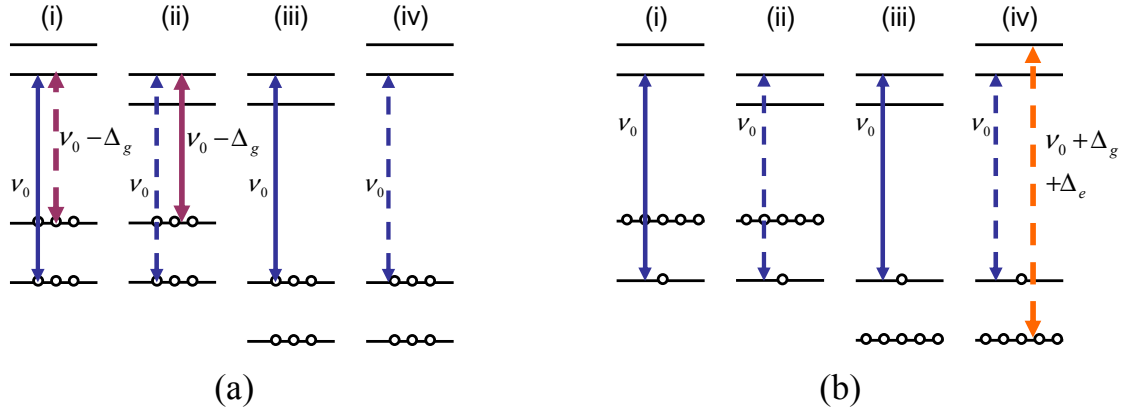


FIG. 2.27 – Schéma d'excitation à fréquence ν_0 avec un processus de repompage qui permet de récupérer le signal de nutation pour certaines classes d'ions. (a) Le repompage est effectué à la fréquence $\nu_R = \nu_0 - \Delta_g$. A basse température, seuls les ions des classes (i) et (ii) des sites cristallins 3 et 5 sont susceptibles de participer au signal de nutation optique à la fréquence ν_0 . (b) Le repompage est effectué à la fréquence $\nu_R = \nu_0 + \Delta_g + \Delta_e$ afin de ne sélectionner que les ions de la classe (iv).

excitatrices transfère les atomes du niveau 1 vers le niveau 2 avec le taux p . Le repompage transfère les atomes du niveau 2 vers le niveau 1 avec le taux r . La relaxation par thermalisation équilibre les populations dans les niveaux 1 et 2 avec un taux κ . On peut donc écrire que la proportion d'atomes dans le niveau résonnant vérifie l'équation différentielle :

$$\frac{dN_1}{dt} = -pN_1 + rN_2 + \kappa(N_2 - N_1) \quad (2.77)$$

En régime stationnaire, $\frac{dN_1}{dt} = 0$. On a donc :

$$N_1 = \frac{r + \kappa}{p + r + 2\kappa} = \rho \quad (2.78)$$

En l'absence de toute excitation optique ($r = p = 0$), le système est à l'équilibre thermique, c'est-à-dire $\rho = 1/2$. Comme on l'a déjà évoqué plus haut, si la température de l'échantillon est assez élevée de façon que $\kappa \gg r, p$, la proportion ρ d'atomes participant au signal de nutation sera égale à $1/2$, c'est-à-dire que le système retourne à l'équilibre thermique entre les impulsions excitatrices. Au contraire, lorsque l'on diminue la température, on peut arriver à la situation où $r, p \gg \kappa$. La proportion d'atomes participant au signal s'élève alors à $\rho = r/(p + r)$.

Les processus de transfert d'atomes par pompage optique sont constitués de deux étapes : une étape d'excitation de la transition optique durant laquelle une partie des atomes est transférée dans l'état excité, et une étape de relaxation pendant laquelle les atomes retombent dans les sous-niveaux de l'état fondamental. On pourrait croire a priori

que ces deux processus sont plus ou moins efficaces selon la probabilité de la transition considérée, et donc que les taux r et p dépendent de la force des transitions considérées. En réalité, les deux étapes du pompage optique en sont indépendantes. Les impulsions excitatrices ont une durée de $10 \mu\text{s}$. Avec les paramètres expérimentaux utilisés, cette durée suffit pour que les populations soient égales dans le niveau fondamental et le niveau excité à la fin de l'impulsion, que l'impulsion excite une transition faible ou forte. La figure 2.26 montre que ceci est vérifié lorsque l'impulsion excite la transition forte. Nous montrerons plus tard que c'est le cas aussi lorsque l'impulsion excite la transition faible, même si le processus est plus lent. L'impulsion excitatrice porte donc le système dans le même état final, que la probabilité de la transition excitée soit faible ou forte. D'autre part, la désexcitation des atomes vers les sous-niveaux fondamentaux est très différente de la relaxation par émission spontanée car elle se fait principalement via les états intermédiaires 3H_5 et 3F_4 par des processus non radiatifs. Les expériences de hole-burning nous ont montré que ces processus ne sont pas soumis aux règles de sélection sur le spin nucléaire. Ainsi, ni l'étape d'excitation ni l'étape de relaxation du processus de pompage optique ne sont sensibles aux probabilités de transition. Par exemple, le coefficient ρ sera le même dans les classes d'ions (i) et (ii) de la figure 2.27(a), et dans la classe d'ions (iv) de la figure 2.28(b).

- Lorsque le repompage est désaccordé de Δ_g par rapport aux impulsions excitatrices [comme illustré en figure 2.27(a)], seuls les ions des classes (i) et (ii) des sites 3 et 5 participent au signal. Dans la classe (i) les ions sont excités selon la transition forte, tandis que dans la classe (ii), ils sont excités selon la transition faible. Les ions du site 1 ne participent pas au signal puisqu'ils ne sont pas résonnants avec l'impulsion de repompage. C'est pourquoi la densité après repompage est affectée d'un coefficient $2/3$. La densité optique du matériau est par ailleurs proportionnelle au carré du moment dipolaire, et proportionnelle au nombre d'atomes résonnants. Elle s'écrit donc :

$$D_{s+w} = \frac{2}{3} D_0 \left(\underbrace{\frac{\mu_s^2}{\mu_s^2 + \mu_w^2} \rho}_{\text{classe (i)}} + \underbrace{\frac{\mu_w^2}{\mu_s^2 + \mu_w^2} \rho}_{\text{classe (ii)}} \right) = \frac{2}{3} D_0 \rho \quad (2.79)$$

où D_0 est la densité optique de l'échantillon en l'absence de champ magnétique.

- Lorsque le repompage est désaccordé de $\Delta_g - \Delta_e$ par rapport aux impulsions excitatrices [comme illustré en figure 2.27(b)], seuls les ions de la classe (iii) des sites 3 et 5 participent au signal, selon une transition forte. Dans cette configuration, la densité optique du matériau s'écrit :

$$D_s = \frac{2}{3} D_0 \frac{\mu_s^2}{\mu_s^2 + \mu_w^2} \rho = \frac{2}{3} D_0 \frac{1}{1 + R} \rho \quad (2.80)$$

- Enfin, lorsque le repompage est désaccordé de $\Delta_g + \Delta_e$ par rapport aux impulsions excitatrices [comme illustré en figure 2.27(b)], seuls les ions de la classe (iv) des sites 3 et 5 participent au signal, selon une transition faible. Dans cette configuration, on s'attend à une densité optique très faible qui s'écrit :

$$D_w = \frac{2}{3} D_0 \frac{\mu_w^2}{\mu_s^2 + \mu_w^2} \rho = \frac{2}{3} D_0 \frac{R}{1+R} \rho \quad (2.81)$$

Les expériences présentées ici ont été réalisées dans le cryostat Oxford Instruments Spectromag équipé de bobines supraconductrices, permettant d'allumer et d'éteindre le champ magnétique sans avoir à réchauffer l'échantillon. On mesure une puissance lumineuse de 17 mW à la sortie de la fibre. Les impulsions de nutation d'une durée de 10 μs , sont répétées à une cadence de 50 impulsions par seconde, et envoyées sur l'échantillon de $\text{Tm}:\text{YAG}$ refroidi à $T = 2\text{ K}$, sur un spot de diamètre 100 μm à $1/e^2$. On a représenté en figure 2.28(a) l'intensité transmise d'une impulsion excitatrice en l'absence de champ magnétique. En comparant l'intensité incidente avec l'intensité au tout début de l'impulsion, on obtient la densité optique $D_0 = 0,36$.

On applique alors un champ magnétique de 0,3 T selon la direction supposée optimale, c'est-à-dire $\theta = -48,4^\circ$. A cause du pompage optique des impulsions excitatrices répétées et de la très longue durée de vie des sous-niveaux hyperfins à cette température, le matériau devient transparent et l'intensité transmise est quasiment constante, ainsi que le montre la figure 2.28(d). Afin de récupérer un signal de nutation, on applique une séquence de 10 impulsions de repompage de 100 μs , séparées par des intervalles de temps de 10 ms. On a mesuré dans l'état fondamental un élargissement inhomogène des sous-niveaux hyperfins de 600 kHz environ, d'après la figure 2.24. Afin que tous les atomes de cette largeur inhomogène puissent être repompés, chacune des impulsions de repompage est balayée linéairement sur 1 MHz autour de la fréquence ν_R .

On a représenté sur la figure 2.28(b) le signal transmis lorsque les impulsions de repompage sont centrées sur la fréquence $\nu_R = \nu_0 - \Delta_g$. La densité optique mesurée sur ce signal est $D_{s+w} = 0,167$. On déduit de l'équation (2.79) que la proportion d'atomes restants dans le sous-niveau résonnant est de :

$$\rho = \frac{3}{2} \frac{D_{s+w}}{D_0} = 0,69 \quad (2.82)$$

On peut remarquer que dans les cas (a) et (b) de la figure 2.28, même si la densité optique du matériau est différente, le premier maximum survient au même instant, c'est-à-dire que la pulsation de Rabi est la même. En effet, dans les deux cas, les ions participant aux signaux de nutation sont excités pour la moitié selon une transition forte, et pour l'autre moitié selon une transition faible. Seul le nombre d'atomes participant au signal a changé.

On a représenté sur la figure 2.28(c) le signal de nutation observé lorsque les impulsions de repompage sont centrées autour de la fréquence $\nu_0 + \Delta_g + \Delta_e$. La densité optique est

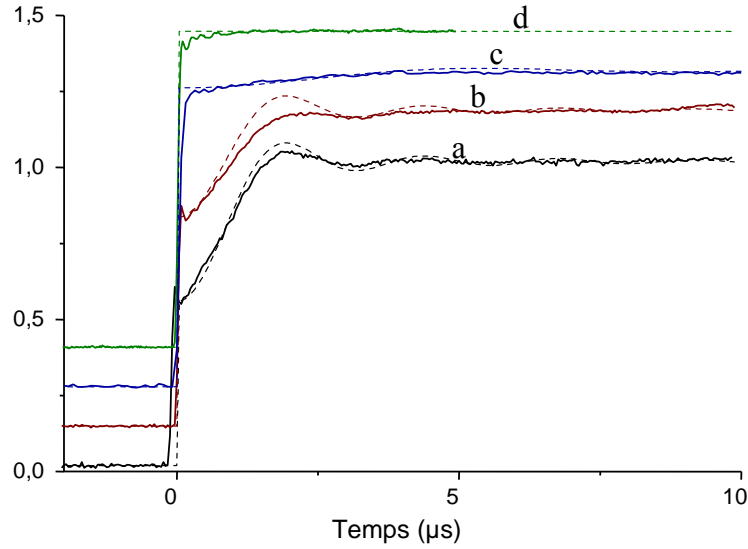


FIG. 2.28 – Signaux de nutation optique pour différentes configurations expérimentales. Les quatre courbes expérimentales (en traits pleins) ont été obtenues pour la même intensité lumineuse. (a) en l'absence de champ magnétique. (b) avec un champ magnétique, et une impulsion de repompage à la fréquence $\nu_R = \nu_0 - \Delta_g$. (c) avec un champ magnétique, et une impulsion de repompage à la fréquence $\nu_R = \nu_0 - \Delta_g - \Delta_e$. (d) avec un champ magnétique, mais sans impulsion de repompage. Les lignes pointillées sont les courbes théoriques données par l'équation (2.57) et ajustées aux points expérimentaux. Les courbes sont décalées verticalement pour une meilleure visibilité.

alors tellement faible que les oscillations du signal de nutation ne sont pas visibles : on voit seulement l'intensité augmenter lentement. Comme on l'avait prévu, il n'est pas possible d'évaluer directement la pulsation de Rabi de l'excitation sur la transition faible, à cause du manque de contraste. Il est clair néanmoins que le signal (c) ne provient pas d'ions excités selon une transition forte, car ses oscillations sont nettement plus lentes que celles des signaux (a) ou (b). Ce signal est donc uniquement dû à des ions excités selon une transition faible. La densité optique mesurée sur ce signal est $D_w = 0,018 \pm 0,004$. D'après les équations (2.79) et (2.81), on obtient finalement :

$$R = \frac{1}{\frac{D_{s+w}}{D_w} - 1} = 0,12 \pm 0,03 \quad (2.83)$$

A partir de cette valeur du rapport de branchement, on en déduit que le premier maximum du signal (c) devrait se trouver à $t = 5,6 \pm 0,7 \mu s$. On est donc certain que la transition optique est saturée, même lorsque sa probabilité de transition est faible. Ceci justifie l'hypothèse faite plus haut, selon laquelle l'impulsion excitatrice porte donc le système dans le même état final, que la probabilité de la transition excitée soit faible ou forte.

Echo de photon

Dans cette partie nous allons décrire les expériences d'écho de photon réalisées séparément sur chacune des transitions du système à 4 niveaux que constitue l'ion de Tm plongé dans un champ magnétique.

On réalise dans un premier temps une expérience d'écho de photon dans le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ en l'absence de champ magnétique. L'échantillon est illuminé par deux impulsions lumineuses successives de forme temporelle gaussienne, de durée $2 \mu\text{s}$, séparées par $10 \mu\text{s}$ et de même intensité. On mesure une puissance lumineuse en sortie de la fibre de 15 mW , et le faisceau est focalisé dans l'échantillon sur un spot de diamètre $100 \mu\text{m}$ à $1/e^2$. Un écho apparaît à l'instant $t_0 + 20 \mu\text{s}$ si la température de l'échantillon est inférieure à 5 K .

On applique maintenant un champ magnétique dans la direction $\theta = -48,4^\circ$, pour laquelle le rapport de branchement doit être maximum pour les sites 3 et 5. Comme pour les expériences de nutation optique décrites précédemment, le champ magnétique divise les niveaux électroniques en deux sous-niveaux, et les ions sont répartis équitablement dans les deux sous-niveaux de l'état fondamental, sans que le profil d'absorption du cristal soit modifié. La densité optique du cristal reste donc la même. On répète la séquence d'écho de photon (composée des deux impulsions gaussiennes) à une cadence de 50 séquences par seconde. A $T = 2,6 \text{ K}$, la relaxation des populations dans les sous-niveaux hyperfins est suffisamment rapide pour que le système puisse revenir à l'équilibre thermique entre chaque séquence d'impulsions, donc l'écho de photon est toujours présent. A $T = 1,9 \text{ K}$, en revanche, l'effet de pompage optique opéré par les deux impulsions excitatrices domine l'effet de redistribution des populations dans les sous-niveaux hyperfins. Le matériau devient transparent, et l'écho de photon disparaît. Le signal détecté en transmission pour ces deux températures est donné dans la figure 2.29. Le modulateur acousto-optique est ouvert quelques μs après la deuxième impulsion afin que les impulsions excitatrices soient coupées et que l'écho de photon, beaucoup moins intense, soit entièrement transmis jusqu'au détecteur.

On voit sur la figure 2.29 que lorsque le milieu est absorbant (température élevée), la première impulsion excitatrice est davantage absorbée que la deuxième, car elle sature partiellement la transition optique. Lorsque le milieu est transparent (basse température), cet effet de saturation partielle n'a pas lieu, et les deux impulsions sont entièrement transmises.

Comme dans la partie précédente, nous allons intercaler une série de 10 impulsions de repompage entre deux séquences d'écho de photon, afin d'isoler le signal d'écho de photon pour une transition forte, ou pour une transition faible. Les impulsions de repompage sont de la même forme que dans le paragraphe précédent : ce sont des impulsions rectangulaires de $100 \mu\text{s}$ balayées en fréquence sur 1 MHz . Si ces impulsions sont centrées autour de la

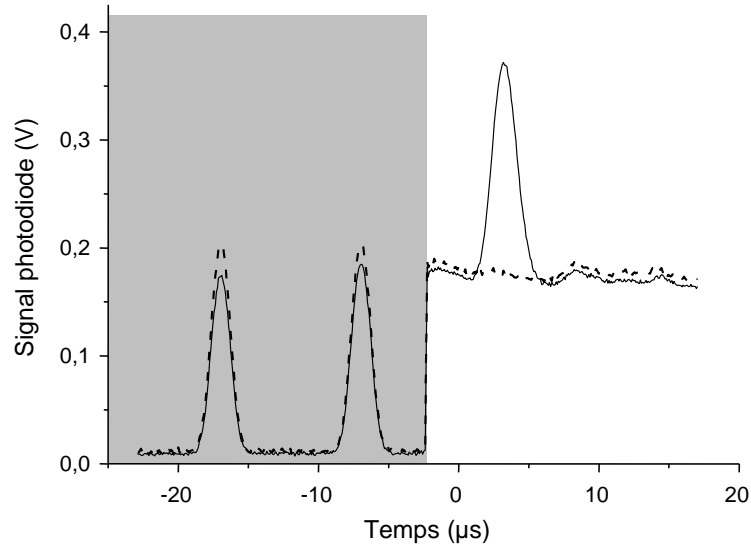


FIG. 2.29 – Exemple d'un écho de photon dans le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ plongé dans un champ magnétique de 0,3 T. La température de l'échantillon est de $T = 2,6$ K (respectivement, $T = 1,9$ K) pour la ligne en trait plein (respectivement, en traits pointillés). La zone grisée correspond à l'intervalle de temps pendant lequel l'AO2 est en position fermée. Les impulsions excitatrices sont fortement atténuées juste avant le détecteur. Une baisse de température de moins de 1 kelvin suffit pour faire disparaître l'écho de photon.

fréquence $\nu_0 + \Delta_g - \Delta_e$, alors ce sont les ions de la classe (iii) qui sont ramenés dans le sous-niveau résonnant (voir la figure 2.27). Le signal d'écho de photon qui réapparaît est attribué à une excitation selon la transition forte, caractérisée par le dipôle de transition μ_s . Si au contraire les impulsions de repompage sont centrées autour de la fréquence $\nu_0 + \Delta_g + \Delta_e$, alors ce sont les ions de la classe (iv) qui sont ramenés dans le sous-niveau résonnant. Le signal d'écho de photon est alors attribué à une excitation selon la transition faible, caractérisée par le dipôle de transition μ_w .

Contrairement au phénomène de nutation optique, on ne connaît pas l'expression explicite de l'intensité de l'écho de photon pour une pulsation de Rabi quelconque. Malgré cela, on pourra déterminer le rapport de branchement R du système en Λ , en utilisant les propriétés de l'écho de photon.

L'amplitude de l'écho de photon est donnée par le produit du moment dipolaire de la transition optique et de l'intégrale de $\text{Tr}(\mu(\rho_{ab} + \rho_{ba}))$ sur l'ensemble du profil inhomogène [102]. Cette intégrale est une fonction de la pulsation de Rabi $f(\Omega)$. L'intensité de l'écho de photon peut donc s'écrire :

$$\mathcal{I}_{echo}(\mathcal{I}) = \mu^2 g(\mu^2 \mathcal{I}) \quad (2.84)$$

où $g(\mu^2 \mathcal{I}) = f(\mu E/\hbar)^2$, \mathcal{I} est l'intensité des impulsions excitatrices, et μ est le moment

dipolaire de la transition.

On note $\mathcal{I}_s(\mathcal{I})$ et $\mathcal{I}_w(\mathcal{I})$ respectivement l'intensité de l'écho de photon observé selon la transition forte ou selon la transition faible, pour un champ incident d'intensité \mathcal{I} . On a donc :

$$\mathcal{I}_s(\mathcal{I}) = \mu_s^2 g(\mu_s^2 \mathcal{I}) \text{ et } \mathcal{I}_w(\mathcal{I}) = \mu_w^2 g(\mu_w^2 \mathcal{I}) \quad (2.85)$$

La fonction g est la même pour les deux expressions. On peut alors écrire :

$$\mathcal{I}_w(\mathcal{I}) = \mu_w^2 g(\mu_w^2 \mathcal{I}) = R \mu_s^2 g(\mu_s^2 R \mathcal{I}) = R \mathcal{I}_s(R \mathcal{I}) \quad (2.86)$$

car $R = \mu_w^2 / \mu_s^2$.

Nous avons mesuré l'intensité $\mathcal{I}_w(\mathcal{I}_0)$ de l'écho de photon sur la transition faible pour une unique valeur \mathcal{I}_0 de l'intensité des impulsions excitatrices. Cette mesure est illustrée par la figure 2.30(a). Nous avons mesuré par ailleurs l'intensité $\mathcal{I}_s(\mathcal{I})$ de l'écho de photon sur la transition forte pour différentes intensités d'impulsions excitatrices $\mathcal{I} = x\mathcal{I}_0$. Ces mesures sont résumées dans la figure 2.30(b).

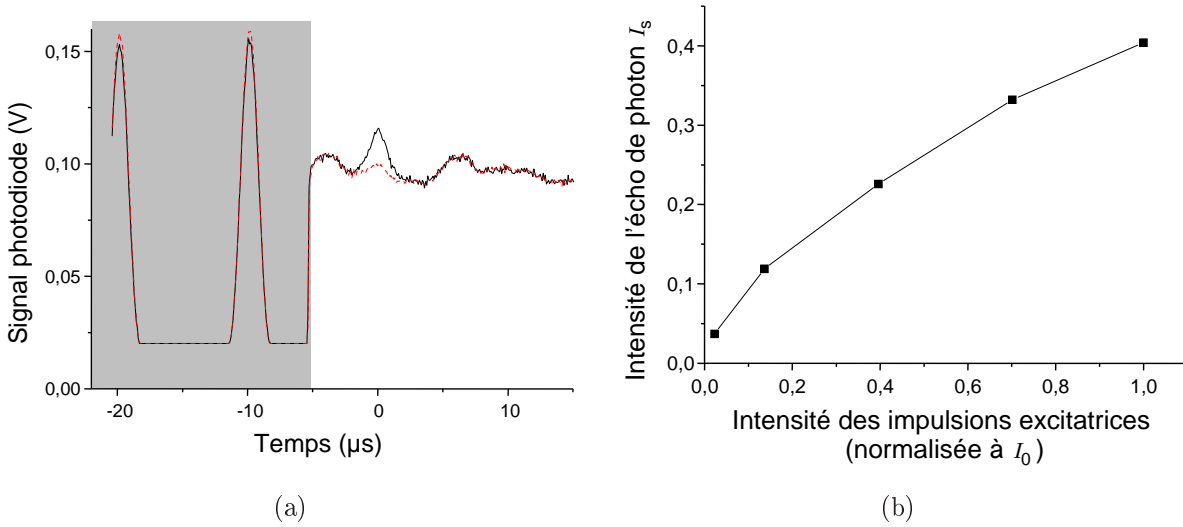


FIG. 2.30 – (a) Signal détecté sur la photodiode sans repompage (ligne pointillée), et avec repompage à $\nu_0 + \Delta_g + \Delta_e$ (ligne continue). Dans ce cas l'écho de photon est émis sur la transition faible. La zone grisée correspond à l'intervalle de temps pendant lequel l'AO2 est en position fermée. Les impulsions excitatrices ont une intensité \mathcal{I}_0 qui sert de référence pour les autres expériences d'écho de photon. (b) Intensité de l'écho de photon sur la transition forte \mathcal{I}_s pour différentes intensités $\mathcal{I} = x\mathcal{I}_0$ des impulsions excitatrices.

On trace sur le graphe de la figure 2.31 les points de la fonction $x \rightarrow x\mathcal{I}_s(x\mathcal{I}_0)$ à partir des points expérimentaux de la figure 2.30(b). Ces points étant quasiment alignés en échelle semi-logarithmique, on peut leur ajuster une courbe polynomiale. D'après l'équation (2.86), le rapport de branchement R est égal à l'abscisse du point où la courbe ainsi

tracée prend une valeur égale à $\mathcal{I}_w(\mathcal{I}_0)$. En effet :

$$\mathcal{I}_w(\mathcal{I}_0) = R\mathcal{I}_s(R\mathcal{I}_0) \quad (2.87)$$

On trouve enfin graphiquement sur la figure 2.31 :

$$R = 0,13 \pm 0,015 \quad (2.88)$$

qui est en bon accord avec la valeur de R déterminée grâce aux expériences de nutation optique.

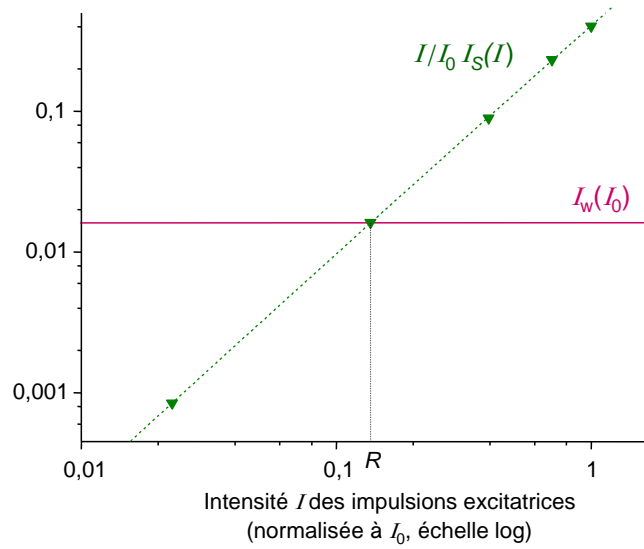


FIG. 2.31 – Détermination graphique du rapport de branchement, comme abscisse du point d'intersection de la courbe $x \rightarrow x\mathcal{I}_s(x\mathcal{I}_0)$ (triangles : points expérimentaux, ligne pointillée : interpolation polynomiale) et de la courbe $x \rightarrow \mathcal{I}_w(\mathcal{I}_0)$ (ligne continue).

2.5 Conclusion

Dans ce deuxième chapitre, nous avons démontré d'abord théoriquement puis expérimentalement l'existence d'un système à trois niveaux en Λ dans le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ lorsqu'il est plongé dans un champ magnétique.

A cause de règles de sélection sur le spin nucléaire, la construction d'un tel système à 3 niveaux paraissait à première vue impossible. Nous avons vu qu'en réalité l'interaction dite *Zeeman nucléaire exacerbée* permettait de créer des mélanges partiels des sous-niveaux Zeeman, et d'obtenir un système en Λ . L'efficacité de ce système, quantifiée par le rapport de branchement R , repose principalement sur les propriétés d'anisotropie du tenseur gyromagnétique γ . Nous avons dans un premier temps cherché l'orientation

du champ magnétique donnant lieu à un rapport de branchement maximal à partir des composantes du tenseur γ déterminées théoriquement. Le rapport de branchement maximal théorique s'élève à $R = 0,24$. Puis, dans un second temps, nous avons déterminé expérimentalement les composantes du tenseur gyromagnétique, grâce à des expériences de spectroscopie par hole-burning. Les valeurs expérimentales de ces composantes sont relativement proches des valeurs calculées, et en particulier, les propriétés d'anisotropie du tenseur sont pour la plupart conservées. Nous avons ensuite déterminé l'orientation optimale du champ magnétique à partir des composantes expérimentales du tenseur γ , et trouvé une borne inférieure pour le rapport de branchement : $R \geq 0,13$.

Puis, à l'aide d'expériences de nutation optique et d'écho de photon, réalisées séparément sur chacune des branches du Λ , nous avons obtenu une mesure directe du rapport de branchement : $R = 0,13 \pm 0,015$, sur un échantillon de $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ plongé dans un champ magnétique optimalement orienté. Cette valeur est cohérente avec la borne inférieure déterminée auparavant, et correspond à un rapport des forces d'oscillateurs des transitions de $\sqrt{R} = 0,36 \pm 0,02$.

Ce rapport de branchement n'est valable que pour 2 des 6 sites cristallographiques de l'yttrium. Par polarisation du faisceau exciteur, on peut éliminer la contribution à l'absorption de 3 sites non favorables. On se retrouve alors avec 3 sites participant à l'absorption, dont deux présentent un rapport de branchement optimal. Il est possible de se débarrasser de la contribution des ions du troisième site (site 1) en les plaçant dans le sous-niveau non résonnant de l'état fondamental, qui présente une durée de vie de plusieurs minutes. Nous avons également mesuré une durée de vie des populations dans les sous-niveaux hyperfins de $4,5 \pm 0,5$ s pour les ions des sites présentant un système en Λ optimal.

Nous avons aussi noté que, contrairement à ce que l'on attendait, l'ion thulium est plus sensible que le praséodyme aux fluctuations du champ magnétiques induites par les ions voisins. Pourtant, le thulium présente des durées de vie de cohérences optiques plutôt longues lorsqu'il est inséré dans une matrice comme le YAG contenant des spins nucléaires [37]. L'action des spins nucléaires voisins sur les ions Tm sera décrite plus en détail dans le chapitre 4.

Enfin, nous avons observé un élargissement inhomogène sur les splittings Zeeman. En comparant les sensibilités au champ magnétique de cet élargissement inhomogène dans les états fondamental et excité, nous avons pu l'attribuer à des inhomogénéités d'orientation relative du champ magnétique appliqué et des sites cristallins. Nous avons aussi montré que l'on pouvait réduire en partie cet élargissement en diminuant les inhomogénéités de champ magnétique.

Chapitre 3

Manipulation optique d'une cohérence de spin : principes et théorie

L'excitation d'une cohérence de spin s'inscrit tout naturellement dans la démarche suivie pendant cette thèse. En effet, l'objectif poursuivi depuis plusieurs années dans le groupe consiste à caractériser complètement l'ion thulium dans la perspective du stockage quantique d'information. Une fois le système en Λ identifié et caractérisé dans le Tm :YAG, il semble naturel d'essayer de convertir dans un premier temps un signal optique classique en un état de superposition de spin nucléaire, et inversement à convertir des états de superposition de spin en signaux optiques.

Dans la première partie de ce chapitre, nous décrivons les premières expériences qui ont permis d'étudier la structure hyperfine d'ions de terre rare dopés dans des cristaux. Dans la deuxième partie, nous présenterons une étude théorique de la manipulation et de la détection optique d'une cohérence de spin dans un système à 3 niveaux en présence d'un élargissement inhomogène optique. Nous décrivons en particulier les différentes étapes des expériences de battements Raman cohérents et d'écho Raman.

3.1 Historique du domaine

Nous allons passer en revue dans cette partie quelques une des différentes techniques qui existent pour étudier et manipuler les sous-niveaux de spin d'un système atomique. Celles-ci sont décrites par exemple par R. M. Macfarlane [24] ou par D. Suter [102]. On peut les séparer en deux catégories : celles qui donnent accès aux populations dans les sous-niveaux de spin, et celles qui permettent de mesurer la cohérence de spin.

3.1.1 Détection des populations dans les sous-niveaux de spin

Les transitoires cohérents en RMN (résonance magnétique nucléaire), sont un moyen très efficace d'étudier les interactions magnétiques dans les solides [3]. Cependant, les dispositifs de RMN ne sont pas assez sensibles pour permettre d'étudier les milieux dilués. En effet, on doit détecter la réponse des atomes par l'intermédiaire des mêmes appareils qui ont servi à produire le champ magnétique oscillant. La détection optique des populations modifiées par les transitoires cohérents rf permet d'améliorer de plusieurs ordres de grandeur la sensibilité de ces expériences, et rend possible l'étude des milieux dilués avec les techniques de résonance magnétique, en particulier les cristaux dopés avec des ions de terre rare .

Résonance magnétique détectée optiquement

Dans la technique de résonance magnétique détectée optiquement (ou ODMR, *optically detected magnetic resonance*), on excite la transition optique d'un système par un faisceau laser continu. Une partie des atomes résonnants avec ce champ excitateur est portée dans le niveau excité. Un champ magnétique radiofréquence est appliqué simultanément. Si le champ rf est résonnant avec l'une des transitions entre deux sous-niveaux magnétiques de l'état fondamental, les populations de ces deux sous-niveaux sont modifiées. On peut visualiser la modification des populations en regardant soit le rayonnement de fluorescence [103], soit l'intensité transmise du faisceau laser excitateur [104], et en faisant varier la fréquence du champ rf. La résonance du champ rf avec une transition entre sous-niveaux de l'état fondamental entraîne une augmentation de la fluorescence, ou une augmentation de l'absorption. Ce phénomène est appelé *hole-filling resonance*. Lorsque les forces de transitions optiques sont très déséquilibrées, il est possible de voir une modification de l'absorption du matériau lorsque le champ rf est résonnant avec des transitions de l'état excité. Dans ce cas, l'efficacité du pompage optique dû au laser de gravure est augmentée, et le trou gravé par le laser est creusé davantage [105]. Ce phénomène est appelé *hole-burning resonance*.

L'ODMR présente plusieurs avantages importants par rapport à la spectroscopie de

hole-burning (SHB), pour la mesure de la structure hyperfine. Dans l'ODMR, la structure hyperfine des niveaux électroniques peut être mesurée avec une résolution donnée par la largeur inhomogène des transitions hyperfines, et pas par la largeur spectrale du laser comme dans la SHB. De plus, les écarts entre niveaux hyperfins sont obtenus directement par résonance rf et ne sont pas masqués par les trous et antitrous issus des combinaisons de sommes et des différences de splittings. Pour des structures complexes, comme par exemple celle de l'euporium [62], cela représente un avantage majeur.

Le champ rf peut aussi être appliqué sous forme d'impulsions de façon à mettre en œuvre des transitoires cohérents, comme par exemple les oscillations de Rabi, le rayonnement de précession libre (FID), ou l'écho de spin. C'est ce que l'on appelle la *double résonance optique-rf*. Dans le cas des oscillations de Rabi, l'intensité transmise d'un faisceau sonde renseigne sur la répartition des populations atomiques dans le système. Dans le cas du FID ou de l'écho de spin, la réponse du système est contenue dans les cohérences de spin. Ces cohérences doivent être transformées en populations grâce à une impulsion laser d'aire $\pi/2$, afin de pouvoir être lues [106]. La détection de la transmission d'un faisceau sonde permet alors de mesurer la largeur inhomogène (dans le cas du FID) ou la largeur homogène (dans le cas des échos de spin) de la transition hyperfine étudiée [104].

Des expériences de résonance magnétique détectée optiquement et de double résonance optique-rf ont permis de mesurer la structure hyperfine ou les taux de décohérence dans les sous-niveaux hyperfins de l'euporium [107, 62, 108] et du praséodyme [103, 104, 105, 25, 109, 84, 110] dans diverses matrices cristallines.

3.1.2 Détection d'une cohérence de spin

Détection Raman hétérodyne de la résonance magnétique nucléaire

La résonance magnétique détectée optiquement et la double résonance optique-rf donnent accès aux populations atomiques dans les sous-niveaux hyperfins d'un état électronique, après une séquence d'excitation de la transition hyperfine par des impulsions radio-fréquence. Contrairement à ces deux types d'expérience, la technique dite *Raman hétérodyne* [111, 112] permet de mesurer les *cohérences* créées dans les sous-niveaux hyperfins après excitation par un champ radiofréquence. Cette détection est effectuée par diffusion Raman cohérente (ou *coherent Raman scattering*) [113].

Soient $|a\rangle$ et $|c\rangle$ deux sous-niveaux de spin, séparés par la fréquence Δ_g , dans lesquels un processus transitoire cohérent a été réalisé à l'aide d'impulsions radiofréquence. On cherche à convertir la cohérence hyperfine ρ_{ac} en cohérence optique. Soit $|b\rangle$ un troisième niveau appartenant à un état électronique différent, relié par des transitions optiques aux deux niveaux $|a\rangle$ et $|c\rangle$. Ce troisième niveau peut avoir indifféremment une énergie supérieure ou inférieure à $|a\rangle$ et $|c\rangle$. Les trois niveaux forment alors un système en Λ ou en

V. La détection de la cohérence ρ_{ac} par diffusion Raman cohérente consiste à exciter par exemple la transition $|a\rangle \rightarrow |b\rangle$ avec un laser à la fréquence ν_0 , pas nécessairement à résonance. Ceci a pour effet de convertir une partie de la cohérence de spin ρ_{ac} (aussi appelée cohérence Raman) en cohérence optique selon la transition $|c\rangle \rightarrow |b\rangle$. Comme l'illustre la figure 3.1(a), la cohérence optique ainsi créée donne lieu à l'émission d'un champ Stokes à la fréquence $\nu_0 - \Delta_g$. Lorsque la cohérence de spin est créée par impulsions radiofréquence, le champ Stokes se propage dans la même direction que le champ excitateur. Un détecteur placé sur le trajet du faisceau permet de visualiser le signal de battement entre le champ Stokes à $\nu_0 - \Delta_g$ et le champ excitateur à ν_0 . Le champ excitateur permet donc également la détection hétérodyne du champ Stokes. Le signal de battement observé est proportionnel à la cohérence de spin ρ_{ac} . Le faisceau de détection peut aussi exciter la transition $|c\rangle \rightarrow |b\rangle$ et donner lieu à une émission dite anti-Stokes à la fréquence $\nu_0 + \Delta_g$, le long de la transition $|a\rangle \rightarrow |b\rangle$, comme indiqué sur la figure 3.1(b). La fréquence du signal de battement du champ Stokes ou anti-Stokes avec le champ de détection est égale à Δ_g , quelle que soit la fréquence du champ de détection. C'est pourquoi la détection d'une cohérence de spin par diffusion Raman cohérente est très peu sensible aux instabilités de fréquence du laser produisant le faisceau excitateur. Par exemple, Mlynek *et al.* ont mesuré les profils des transitions entre niveaux hyperfins du Pr :LaF₃ avec une précision de l'ordre du kHz, à l'aide d'un laser présentant une largeur spectrale de 4 MHz [111].

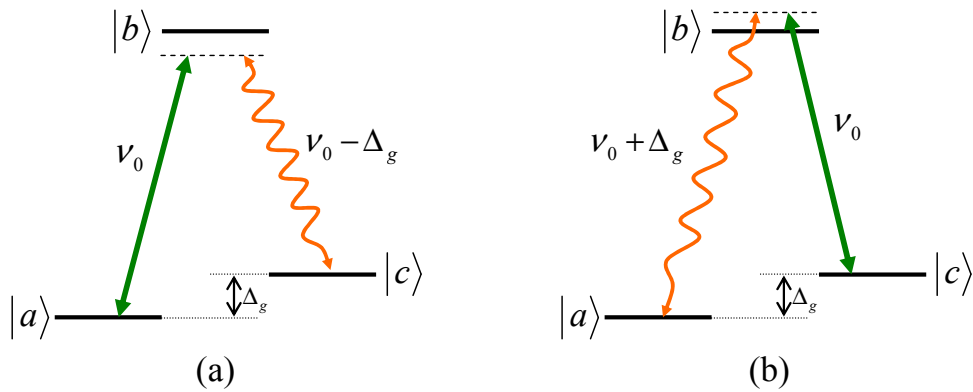


FIG. 3.1 – Diffusion Raman cohérente dans un système en Λ , permettant la détection optique de la cohérence hyperfine entre les sous-niveaux $|a\rangle$ et $|c\rangle$. Les flèches droites représentent l'excitation laser à ν_0 , et les flèches ondulées représentent le champ Stokes (a) ou anti-Stokes (b) émis respectivement à la fréquence $\nu_0 - \Delta_g$ et $\nu_0 + \Delta_g$, issus de la cohérence hyperfine.

Depuis 25 ans, la technique Raman hétérodyne est utilisée pour détecter des cohérences hyperfines des cristaux dopés europium [114, 115], ainsi que dans des cristaux dopés praséodyme [111, 116, 117]. Des processus transitoires cohérents tels que la nutation, la

précession libre ou les échos de spin ont été mis en œuvre et détectés par la technique Raman hétérodyne dans des cristaux dopés praséodyme [118, 119, 120], ou dopés europium [121].

Battements Raman cohérents

Plutôt que d'utiliser des champs radiofréquences, il est également possible de manipuler la cohérence de spin avec des impulsions optiques.

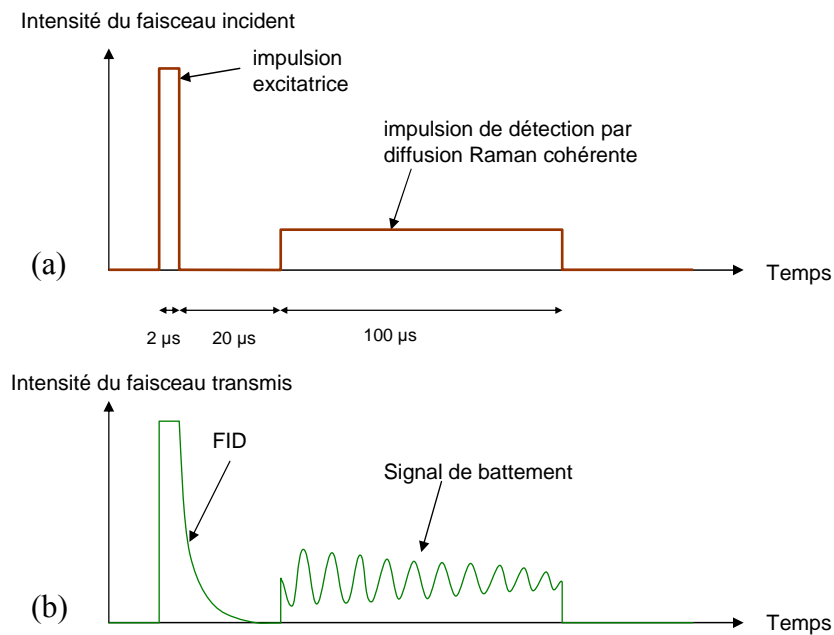


FIG. 3.2 – (a) Exemple de séquence d'impulsions utilisée pour l'observation de battements Raman cohérents avec impulsion excitatrice courte et monochromatique. (b) Intensité du faisceau transmis. FID désigne le rayonnement de précession libre émis par les atomes dans lesquels une cohérence optique a été créée.

Nous décrivons d'abord l'expérience de battements Raman cohérents (*Coherent Raman Beats*, parfois appelée *quantum-beat free induction decay*), schématisée dans la figure 3.2. Une impulsion laser monochromatique quasiment résonnante est envoyée sur un système en V ou en Λ , dont les transitions optiques sont permises et ne sont pas sélectives en polarisation. Si l'impulsion est suffisamment courte pour que sa largeur spectrale soit supérieure à l'écart en fréquence des deux transitions optiques, les cohérences optiques peuvent être excitées selon les deux transitions, qui ont un niveau en commun [voir la figure 3.3(a)]. Le système est ainsi placé dans un état de superposition entre ses 3 niveaux. Ainsi, en plus d'exciter les cohérences optiques, l'excitation simultanée des deux transitions optiques crée une cohérence entre les sous-niveaux de spin, malgré l'absence de

dipôle de transition entre ces niveaux. La cohérence de spin ainsi créée est ensuite détectée par diffusion Raman cohérente. Un atout de cette méthode est qu'elle ne nécessite pas de connaître préalablement les fréquences de transition entre les sous-niveaux hyperfins. Elle permet en outre d'exciter d'un seul coup toutes les transitions hyperfines dont la fréquence est couverte par le spectre de l'impulsion.

Cette méthode d'excitation percussive ne peut cependant pas fonctionner pour des splittings plus grands que quelques MHz. En effet, plus les splittings sont grands, plus les impulsions utilisées doivent être courtes et intenses. Or l'intensité d'un faisceau laser ne peut être augmentée indéfiniment. Ce problème peut être surmonté par l'utilisation d'une impulsion bichromatique, représentée dans la figure 3.3(b), suffisamment longue cette fois pour que ses deux fréquences soient bien séparées spectralement. Ce type d'impulsion peut être obtenu à partir d'une seule source laser, par l'utilisation d'un modulateur acousto-optique ou électro-optique, selon la différence de fréquence voulue. Les fréquences ν_1 et ν_2 de l'impulsion sont choisies pour que la condition de résonance à deux photons soit vérifiée, c'est-à-dire que $\nu_1 - \nu_2$ soit égale à l'écart en fréquence entre les deux sous-niveaux de spin. Une telle impulsion excite les deux cohérences optiques sur les branches du Λ ou du V , et excite donc également la cohérence de spin. On peut ainsi exciter une par une les transitions hyperfines, sans être limité par la puissance de la source laser. Cependant, il est nécessaire de connaître au moins approximativement l'écart en fréquence des sous-niveaux hyperfins pour que l'excitation des cohérences hyperfines soit efficace.

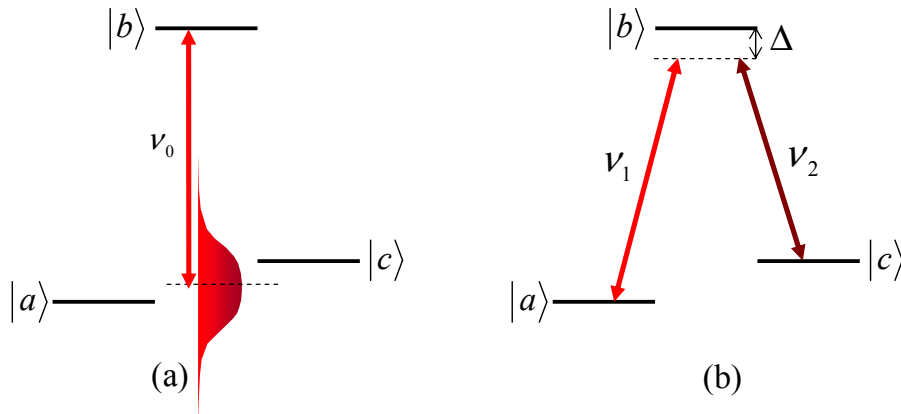


FIG. 3.3 – Création d'une cohérence de spin entre les sous-niveaux $|a\rangle$ et $|c\rangle$ par excitation optique, dans un système en Λ . (a) impulsion courte. On a représenté en rouge le profil spectral de l'impulsion ; (b) impulsion bichromatique, portant les fréquences ν_1 et ν_2 , telles que la condition de résonance à deux photons ($\nu_1 - \nu_2 = \Delta_g$) soit vérifiée.

L'excitation résonnante d'une transition de spin par un champ radiofréquence permet d'exciter la cohérence dans tous les atomes indépendamment de leur position dans le

spectre d'absorption optique, et de leur position spatiale dans l'échantillon. L'excitation optique d'une transition de spin est, en revanche, plus sélective, aussi bien spectralement que spatialement, même si elle vérifie la condition de résonance à deux photons. Comme nous le verrons dans la partie 3.2, l'amplitude de la cohérence de spin est en effet sensible au désaccord du champ optique par rapport aux transitions atomiques. Nous montrerons aussi qu'elle est sensible à l'amplitude du champ excitateur. Celle-ci varie selon la position des atomes par rapport à l'axe de propagation du faisceau, et par rapport au plan de focalisation.¹

L'excitation optique d'une cohérence de spin est donc moins efficace spectralement et spatialement que l'excitation directe par champ radiofréquence, mais elle offre des facilités de mise en œuvre expérimentale. En effet, d'une part elle ne nécessite pas de source de champ radiofréquence, et d'autre part la cohérence peut être créée entre les sous-niveaux de spin même si les populations atomiques sont initialement égales dans ces niveaux, contrairement à l'excitation par des impulsions rf. De plus, comme dans les expériences de Raman hétérodyne, la cohérence de spin est détectée par diffusion Raman cohérente, c'est pourquoi les battements Raman cohérents permettent de résoudre la structure hyperfine des niveaux électroniques avec une résolution bien meilleure que la largeur spectrale du laser [24].

La première observation des battements Raman cohérents dans un cristal dopé aux ions de terre rare remonte à 1983 [25]. Shelby *et al.* ont excité les cohérences hyperfines de $\text{Pr}^{3+}:\text{YAG}$, à l'aide d'une l'impulsion excitatrice de 300 ns, et résolu la structure hyperfine à 3 niveaux de l'état excité avec une résolution de 50 kHz, malgré une largeur laser de 2 MHz. En 1995, Blasberg *et al.* ont observé les battements Raman cohérent dans l'état excité et l'état fondamental de $\text{Pr}^{3+}:\text{YAlO}_3$, grâce à une excitation bichromatique des cohérences de spin, générée grâce à des modulateurs acousto-optiques [122]. Ils ont ainsi pu exciter et détecter une cohérence de spin à la fréquence 21 MHz.

Lorsque la transition hyperfine est affectée d'un élargissement inhomogène Γ_{inh} , les cohérences de spin, initialement en phase, se déphasent les unes par rapport aux autres après l'impulsion excitatrice. Le signal de battement obtenu par diffusion Raman cohérente décroît donc en une durée caractéristique de $1/\Gamma_{inh}$, même si la durée de vie des cohérences de spin peut être bien supérieure. Pour accéder optiquement à la durée de vie des cohérences de spin, il est nécessaire de compenser l'éventuel élargissement inhomogène sur la transition de spin par des échos Raman.

¹Si on considère un faisceau gaussien focalisé dans l'échantillon sur un rayon w_0 , l'amplitude du champ est quasiment uniforme dans un cylindre de rayon w_0 et de longueur $2z_R$, dont l'axe coïncide avec la direction de propagation du faisceau. $z_R = \pi w_0^2/\lambda$ est la longueur de Rayleigh. Par exemple, si $w_0 = 55 \mu\text{m}$, l'excitation est uniforme dans un volume $V = \pi w_0^2 \times 2z_R = 0,46 \text{ mm}^3$, à comparer au volume de l'échantillon qui peut être de l'ordre de plusieurs dizaines de mm^3 .

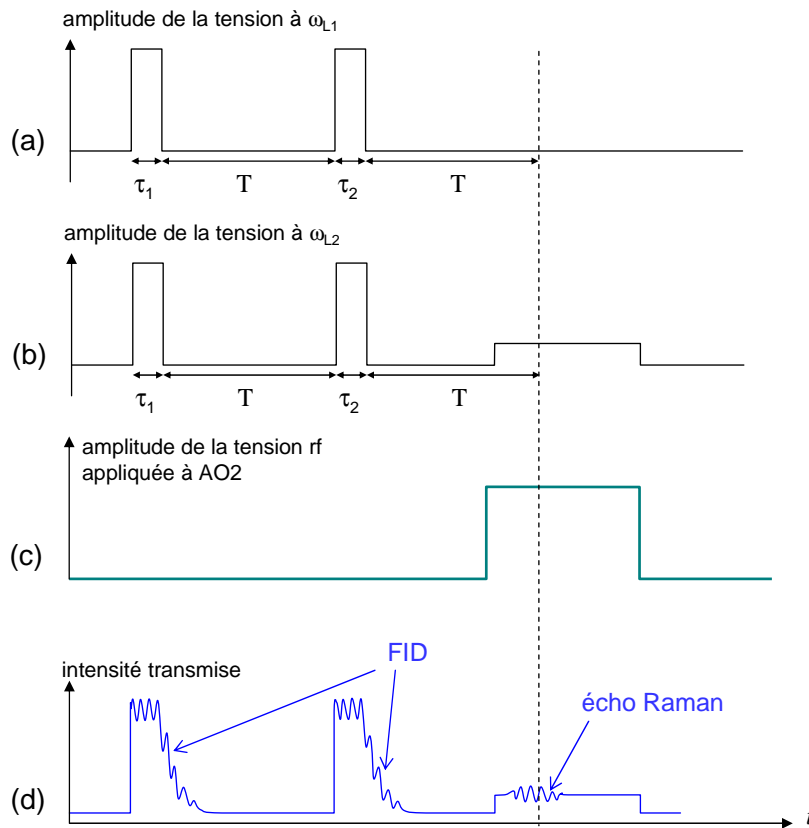


FIG. 3.4 – Chronogramme d'une expérience d'écho Raman. (a) Amplitude de la tension de commande à la fréquence ω_{L1} ; (b) Amplitude de la tension de commande à la fréquence ω_{L2} ; (c) Amplitude de la tension appliquée au modulateur acousto-optique placé devant le détecteur : ce modulateur est ouvert pendant l'impulsion permettant la détection, et fermé ailleurs ; (d) Intensité transmise à travers le cristal. FID : rayonnement de précession libre des cohérences optiques.

Echo Raman

L'expérience d'écho Raman est très proche des battements Raman cohérents que nous venons de décrire. Elle consiste à intercaler une impulsion supplémentaire entre la première impulsion qui excite les cohérences Raman et l'impulsion qui permet leur détection. De même que la première impulsion, cette impulsion supplémentaire est bichromatique. On note τ_1 la durée de la première impulsion, et τ_2 la durée de la seconde. Dans un premier temps, nous considérerons que ces deux impulsions sont composées des mêmes fréquences optiques ω_{L1} et ω_{L2} . La différence entre ces deux fréquences est égale à Δ_g , l'écart en fréquence entre les sous-niveaux de l'état fondamental, afin que soit vérifiée la condition de résonance à deux photons. Lorsque la transition de spin est affectée d'un élargissement inhomogène, cet écart Δ_g varie selon les atomes. On appellera donc "résonance à deux

photons" la situation où la fréquence $\omega_{L1} - \omega_{L2}$ est égale à l'écart en fréquence moyen $\langle \Delta_g \rangle$. Comme dans les expériences de battements Raman cohérents, la détection est effectuée à l'aide d'une impulsion rectangulaire de fréquence ω_{L2} . On a représenté en figure 3.4 le chronogramme de l'expérience d'écho Raman. Il est assez similaire au chronogramme d'écho de photon présenté dans la figure 2.17.

La première impulsion crée à la fois des cohérences optiques et des cohérences Raman dans l'échantillon. On laisse évoluer ces cohérences pendant une durée T . Elles se déphasent alors les unes par rapport aux autres, selon leur position dans le profil inhomogène optique ou Raman. Les cohérences optiques, en se déphasant, donnent lieu à l'émission d'un rayonnement de précession libre (*free induction decay*, ou FID) aux deux fréquences excitatrices. C'est pourquoi le rayonnement de précession libre optique apparaît sur la figure 3.4(d) comme un battement. La seconde impulsion permet d'inverser le sens d'évolution des cohérences Raman. Ainsi, au bout du second temps d'évolution libre T , ces cohérences sont de nouveau en phase. Elles sont alors converties en cohérences optiques par diffusion Raman cohérente. Dans une telle expérience, l'élargissement inhomogène Raman ne constitue plus un obstacle, puisqu'il peut être entièrement compensé.

De même que les échos de photon permettent de mesurer la durée de vie des cohérences optiques en présence d'un élargissement inhomogène, les échos Raman permettent de mesurer à l'aide d'impulsions optiques la durée de vie des cohérences de spin, malgré l'élargissement inhomogène de la transition hyperfine. L'écho Raman a été introduit théoriquement en 1968 par S. R. Hartmann [123], et démontré pour la première fois dans un cristal dopé terre rare (Pr :YSO) par Ham *et al.* [27, 82]. Des expériences d'écho Raman ont aussi été réalisées dans des cristaux dopés europium [28].

3.2 Analyse théorique

3.2.1 Motivation

Les processus de battements Raman cohérents et d'écho Raman permettent d'exciter des cohérences Raman et de les détecter par des moyens optiques. Or, comme nous l'avons déjà mentionné, l'excitation optique d'une cohérence de spin est peu efficace spatialement puisqu'elle est confinée aux atomes proches de l'axe de propagation du faisceau excitateur. Cette excitation est également sensible au désaccord entre les composantes fréquentielles de l'impulsion excitatrice et les fréquences des transitions optiques. C'est pourquoi elle est spectralement sélective en présence d'élargissement inhomogène optique.

Dans l'ensemble des analyses théoriques publiées sur les échos Raman, l'élargissement inhomogène optique semble avoir été toujours négligé. Dans les références [124, 125], l'excitation bichromatique d'une cohérence est décrite dans la limite d'impact (ou de

hard pulses), c'est-à-dire que l'effet de l'élargissement inhomogène optique est négligé pendant la durée de l'impulsion excitatrice. Cette hypothèse peut être valable dans le cas des cristaux dopés Pr ou Eu [27, 121], où la présence de trois sous-niveaux dans l'état fondamental conduit nécessairement à travailler sur un groupe spectral étroit. Les ions sont en effet rapidement pompés par les deux champs excitateurs du système en Λ vers le troisième sous-niveau. Un laser de repompage, maintenu à fréquence fixe, ramène à résonance un groupe d'ions dont la largeur est fixée par la largeur de raie laser, tandis que les ions de fréquence différente restent dans le troisième sous-niveau et ne participent pas au signal d'écho Raman. En revanche, l'hypothèse de limite d'impact n'est pas valable dans le cas des cristaux dopés aux ions thulium. En effet, l'absence d'un troisième sous-niveau dans l'état fondamental empêche ce pompage optique, et on doit alors tenir compte de l'ensemble des atomes du profil inhomogène optique.

Par ailleurs, il est communément admis que la condition de résonance à deux photons est suffisante pour exciter efficacement la cohérence Raman, et que la stabilité du laser n'est pas critique tant que la différence de fréquence des deux champs excitateurs est parfaitement stable. L'un des objectifs de ce calcul est de déterminer le rôle du désaccord à la résonance à un photon, et de préciser la condition de stabilité du laser dans ces conditions.

Nous allons présenter dans cette partie une étude théorique des différentes étapes de la manipulation et de la détection optique d'une cohérence de spin présentes dans les expériences de battements Raman cohérents et d'écho Raman. Nous restreindrons cette étude à un système à 3 niveaux en V ou en Λ . Avant d'étudier la formation de la cohérence de spin, nous examinerons le mécanisme de sa détection par diffusion Raman cohérente, qui est une étape commune aux expériences de battements Raman et d'écho Raman. Nous montrerons que ce processus est très proche du mécanisme élémentaire d'absorption. Nous décrirons ensuite l'excitation d'une cohérence de spin par une impulsion monochromatique. Nous étudierons également l'excitation d'une cohérence de spin par une impulsion bichromatique. Nous nous intéresserons à la distribution spectrale des cohérences Raman créées optiquement par une impulsion bichromatique, selon l'état initial du système. Enfin, nous étudierons le phénomène d'inversion de phase qui a lieu lors de la seconde impulsion bichromatique de la séquence d'écho Raman. Nous étudierons la sensibilité à l'écart à la résonance optique, ainsi que les aires d'impulsions optimales de ces différentes étapes.

3.2.2 Absorption linéaire et diffusion Raman cohérente

Nous allons décrire ici le mécanisme de diffusion Raman cohérente, qui est utilisé pour la détection optique des cohérences de spin dans les expériences de battements Raman et

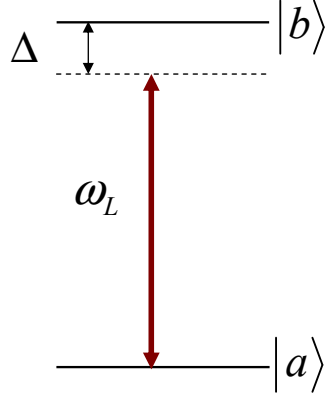


FIG. 3.5 – Système à deux niveaux excité par un champ monochromatique.

d'échos Raman. Nous allons tenter d'établir les similitudes et différences entre ce processus et le processus d'absorption d'un champ sonde faible par un ensemble d'atomes à deux niveaux.

Absorption linéaire dans un système à deux niveaux

Soit un système à deux niveaux $|a\rangle$ et $|b\rangle$ reliés par une transition optique de fréquence ω_{ab} , représenté sur la figure 3.5. Ce système est éclairé par une onde monochromatique de fréquence ω_L et d'amplitude \mathcal{E} . $\Delta = \omega_b - \omega_a - \omega_L$ désigne le désaccord de l'onde excitatrice par rapport à la fréquence de la transition atomique. La pulsation de Rabi de l'excitation est supposée réelle et est notée $\Omega' = \mu_{ab}\mathcal{E}/\hbar$, où μ_{ab} est le moment dipolaire de la transition $|a\rangle \rightarrow |b\rangle$. L'état du système à tout instant t est décrit par la fonction $|\psi\rangle = a(t)|a\rangle + b(t)|b\rangle$. On définit un nouveau système de coordonnées :

$$\begin{aligned} a(t) &= \underline{a}(t)e^{-i\omega_a t} \\ b(t) &= \underline{b}(t)e^{-i\omega_b t}e^{i\Delta t} \end{aligned} \quad (3.1)$$

En l'absence de relaxation, l'évolution du système en présence d'une excitation monochromatique est décrite par l'équation de Schrödinger :

$$\begin{aligned} \dot{\underline{a}}(t) &= i\frac{\Omega'}{2}\underline{b}(t) \\ \dot{\underline{b}}(t) &= i\frac{\Omega'}{2}\underline{a}(t) - i\Delta\underline{b}(t) \end{aligned} \quad (3.2)$$

On définit la cohérence optique $\rho_{ab}(t) = a^*(t)b(t) = \underline{a}^*(t)\underline{b}(t)e^{-i\omega_L t} = \underline{\rho}_{ab}(t)e^{-i\omega_L t}$, et la différence de population $n_{ab}(t) = \underline{b}(t)\underline{b}^*(t) - \underline{a}(t)\underline{a}^*(t)$. A partir de l'équation 3.2, on peut obtenir l'équation d'évolution de la cohérence optique :

$$\dot{\underline{\rho}}_{ab}(t, \Delta) = -i\Delta\underline{\rho}_{ab}(t, \Delta) - \frac{i}{2}\Omega'n_{ab}(\Delta) \quad (3.3)$$

Cette équation peut s'écrire sous forme intégrale :

$$\underline{\rho}_{ab}(t, \Delta) = \underline{\rho}_{ab}(t_0, \Delta)e^{-i\Delta(t-t_0)} - \frac{i}{2} \int_{t_0}^t dt' \Omega' n_{ab}(t, \Delta) e^{-i\Delta(t-t')} \quad (3.4)$$

On branche le laser à l'instant t_0 , et on suppose que la cohérence optique est nulle à cet instant, quel que soit Δ . On fait également l'hypothèse que la fréquence de Rabi du champ sonde est petite devant le désaccord optique Δ . Alors, à l'ordre le plus bas de perturbation, la différence de population n_{ab} ne dépend pas du temps.

$$\rho_{ab}(t, \Delta)e^{i\omega_L t} = -\frac{i}{2} \int_{t_0}^t dt' \Omega' n_{ab}(t_0, \Delta) e^{-i\Delta(t-t')} \quad (3.5)$$

On considère maintenant un grand nombre d'atomes à deux niveaux excités par le champ sonde à la fréquence ω_L . Ces atomes ont des fréquences de transitions réparties selon une distribution $G(\Delta)$. La densité de polarisation macroscopique est donnée par : $\mathcal{P}(t) = \mu_{ab} \int d\Delta G(\Delta)(\rho_{ab} + \rho_{ba})$.

$$\mathcal{P}(t) = -\frac{i}{2} \frac{\mu_{ab}^2 \mathcal{E}}{\hbar} e^{-i\omega_L t} \int d\Delta G(\Delta) n_{ab}(t_0, \Delta) \underbrace{\int_{t_0}^t dt' e^{-i\Delta(t-t')}}_{+c.c.} \quad (3.6)$$

L'intégrale soulignée peut être modifiée par le changement de variable $\tau = t - t'$:

$$\int_{t_0}^t dt' e^{-i\Delta(t-t')} = \int_0^{t-t_0} d\tau e^{-i\Delta\tau} \quad (3.7)$$

On suppose que la mesure est effectuée longtemps après le début de l'impulsion sonde : $t - t_0 \rightarrow \infty$. Alors $\int_0^{t-t_0} d\tau e^{-i\Delta\tau} \rightarrow \pi\delta(\Delta) - vp \frac{i}{\Delta}$. δ désigne la fonction de Dirac, et vp représente la valeur principale de Cauchy. L'amplitude du champ réponse est donc

$$E = \frac{kL}{4\epsilon_0} \frac{\mu_{ab}^2 \mathcal{E}}{\hbar} \int d\Delta G(\Delta) n_{ab}(t_0, \Delta) \left(\pi\delta(\Delta) - vp \frac{i}{\Delta} \right) \quad (3.8)$$

Le champ réponse comporte donc deux composantes très différentes : d'une part, une composante résonnante, en phase avec le champ exciteur \mathcal{E} , et d'autre part, une composante dispersive (en $1/\Delta$), en quadrature avec le champ exciteur. La composante dispersive est liée à la causalité.

Le champ sonde incident et le champ réponse sont émis à la même fréquence ω_L . L'intensité totale détectée en transmission s'écrit $\mathcal{I} = |\mathcal{E}e^{-i\omega_L t} + Ee^{-i\omega_L t}|^2 = |\mathcal{E} + E|^2$. L'échantillon est supposé optiquement mince, donc $|\mathcal{E}|^2 \gg E^2$. On obtient alors, en supposant que \mathcal{E} est réel :

$$\mathcal{I} \approx \mathcal{E}^2 + \mathcal{E}(E + E^*) = \mathcal{E}^2 + 2\mathcal{E}Re(E) \quad (3.9)$$

Ainsi, seule la partie réelle du champ réponse (c'est-à-dire en phase avec le champ incident) contribue au signal. Cette partie réelle est strictement résonnante avec le champ

excitateur. La partie dispersive du champ résonne, en quadrature de phase avec le champ excitateur, n'intervient pas dans l'expression de l'intensité transmise. Une expérience d'absorption linéaire ne permet de mesurer la différence de population n_{ab} que dans les atomes *strictement résonnants* ($\Delta = 0$) avec le champ sonde.

Si l'on tient compte de la largeur homogène γ_{ab} de la transition optique, alors on peut montrer que les atomes qui participent au signal sont résonnants avec le champ sonde à γ_{ab} près ($\Delta \leq \gamma_{ab}$).

Détection d'une cohérence de spin par un champ faible

On considère maintenant un ensemble de systèmes à 3 niveaux en Λ $|a\rangle$, $|b\rangle$, et $|c\rangle$. On suppose que les atomes sont placés dans un état de superposition des niveaux $|a\rangle$ et $|c\rangle$, décrit par la cohérence Raman $\rho_{ac}(t, \Delta)$. On néglige la relaxation des cohérences et des populations. On néglige également l'élargissement inhomogène sur la transition Raman $|a\rangle \rightarrow |c\rangle$. On applique à l'instant t_0 un champ de lecture de fréquence ω_L et d'amplitude \mathcal{E} , supposée réelle. On suppose que ce champ n'excite que la transition $|c\rangle \rightarrow |b\rangle$, avec le désaccord $\Delta = \omega_b - \omega_c - \omega_L$. La pulsation de Rabi correspondante est $\Omega'_2 = \mu_{cb}\mathcal{E}/\hbar$. L'état $|a\rangle$ n'est pas couplé au champ excitateur.

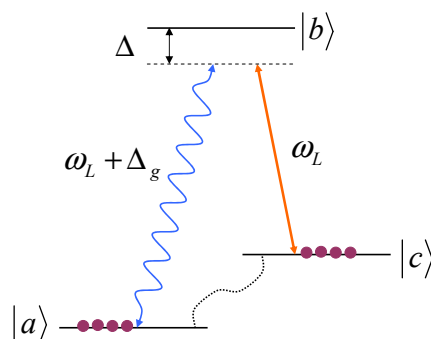


FIG. 3.6 – Diffusion Raman cohérente dans un système en Λ . Le système est excité selon la transition $|b\rangle \rightarrow |c\rangle$ à la fréquence ω_L , ce qui convertit la cohérence Raman (représentée par le zigzag pointillé) en une cohérence optique selon la transition $|a\rangle \rightarrow |b\rangle$ et donne lieu à l'émission d'un champ anti-Stokes.

L'état du système à tout instant t est décrit par la fonction $|\psi\rangle = a(t)|a\rangle + b(t)|b\rangle + c(t)|c\rangle$. On définit le système de coordonnées :

$$\begin{aligned} a(t) &= \underline{a}(t)e^{-i\omega_a t} \\ b(t) &= \underline{b}(t)e^{-i\omega_b t}e^{i\Delta t} \\ c(t) &= \underline{c}(t)e^{-i\omega_c t} \end{aligned} \quad (3.10)$$

En l'absence de relaxation, l'évolution du système est décrite par l'équation de Schrödinger :

$$\begin{aligned}\dot{\underline{a}}(t) &= 0 \\ \dot{\underline{b}}(t) &= -i\Delta\underline{b}(t) + i\frac{\Omega'_2}{2}\underline{c}(t) \\ \dot{\underline{c}}(t) &= i\frac{\Omega'_2}{2}\underline{b}(t)\end{aligned}\quad (3.11)$$

On s'intéresse à l'équation d'évolution de la cohérence optique $\rho_{ab}(t) = a^*(t)b(t) = \underline{a}^*(t)\underline{b}(t)e^{-i(\omega_L+\Delta_g)t} = \underline{\rho}_{ab}(t)e^{-i(\omega_L+\Delta_g)t}$, avec $\Delta_g = \omega_c - \omega_a$. D'après le système d'équations précédent, on a :

$$\dot{\underline{\rho}}_{ab}(t) = -i\Delta\underline{\rho}_{ab}(t) + \frac{i}{2}\Omega'_2\underline{\rho}_{ac}(t) \quad (3.12)$$

où $\underline{\rho}_{ac}(t) = a^*(t)c(t)e^{-i\Delta_g t} = \rho_{ac}(t)e^{-i\Delta_g t}$. Cette équation peut s'écrire sous forme intégrale :

$$\underline{\rho}_{ab}(t, \Delta) = \underline{\rho}_{ab}(t_0, \Delta)e^{-i\Delta(t-t_0)} + \frac{i}{2} \int_{t_0}^t dt' \Omega'_2 \rho_{ac}(t', \Delta) e^{-i\Delta_g t'} e^{-i\Delta(t-t')} \quad (3.13)$$

Ainsi, si le système est initialement dans un état de superposition de $|a\rangle$ et $|c\rangle$, alors une cohérence optique est créée selon la transition $|a\rangle \rightarrow |b\rangle$, comme nous l'avons illustré dans la figure 3.6. Cette cohérence donne lieu à l'émission d'un champ de réponse du système à la fréquence $\omega_L + \Delta_g$.

Dans l'hypothèse du régime linéaire, c'est-à-dire où le champ de lecture est peu intense ($\Omega'_2 \ll \Delta$), $\rho_{ac}(t', \Delta)e^{-i\Delta_g t'}$ est constant à l'ordre le plus bas de perturbation : $\rho_{ac}(t', \Delta)e^{-i\Delta_g t'} = \rho_{ac}(t_0, \Delta)e^{-i\Delta_g t_0}$. Le changement de variable $\tau = t - t'$ permet d'obtenir l'expression :

$$\underline{\rho}_{ab}(t, \Delta) = \underline{\rho}_{ab}(t_0, \Delta)e^{-i\Delta(t-t_0)} + \frac{i}{2}\Omega'_2\rho_{ac}(t_0, \Delta)e^{-i\Delta_g t_0} \int_0^{t-t_0} d\tau e^{-i\Delta\tau} \quad (3.14)$$

Comme dans l'analyse de l'absorption linéaire, on fait l'hypothèse que la mesure est effectuée longtemps après le début de l'impulsion de lecture, c'est-à-dire quand $t - t_0 \rightarrow \infty$. Alors $\int_0^{t-t_0} d\tau e^{-i\Delta\tau} \rightarrow \pi\delta(\Delta) - vp\frac{i}{\Delta}$, où vp représente la valeur principale. On suppose également que, quel que soit Δ , la cohérence optique ρ_{ab} est nulle à l'instant t_0 . La cohérence optique s'écrit finalement :

$$\rho_{ab}(t, \Delta)e^{i(\omega_L+\Delta_g)t} = \frac{i}{2}\Omega'_2\rho_{ac}(t_0, \Delta)e^{-i\Delta_g t_0}(\pi\delta(\Delta) - vp\frac{i}{\Delta}) \quad (3.15)$$

Dans la limite d'un champ de détection peu intense, la réponse du système est donc indépendante du temps : elle conserve une amplitude constante tant que le champ sonde est appliqué.

L'amplitude du champ réponse anti-Stokes provenant de la cohérence optique ρ_{ab} , émis à la fréquence $\omega_L + \Delta_g$, s'écrit :

$$E_{AS}(t) = -\frac{kL}{4\epsilon_0} \frac{\mu_{ab}\mu_{cb}\mathcal{E}}{\hbar} e^{-i\Delta_g t_0} \int d\Delta G(\Delta) \rho_{ac}(t_0, \Delta) \left(\pi\delta(\Delta) - vp \frac{i}{\Delta} \right) \quad (3.16)$$

Cette expression est très similaire à l'équation (3.8) obtenue dans le calcul de l'absorption linéaire d'un champ sonde par un ensemble d'atomes à deux niveaux. La cohérence Raman $\rho_{ac}(t_0, \Delta)$ remplace la différence de population $n_{ab}(\Delta)$. On distingue ici aussi deux termes, un terme résonnant en $\delta(\Delta)$ et un terme dispersif en $1/\Delta$.

En réalité le champ de lecture peut exciter les deux transitions optiques du Λ , pour donner naissance à un champ Stokes selon la transition $|c\rangle \rightarrow |b\rangle$, et un champ anti-Stokes selon la transition $|a\rangle \rightarrow |b\rangle$. On peut effectuer un calcul similaire et exprimer la cohérence optique ρ_{cb} à l'instant t :

$$\rho_{cb}(t, \Delta) e^{i(\omega_L - \Delta_g)t} = \frac{i}{2} \Omega'_1 \rho_{ca}(t_0, \Delta) e^{i\Delta_g t_0} \left(\pi\delta(\Delta') - vp \frac{i}{\Delta'} \right) \quad (3.17)$$

On note Ω'_1 la pulsation de Rabi du champ de lecture sur la transition $|a\rangle \rightarrow |b\rangle$. Le désaccord optique du champ de lecture par rapport à la transition $|c\rangle \rightarrow |b\rangle$ est $\Delta' = \Delta + \Delta_g$. On obtient enfin l'amplitude du champ réponse Stokes, émis à la fréquence $\omega_L - \Delta_g$:

$$E_S(t) = -\frac{kL}{4\epsilon_0} \frac{\mu_{cb}\mu_{ab}\mathcal{E}}{\hbar} e^{i\Delta_g t_0} \int d\Delta G(\Delta) \rho_{ca}(t_0, \Delta) \left(\pi\delta(\Delta + \Delta_g) - vp \frac{i}{\Delta + \Delta_g} \right) \quad (3.18)$$

Le champ réponse total émis par l'ensemble d'atomes, en tenant compte du champ Stokes et du champ anti-Stokes, s'écrit :

$$\mathfrak{E}(t) = E_{AS} e^{i(\omega_L + \Delta_g)t} + E_S e^{i(\omega_L - \Delta_g)t} = -e^{i\omega_L t} K \mathcal{E} (C_{AS} e^{i\Delta_g t} + C_S e^{-i\Delta_g t}) \quad (3.19)$$

en posant :

$$K = \frac{kL}{4\epsilon_0} \frac{\mu_{cb}\mu_{ab}}{\hbar} \quad (3.20)$$

$$C_{AS} = e^{-i\Delta_g t_0} \int d\Delta G(\Delta) \rho_{ac}(t_0, \Delta) \left(\pi\delta(\Delta) - vp \frac{i}{\Delta} \right) \quad (3.21)$$

$$C_S = e^{i\Delta_g t_0} \int d\Delta G(\Delta) \rho_{ca}(t_0, \Delta) \left(\pi\delta(\Delta + \Delta_g) - vp \frac{i}{\Delta + \Delta_g} \right) \quad (3.22)$$

L'intensité transmise est donnée par :

$$\mathcal{I}(t) = |\mathcal{E}|^2 |1 + K e^{i\Delta_g t} C_{AS} + K e^{-i\Delta_g t} C_S|^2 \quad (3.23)$$

L'amplitude du terme oscillant à la fréquence Δ_g est égale au module de la quantité suivante :

$$K(C_{AS} + C_S^*)\mathcal{E}^2 = \frac{kL}{4\epsilon_0} \frac{\mu_{cb}\mu_{ab}}{\hbar} e^{-i\Delta_g t_0} \int d\Delta G(\Delta) \rho_{ac}(t_0, \Delta) \times \left(\pi\delta(\Delta) + \pi\delta(\Delta + \Delta_g) + vp \frac{i}{\Delta + \Delta_g} - vp \frac{i}{\Delta} \right) \quad (3.24)$$

Ceci n'est valable que si l'on peut séparer la composante oscillant à la fréquence Δ_g du fond continu, c'est-à-dire si le battement est observé sur une durée assez longue.

Si on suppose que le profil inhomogène $G(\Delta)$ est plat et très large, l'amplitude du signal est proportionnelle à $|C_{AS} + C_S^*|$:

$$\left| \pi[\rho_{ac}(t_0, 0) + \rho_{ac}(t_0, -\Delta_g)] + \int_{-\infty}^{\infty} d\Delta \rho_{ac}(t_0, \Delta) \left(vp \frac{i}{\Delta + \Delta_g} - vp \frac{i}{\Delta} \right) \right| \quad (3.25)$$

Or, par définition de la valeur principale,

$$\int_{-\infty}^{\infty} f(\Delta) vp \frac{1}{\Delta} d\Delta = \lim_{\epsilon \rightarrow 0} \int_{\epsilon}^{\infty} \frac{f(\Delta) - f(-\Delta)}{\Delta} d\Delta = \int_0^{\infty} \frac{f(\Delta) - f(-\Delta)}{\Delta} d\Delta \quad (3.26)$$

L'amplitude du signal de battement est donc proportionnel à :

$$|C_{AS} + C_S^*| = \underbrace{\left| \pi[\rho_{ac}(t_0, 0) + \rho_{ac}(t_0, -\Delta_g)] \right|}_{\text{partie résonnante}} + i \underbrace{\int_0^{+\infty} d\Delta \frac{\rho_{ac}(t_0, \Delta - \Delta_g) + \rho_{ac}(t_0, \Delta) - \rho_{ac}(t_0, -\Delta - \Delta_g) - \rho_{ac}(t_0, -\Delta)}{\Delta}}_{\text{partie dispersive}} \quad (3.27)$$

On distingue dans cette expression deux termes de nature différente. Le premier terme provient de la cohérence Raman présente dans les atomes *résonnants optiquement* avec l'impulsion de lecture. Ce terme est noté "partie résonnante". L'autre terme décrit la contribution des atomes non résonnants, et est appelé "partie dispersive".

Le mécanisme de diffusion Raman cohérente est donc très semblable au processus d'absorption linéaire décrit au début de ce paragraphe. En effet, dans les deux mécanismes, la cohérence optique créée comporte une composante résonnante optiquement et une composante dispersive. Toutefois, dans le cas de la diffusion Raman cohérente, comme la réponse du système est détectée par battement, le signal contient non seulement la contribution des atomes résonnants avec le champ de lecture, mais aussi celle des atomes non résonnants, contenue dans la "partie dispersive".

3.2.3 Excitation optique de la cohérence Raman par une impulsion monochromatique

Soit un système à trois niveaux en Λ ou en V $|a\rangle$, $|b\rangle$, $|c\rangle$, soumis à une impulsion optique rectangulaire de fréquence ω_L et de durée τ_1 . Les transitions optiques sont $|a\rangle \rightarrow$

$|b\rangle$ et $|c\rangle \rightarrow |b\rangle$. Le désaccord de l'impulsion par rapport aux transitions optiques est noté $\Delta = \omega_{ab} - \omega_L$ pour $|a\rangle \rightarrow |b\rangle$ et $\Delta - \Delta_g = \omega_{cb} - \omega_L$ pour $|c\rangle \rightarrow |b\rangle$. On suppose que l'impulsion peut exciter les deux transitions. Les pulsations de Rabi de l'excitation sont supposées réelles et sont notées : Ω_1 selon la transition $|a\rangle \rightarrow |b\rangle$, et Ω_2 selon la transition $|c\rangle \rightarrow |b\rangle$.

L'état du système à tout instant t est décrit par la fonction $|\psi\rangle = a(t)|a\rangle + b(t)|b\rangle + c(t)|c\rangle$. On définit un nouveau système de coordonnées :

$$\begin{aligned} a(t) &= \tilde{a}(t)e^{-i\omega_a t}e^{-i\Delta t} \\ b(t) &= \tilde{b}(t)e^{-i\omega_b t} \\ c(t) &= \tilde{c}(t)e^{-i\omega_c t}e^{-i(\Delta - \Delta_g)t} \end{aligned} \quad (3.28)$$

En l'absence de relaxation, l'évolution du système en présence d'une excitation monochromatique est décrite par l'équation de Schrödinger :

$$\begin{aligned} \dot{\tilde{a}}(t) &= i\Delta\tilde{a}(t) + i\frac{\Omega_1}{2}\tilde{b}(t) \\ \dot{\tilde{b}}(t) &= i\frac{\Omega_1}{2}\tilde{a}(t) + i\frac{\Omega_2}{2}\tilde{c}(t) \\ \dot{\tilde{c}}(t) &= i\frac{\Omega_2}{2}\tilde{b}(t) + i(\Delta - \Delta_g)\tilde{c}(t) \end{aligned} \quad (3.29)$$

Pour résoudre un tel système différentiel, il faut expliciter ses valeurs propres qui sont racines d'un polynôme de degré 3. Ces racines n'ont pas d'expression simple. On résout donc le système analytiquement par l'intermédiaire d'un logiciel de calcul comme Mathematica. On obtient alors la cohérence Raman $\rho_{ac}(\tau_1, \Delta) = a^*(\tau_1)c(\tau_1) = \tilde{a}^*(\tau_1)\tilde{c}(\tau_1)$ à la fin de l'impulsion excitatrice.

Une telle excitation ne peut fonctionner que si le spectre de l'impulsion excitatrice est plus large que l'écart en fréquence entre les niveaux $|a\rangle$ et $|c\rangle$. Plus l'impulsion est longue, moins l'excitation est efficace. Considérons une expérience de battements Raman cohérents dont la séquence d'impulsion est constituée d'une impulsion excitatrice monochromatique, puis d'une impulsion monochromatique de lecture supposée peu intense. On utilise les résultats du paragraphe 3.2.2, en particulier le résultat de l'équation (3.24) pour calculer l'amplitude du signal détecté.

A titre d'exemple, on a calculé l'amplitude du signal que l'on devrait observer si l'on réalisait une expérience de battements Raman cohérents dans un système à 3 niveaux en V. Les pulsations de Rabi de l'impulsion excitatrice sont $\Omega_1 = \pi/4\tau_1$ et $\Omega_2 = 0,36\pi/4\tau_1$ et sa durée est fixée à $\tau_1 = 2 \mu s$. L'amplitude du signal de battement est représentée sur la figure 3.7 en fonction du splitting entre les deux sous-niveaux. On a aussi représenté sur la figure la contribution au signal de la partie résonnante, et la contribution au signal de la partie dispersive. Chacune de ces composantes présente des minima régulièrement

espacés de 500 kHz, correspondant à une variation de 1 du produit $\Delta_g \tau_1$. En particulier, les minima de la partie résonnante du signal de battement coïncident précisément avec les zéros du spectre de l'impulsion excitatrice. L'amplitude du signal de battement ne présente néanmoins pas de minima aussi marqués.

Pour des aires de l'impulsion excitatrice inférieures à celles que nous avons choisies pour la figure 3.7, l'amplitude du signal de battement a la même allure. Pour des aires plus importantes, en revanche, le calcul montre qu'elle peut présenter des minima régulièrement espacés de $1/\tau_1$. Ces minima peuvent être plus ou moins marqués selon l'aire de l'impulsion excitatrice. Ainsi par exemple, dans la figure 3.8, on a représenté l'amplitude du signal de battement attendu si l'impulsion excitatrice pour différentes aires de l'impulsion excitatrice. Les minima sont plus marqués lorsque l'aire est $1,5\pi$.

Les deux figures 3.7 et 3.8 montrent que l'excitation d'une cohérence de spin par une impulsion monochromatique n'est efficace que si le splitting (exprimé en Hz) entre les deux sous-niveaux de spin est inférieur à $1/\tau_1$.

Le phénomène de battement ne se produit que lorsque $\Delta_g \neq 0$, donc l'amplitude du battement n'a pas de sens pour un splitting nul. On peut tout de même noter qu'à $\Delta_g = 0$, la cohérence Raman créée est maximale, car les deux transitions sont excitées à résonance optique. Il est possible de détecter tout de même par battement le signal provenant de cette cohérence entre sous-niveaux dégénérés, en séparant par exemple par effet Stark les sous-niveaux juste après l'excitation. Ceci a été réalisé par exemple dans une vapeur moléculaire de $C^{13}H_3F$, dans la toute première mise en évidence des battements Raman cohérents par Shoemaker et Brewer [126].

3.2.4 Excitation optique d'une cohérence de spin par une impulsion bichromatique

Equation de Schrödinger

On considère un système à 3 niveaux en Λ soumis à une excitation bichromatique $\{\omega_{L1}, \omega_{L2}\}$ de pulsations de Rabi Ω_1 et Ω_2 , respectivement, sur chacune des transitions du système en Λ . On suppose que chacune des fréquences est couplée à une seule transition optique. On suppose aussi que la condition de résonance Raman est satisfaite, c'est-à-dire que les deux fréquences sont désaccordées de la même quantité par rapport à la résonance optique : $\omega_{L1} - \omega_{L2} = \Delta_g$. On néglige l'élargissement inhomogène de la transition Raman, ainsi que l'ensemble des processus de relaxation. On note Δ le désaccord des pulsations ω_{L1} et ω_{L2} par rapport à la résonance optique :

$$\Delta = \omega_b - \omega_a - \omega_{L1} = \omega_b - \omega_c - \omega_{L2} \quad (3.30)$$

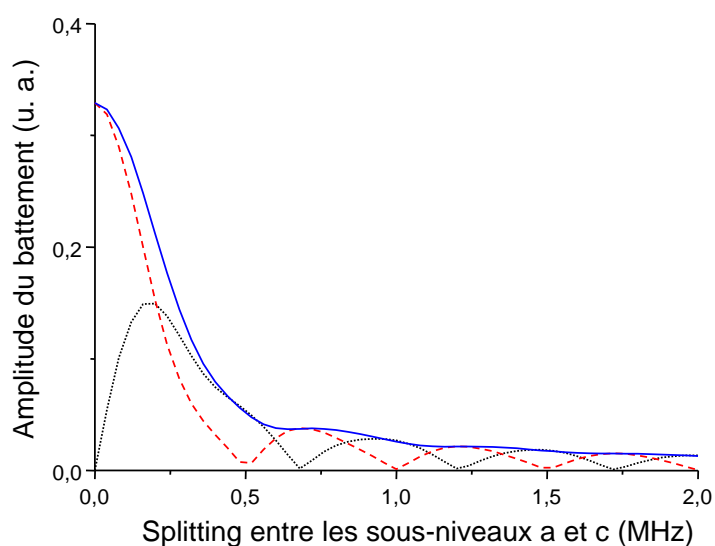


FIG. 3.7 – Amplitude du signal de battements Raman cohérents en fonction du splitting entre les sous-niveaux hyperfin d'un système à 3 niveaux en V (ligne continue). L'impulsion excitatrice est supposée monochromatique, de forme rectangulaire, et de durée $\tau_1 = 2 \mu\text{s}$, et d'aire $\pi/4$. On a aussi représenté sur la figure la contribution au signal de la partie résonnante (traits), et la contribution au signal de la partie dispersive (points).

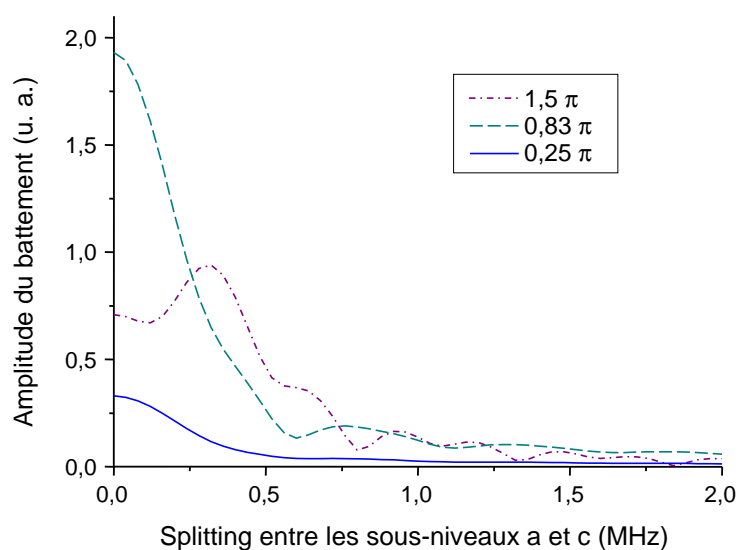


FIG. 3.8 – Amplitude du signal de battements Raman cohérents en fonction du splitting entre les sous-niveaux hyperfin d'un système à 3 niveaux en V. L'aire de l'impulsion est $0,25\pi$ (ligne continue), $0,83\pi$ (ligne tiretée) ou $1,5\pi$ (traits-points). L'impulsion excitatrice est monochromatique de durée $\tau_1 = 2 \mu\text{s}$.

L'état de l'atome à 3 niveaux s'écrit :

$$|\psi\rangle = a(t) |a\rangle + b(t) |b\rangle + c(t) |c\rangle \quad (3.31)$$

On définit un nouveau système de coordonnées $\underline{a}, \underline{b}, \underline{c}$:

$$\begin{aligned} a(t) &= \underline{a}(t)e^{-i\omega_a t} \\ b(t) &= \underline{b}(t)e^{-i\omega_b t} e^{i\Delta t} \\ c(t) &= \underline{c}(t)e^{-i\omega_c t} \end{aligned} \quad (3.32)$$

En l'absence de relaxation, l'évolution du système est décrite par l'équation de Schrödinger :

$$\begin{pmatrix} \dot{\underline{a}} \\ \dot{\underline{b}} \\ \dot{\underline{c}} \end{pmatrix} = \frac{i}{2} \begin{pmatrix} 0 & \Omega_1 & 0 \\ \Omega_1^* & -2\Delta & \Omega_2^* \\ 0 & \Omega_2 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \underline{a} \\ \underline{b} \\ \underline{c} \end{pmatrix} \quad (3.33)$$

Ce système différentiel peut être résolu analytiquement, et s'écrire sous la forme :

$$\begin{pmatrix} \underline{a}(t) \\ \underline{b}(t) \\ \underline{c}(t) \end{pmatrix} = \hat{U}(t - t_0) \begin{pmatrix} \underline{a}(t_0) \\ \underline{b}(t_0) \\ \underline{c}(t_0) \end{pmatrix} \quad (3.34)$$

où l'opérateur évolution $\hat{U}(t)$ s'écrit :

$$\hat{U}(t) = \begin{pmatrix} \frac{|\Omega_2|^2}{\Omega^2} + \frac{|\Omega_1|^2}{\Omega^2} \left(\alpha + \frac{i\Delta}{\chi} \beta \right) e^{-i\Delta t/2} & \frac{i\Omega_1}{\chi} \beta e^{-i\Delta t/2} & -\frac{\Omega_1 \Omega_2^*}{\Omega^2} \left[1 - \left(\alpha + \frac{i\Delta}{\chi} \beta \right) e^{-i\Delta t/2} \right] \\ \frac{i\Omega_1^*}{\chi} \beta e^{-i\Delta t/2} & \left(\alpha - \frac{i\Delta}{\chi} \beta \right) e^{-i\Delta t/2} & \frac{i\Omega_2^*}{\chi} \beta e^{-i\Delta t/2} \\ -\frac{\Omega_1^* \Omega_2}{\Omega^2} \left[1 - \left(\alpha + \frac{i\Delta}{\chi} \beta \right) e^{-i\Delta t/2} \right] & \frac{i\Omega_2}{\chi} \beta e^{-i\Delta t/2} & \frac{|\Omega_1|^2}{\Omega^2} + \frac{|\Omega_2|^2}{\Omega^2} \left(\alpha + \frac{i\Delta}{\chi} \beta \right) e^{-i\Delta t/2} \end{pmatrix} \quad (3.35)$$

avec

$$\Omega = \sqrt{|\Omega_1|^2 + |\Omega_2|^2} \quad \chi = \sqrt{\Omega^2 + \Delta^2} \quad (3.36)$$

$$\alpha = \cos \frac{\chi t}{2} \quad \beta = \sin \frac{\chi t}{2} \quad (3.37)$$

Les coefficients de l'opérateur \hat{U} seront notés U_{ij} . Cet opérateur a déjà été explicité par Mossberg *et al.* [124].

En l'absence de toute excitation, $\Omega_1 = \Omega_2 = 0$. L'opérateur d'évolution libre s'écrit alors :

$$\hat{U}_0(t) = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & e^{-i\Delta t} & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (3.38)$$

Système initialement à l'équilibre thermique

Soit un système à 3 niveaux en Λ initialement à l'équilibre thermique. Dans les cristaux dopés aux ions de terre rare refroidis à la température de l'hélium liquide (quelques kelvins), cela signifie que les ions sont également répartis entre les sous-niveaux de l'état fondamental, et que la cohérence entre ces deux sous-niveaux est nulle dans tous les ions. L'état d'un tel système peut s'écrire de la façon suivante :

$$a(0) = 1/\sqrt{2} \quad b(0) = 0 \quad c(0) = e^{i\phi}/\sqrt{2} \quad (3.39)$$

Les éléments de la matrice densité sont obtenus après une moyenne sur la phase ϕ . Par exemple, la cohérence Raman ρ_{ac} est donnée par :

$$\rho_{ac}(t, \Delta)e^{-i\Delta_g t} = \langle \underline{a}^*(t, \Delta)\underline{c}(t, \Delta) \rangle_\phi \quad (3.40)$$

$\langle X \rangle_\phi$ désigne la valeur moyenne de la quantité X sur ϕ . Ainsi, on a bien initialement $\rho_{aa}(t=0) = \rho_{cc}(t=0) = 1/2$ et $\rho_{ac}(t=0) = 0$.

On s'intéresse à l'évolution de ce système lorsqu'il est éclairé par une impulsion bi-chromatique de durée τ_1 , et de fréquences de Rabi Ω_1 et Ω_2 sur chacune des transitions du Λ . Alors la cohérence Raman créée par une telle impulsion dans un système en Λ initialement à l'équilibre thermique s'écrit :

$$\rho_{ac}(\tau_1, \Delta)e^{-i\Delta_g \tau_1} = \frac{1}{2} [U_{11}^*(\tau_1, \Delta)U_{31}(\tau_1, \Delta) + U_{13}^*(\tau_1, \Delta)U_{33}(\tau_1, \Delta)] \quad (3.41)$$

$$= -\frac{1}{8}(\Omega_1^* \tau_1)(\Omega_2 \tau_1) \left[\frac{\sin(\chi \tau_1/2)}{\chi \tau_1/2} \right]^2 \quad (3.42)$$

où U_{ij} sont les coefficients de la matrice \hat{U} .

Le module de la cohérence Raman créée dans les atomes résonnants optiquement avec l'impulsion excitatrice est représenté en figure 3.10(a), en fonction des pulsations de Rabi

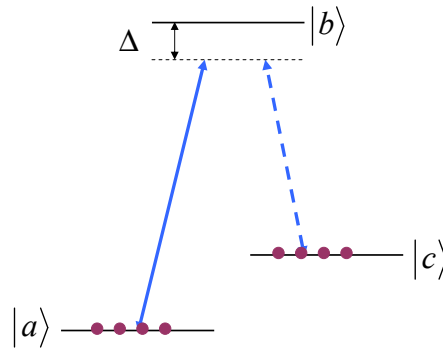


FIG. 3.9 – Système en Λ à l'équilibre thermique : les états $|a\rangle$ et $|c\rangle$ sont initialement également peuplés.

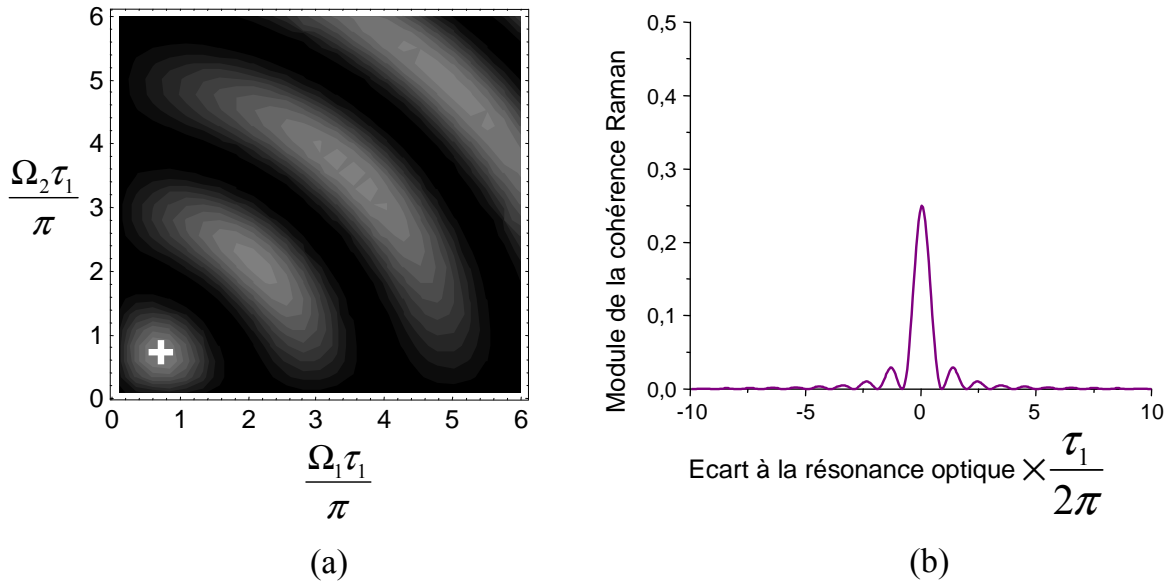


FIG. 3.10 – Module de la cohérence Raman créée dans l'état fondamental d'un système à 3 niveaux en Λ par une impulsion bichromatique de durée τ_1 . Le système est initialement à l'équilibre thermique. (a) En fonction des aires d'impulsions, pour un désaccord optique Δ nul. La croix correspond aux aires d'impulsion optimisées : $\Omega_1 \tau_1 = \Omega_2 \tau_1 = \pi/\sqrt{2}$. L'échelle des niveaux de gris s'étend de 0 (noir) à 0,5 (blanc). (b) En fonction du désaccord optique $\Delta \tau_1/2\pi$. Les aires de l'impulsion sont $\pi/\sqrt{2}$ sur les deux transitions optiques.

Ω_1 et Ω_2 . Il atteint sa valeur maximum 0,25 quand les aires d'impulsion le long des deux transitions du Λ sont $\Theta_1 = \Omega_1 \tau_1 = \Theta_2 = \Omega_2 \tau_1 = \pi/\sqrt{2}$. Ce maximum est à comparer à la valeur 0,5 que le module de la cohérence Raman ne peut dépasser, quelle que soit la technique utilisée pour créer la cohérence et quel que soit l'état initial du système.

On a représenté l'allure de la cohérence Raman dans un système à 3 niveaux en fonction du désaccord optique Δ dans la figure 3.10(b), avec $\Omega_1 \tau_1 = \Omega_2 \tau_1 = \pi/\sqrt{2}$. Les cohérences Raman sont excitées sur un intervalle spectral du profil inhomogène optique de l'ordre de l'inverse de la durée de l'impulsion. Lorsque $|\Delta| \gg \Omega$, la cohérence Raman décroît en valeur absolue comme $1/\Delta^2$. En effet, comme les populations entre les deux sous-niveaux fondamentaux $|a\rangle$ et $|c\rangle$ sont initialement égales, l'excitation à deux photons de la cohérence Raman n'est pas efficace. Ceci est compris par analogie avec une transition optique dans un système à deux niveaux : la lumière n'interagit pas avec un échantillon où la différence de population et la cohérence optique sont initialement nuls. C'est seulement dans les ions résonnants optiquement avec l'impulsion excitatrice que la cohérence de spin peut être créée, par l'intermédiaire de la population du niveau excité. C'est pourquoi le profil spectral des cohérences créées est proportionnel à la transformée de Fourier de l'impulsion excitatrice, qui a la forme d'un sinus cardinal.

Ainsi, si le système est initialement à l'équilibre thermique, la cohérence Raman est créée uniquement dans les ions qui sont *résonnants optiquement* avec les champs excitateurs. La cohérence maximale en valeur absolue que l'on peut atteindre est de 0,25. De plus, quelles que soient les aires de l'impulsion excitatrice, la cohérence Raman créée est une fonction réelle et paire du désaccord optique Δ .

Système préparé dans un état pur

On suppose ici que tous les atomes sont préparés dans le niveau $|a\rangle$: $a(0) = 1$, $b(0) = 0$, et $c(0) = 0$. Un système ainsi préparé est représenté sur la figure 3.11. Dans ce cas, l'action d'une impulsion bichromatique se restreint à :

$$\rho_{ac}(\tau_1, \Delta)e^{-i\Delta_g\tau_1} = \underline{a}^*(\tau_1, \Delta)\underline{c}(\tau_1, \Delta) = U_{11}^*(\tau_1, \Delta_1)U_{31}(\tau_1, \Delta_1) \quad (3.43)$$

$$\rho_{ac}(\tau_1, \Delta)e^{-i\Delta_g\tau_1} = -\frac{\Omega_1^*\Omega_2}{\Omega^2} \left[1 - \left(\alpha + i\frac{\Delta}{\chi}\beta \right) e^{-i\frac{\Delta\tau_1}{2}} \right] \left[\frac{|\Omega_2^2|}{\Omega^2} + \frac{|\Omega_1^2|}{\Omega^2} \left(\alpha - i\frac{\Delta}{\chi}\beta \right) e^{-i\frac{\Delta\tau_1}{2}} \right] \quad (3.44)$$

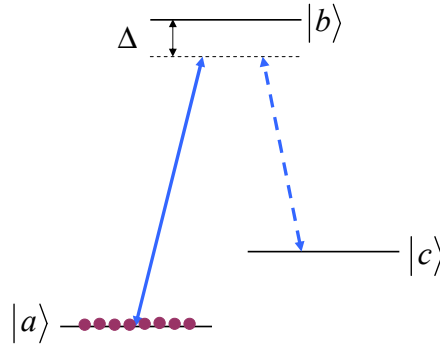


FIG. 3.11 – Système en Λ préparé dans l'état $|a\rangle$.

Le module de la cohérence Raman est représenté en figure 3.12(a), à résonance optique, en fonction des aires de l'impulsion excitatrice selon chacune des transitions. Il atteint sa valeur maximum 0,5 à résonance optique $\Delta = 0$ et par exemple quand $\Omega_1\tau_1 = 2\pi \cos(\pi/8)$ selon la transition $|a\rangle \rightarrow |b\rangle$ et $\Omega_2\tau_1 = 2\pi \sin(\pi/8)$ selon la transition $|c\rangle \rightarrow |b\rangle$.

On a représenté sur la figure 3.12(b) le module de la cohérence Raman ρ_{ac} donnée dans l'équation (3.44), en fonction du désaccord optique Δ , avec $\Omega_1\tau_1 = 2\pi \cos(\pi/8)$ et $\Omega_2\tau_1 = 2\pi \sin(\pi/8)$. L'état de cohérence maximal ($|\rho_{ac}| = 0,5$) est obtenu pour les atomes résonnants optiquement avec l'impulsion excitatrice. Par ailleurs, loin de la résonance optique, pour $\Delta \gg \Omega$, le module de la cohérence Raman varie comme $1/\Delta$. C'est la signature d'un processus résonnant à 2 photons. Ainsi, quand le système est préparé dans un état pur, l'excitation optique de la cohérence Raman est non seulement plus efficace

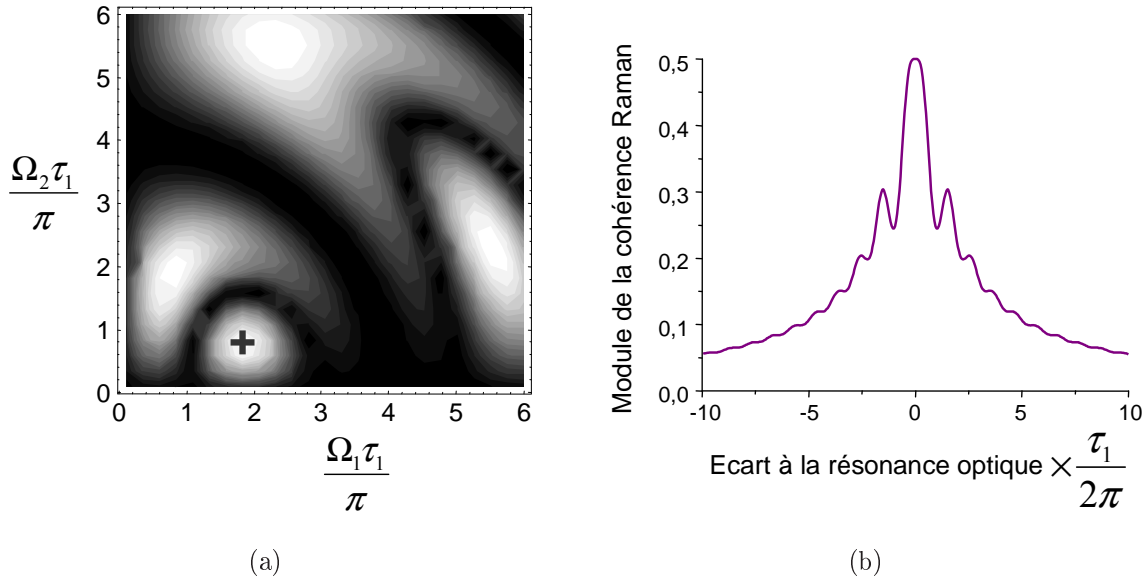


FIG. 3.12 – Module de la cohérence Raman créée dans l'état fondamental d'un système à 3 niveaux en Λ par une impulsion bichromatique de durée τ_1 . Le système est initialement préparé dans l'un des sous-niveaux fondamentaux. (a) En fonction des aires d'impulsions, pour un désaccord optique Δ nul. L'échelle des niveaux de gris est la même que dans la figure 3.10 s'étend de 0 (noir) à 0,5 (blanc). La croix correspond aux aires d'impulsion optimales : $\Omega_1 \tau_1 = 2\pi \cos(\pi/8)$ et $\Omega_2 \tau_1 = 2\pi \sin(\pi/8)$. (b) En fonction du désaccord optique $\Delta \tau_1 / 2\pi$. Les aires de l'impulsion sont optimales $\Omega_1 \tau_1 = 2\pi \cos(\pi/8)$ et $\Omega_2 \tau_1 = 2\pi \sin(\pi/8)$.

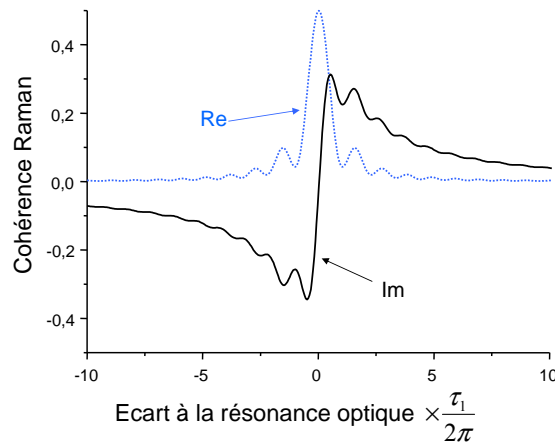


FIG. 3.13 – Parties réelle et imaginaire de la cohérence de spin créée par une impulsion bichromatique de durée τ_1 , en fonction du désaccord optique $\Delta \tau_1 / 2\pi$, dans un système à 3 niveaux en Λ . Les ions sont initialement préparés dans l'un des sous-niveaux fondamentaux. Les aires d'impulsion sont $\Omega_1 \tau_1 = 2\pi \cos(\pi/8)$ et $\Omega_2 \tau_1 = 2\pi \sin(\pi/8)$.

mais aussi beaucoup moins sélective en fréquence, c'est-à-dire que la cohérence Raman est aussi créée dans des atomes plus éloignés de la résonance optique.

A la différence d'une situation initiale de mélange statistique, la cohérence Raman construite optiquement à partir d'un état pur comprend une composante impaire. On a représenté sur la figure 3.13 les parties paire et impaire (qui coïncident respectivement avec les parties réelle et imaginaire) de la cohérence Raman créée dans un système à 3 niveaux en Λ pour les aires d'impulsion optimales déterminées ci-dessus. On utilise pour cela l'équation (3.44). On constate que les deux composantes se comportent différemment lorsque $\Delta \gg \Omega$: la partie réelle décroît comme $1/\Delta^2$, et la partie imaginaire décroît comme $1/\Delta$. Ces deux comportements constituent respectivement la signature d'un processus résonnant à un photon, qui nécessite le peuplement du niveau excité, et celle d'une excitation directe à deux photons.

Nous avons donc montré ici que l'excitation optique des cohérences Raman est sensible à la position des atomes dans le profil d'absorption inhomogène, même lorsqu'elle vérifie la condition de résonance à deux photons, et ce quel que soit l'état initial du système. En effet, les cohérences Raman sont excitées sur un intervalle spectral de l'ordre de l'inverse de la durée de l'impulsion excitatrice, centré sur la résonance optique. Cela implique en particulier que la source produisant les deux champs optiques doit présenter une stabilité meilleure que $1/\tau_1$. La stabilité de la différence des deux fréquences n'est donc pas une condition suffisante pour que les cohérences Raman soient créées de façon contrôlée.

Diffusion Raman cohérente par un champ faible

Une impulsion rectangulaire monochromatique dite de lecture est envoyée à l'instant t_0 sur le système en Λ . Une cohérence de spin entre les deux sous-niveaux fondamentaux a été préalablement créée dans ce système à l'aide d'une impulsion bichromatique de durée τ_1 et de fréquences ω_{L1}, ω_{L2} vérifiant la condition de résonance à deux photons. L'impulsion de lecture excite les deux transitions optiques du système, ce qui donne naissance à un champ Stokes et à un champ anti-Stokes, comme cela a été décrit dans la partie 3.2.2.

On suppose que la fréquence du champ de lecture est égale à la composante ω_{L2} de l'impulsion excitatrice bichromatique. Sa pulsation de Rabi est notée Ω'_1 selon la transition $|a\rangle \rightarrow |b\rangle$, et Ω'_2 selon la transition $|c\rangle \rightarrow |b\rangle$. On note Δ le désaccord optique entre la fréquence de la transition atomique $|c\rangle \rightarrow |b\rangle$ et la fréquence optique ω_{L2} .

On s'intéresse dans un premier temps au cas où les pulsations de Rabi du champ sonde selon les deux transitions sont faibles. On peut reprendre l'équation (3.27) et écrire

que l'amplitude du signal de battement est proportionnelle à

$$i \int_0^{+\infty} d\Delta \frac{|\pi[\rho_{ac}(t_0, 0) + \rho_{ac}(t_0, -\Delta_g)] + \rho_{ac}(t_0, \Delta - \Delta_g) + \rho_{ac}(t_0, \Delta) - \rho_{ac}(t_0, -\Delta - \Delta_g) - \rho_{ac}(t_0, -\Delta)|}{\Delta} \quad (3.45)$$

On a vu que dans le cas d'un système initialement à l'équilibre thermique, la cohérence Raman est excitée sur un intervalle spectral de largeur $2/\tau_1$ autour de la résonance optique, où τ_1 est la durée de l'impulsion excitatrice bichromatique. Dans le cas d'un système préparé dans un état pur, elle est excitée sur un intervalle spectral de largeur $10/\tau_1$. Si le splitting de l'état fondamental Δ_g est très grand devant $10/\tau_1$, alors on peut écrire que $\rho_{ac}(t_0, \Delta - \Delta_g) \ll \rho_{ac}(t_0, \Delta)$ si Δ est proche de zéro, quel que soit l'état initial du système. L'expression ci-dessus se simplifie et on obtient une amplitude du battement proportionnelle à :

$$\left| \pi \rho_{ac}(t_0, 0) + i \int_0^{+\infty} d\Delta \frac{\rho_{ac}(t_0, \Delta) - \rho_{ac}(t_0, -\Delta)}{\Delta} \right| \quad (3.46)$$

Cette amplitude comporte deux termes. Un terme résonnant, $\rho_{ac}(t_0, 0)$, et un terme non-résonnant, qui fait intervenir seulement la partie *impair* de la cohérence Raman, par l'intermédiaire de l'expression $\rho_{ac}(t_0, \Delta) - \rho_{ac}(t_0, -\Delta)$.

Si le système n'a pas été préparé, la cohérence Raman créée par l'impulsion excitatrice bichromatique est une fonction paire de Δ (voir figure 3.10). Par conséquent, même si la cohérence Raman a été excitée sur un intervalle de largeur non nulle, le terme non résonnant de l'équation 3.46 est nul. La seule contribution au signal est donnée par la cohérence Raman à résonance optique $\rho_{ac}(t_0, 0) = 0, 25$.

En revanche, si le système a été initialement préparé dans un état pur, non seulement la cohérence Raman est excitée par l'impulsion excitatrice bichromatique sur un large domaine spectral, mais elle possède une partie réelle paire et une partie imaginaire impaire non nulles (voir figure 3.13). Le terme non résonnant peut donc s'écrire :

$$-2 \int_0^{+\infty} d\Delta \frac{\Im \rho_{ac}(t_0, \Delta)}{\Delta} \quad (3.47)$$

$\Im \rho_{ac}(t_0, \Delta)$ désigne la partie imaginaire de ρ_{ac} qui varie comme $1/\Delta$ quand Δ est grand devant la pulsation de Rabi de l'excitation. La seule contribution au signal de la partie paire de la cohérence Raman est contenue dans le terme résonnant $\rho_{ac}(t_0, 0) = 0, 5$.

Ainsi, les cohérences Raman créées hors résonance optique ne peuvent contribuer au signal de diffusion Raman cohérente que si elles comportent une partie impaire de Δ , c'est-à-dire si le système a été initialement préparé dans un état pur.

Diffusion Raman cohérente par un champ d'amplitude quelconque

On s'intéresse maintenant au mécanisme de diffusion Raman cohérente pour une pulsation de Rabi quelconque du champ sonde, sans se limiter à un champ faible.

Considérons d'abord que le champ de lecture n'excite que la transition $|c\rangle \rightarrow |b\rangle$. L'action de ce champ sur le système à 3 niveaux peut être décrite par l'opérateur évolution \hat{U} de l'équation 3.35, en supposant que la fréquence de Rabi de l'excitation est nulle selon la transition $|c\rangle \rightarrow |b\rangle$:

$$\hat{U}'(t) = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & (\alpha' - \frac{i\Delta}{\chi_2'}\beta_2')e^{-i\Delta t/2} & \frac{i(\Omega_2')^*}{\chi_2'}\beta_2'e^{-i\Delta t/2} \\ 0 & \frac{i\Omega_2'}{\chi_2'}\beta_2'e^{-i\Delta t/2} & (\alpha_2' + \frac{i\Delta}{\chi_2'}\beta_2')e^{-i\Delta t/2} \end{pmatrix} \quad (3.48)$$

avec

$$\chi_2' = \sqrt{(\Omega_2')^2 + \Delta^2} \quad \alpha_2' = \cos \frac{\chi_2' t}{2} \quad \beta_2' = \sin \frac{\chi_2' t}{2} \quad (3.49)$$

La cohérence optique créée selon la transition $|a\rangle \rightarrow |b\rangle$ est donnée par :

$$\rho_{ab}(t, \Delta)e^{i(\omega_{L2} + \Delta_g)t} = U_{11}'^*(t - t_0)U_{23}'(t - t_0)\rho_{ac}(t_0, \Delta)e^{-i\Delta_g t_0} \quad (3.50)$$

$$= i \frac{\Omega_2'}{\chi_2'}\beta_2'e^{-i\Delta(t-t_0)/2}\rho_{ac}(t_0, \Delta)e^{-i\Delta_g t_0} \quad (3.51)$$

Elle donne lieu à l'émission d'un champ anti-Stokes à la fréquence $\omega_{L2} + \Delta_g$. De façon analogue, on peut écrire la cohérence optique créée selon la transition $|c\rangle \rightarrow |b\rangle$, qui donne lieu à l'émission d'un champ Stokes à la fréquence $\omega_{L2} - \Delta_g$:

$$\rho_{cb}(t, \Delta)e^{i(\omega_{L2} - \Delta_g)t} = i \frac{\Omega_1'}{\chi_1'}\beta_1'e^{-i\Delta(t-t_0)/2}\rho_{ca}(t_0, \Delta - \Delta_g)e^{i\Delta_g t_0} \quad (3.52)$$

avec

$$\chi_1' = \sqrt{(\Omega_1')^2 + \Delta^2} \quad \alpha_1' = \cos \frac{\chi_1' t}{2} \quad \beta_1' = \sin \frac{\chi_1' t}{2} \quad (3.53)$$

Le terme $\rho_{ac}(t_0, \Delta)$ est donné par l'équation (3.42) dans le cas d'un système initialement à l'équilibre thermique. Dans le cas d'un système préparé, on utilise l'expression de ρ_{ac} donnée dans l'équation (3.44).

L'amplitude des champs Stokes et anti-Stokes émis par les atomes respectivement aux fréquences $\omega_{L2} - \Delta_g$ et $\omega_{L2} + \Delta_g$ s'écrit :

$$E_S(t) = -\frac{kL}{2\epsilon_0}\mu_{cb} \int_{-\infty}^{\infty} G(\Delta)\rho_{cb}(t, \Delta) \quad \text{et} \quad E_{AS}(t) = -\frac{kL}{2\epsilon_0}\mu_{ab} \int_{-\infty}^{\infty} G(\Delta)\rho_{ab}(t, \Delta) \quad (3.54)$$

L'amplitude du signal de battement est proportionnelle à $|E_{AS}(t) + E_S^*(t)|$.

On a représenté l'amplitude du battement déterminé d'après les équations (3.51), (3.52) et (3.54) en fonction du temps, pour un système initialement à l'équilibre thermique

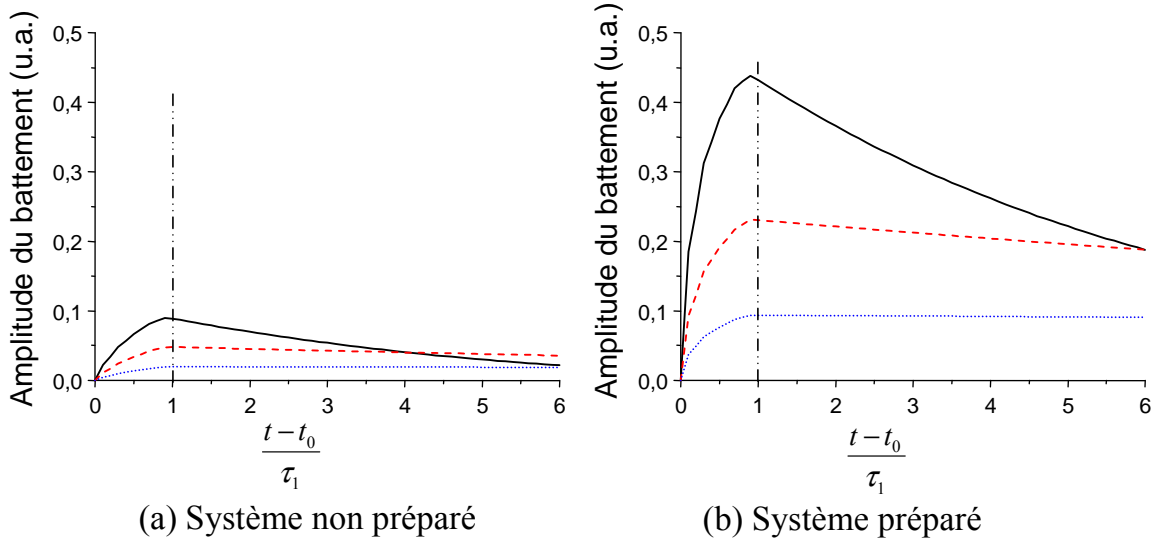


FIG. 3.14 – Amplitude du battement créé par diffusion Raman cohérente dans un système à 3 niveaux en Λ à partir d'une cohérence Raman créée par une impulsion bichromatique, pour différentes pulsations de Rabi Ω'_2 du champ de lecture selon la transition $|c\rangle \rightarrow |b\rangle$. L'amplitude du battement est exprimée dans une unité arbitraire identique dans les deux figures. L'origine des temps correspond à l'instant t_0 où le champ de détection est branché. (a) Système initialement non préparé, (b) Système préparé dans un état pur. Ligne continue : $\Omega'_2 = \frac{\pi}{2\tau_1}$, tirets : $\Omega'_2 = \frac{\pi}{4\tau_1}$, points : $\Omega'_2 = \frac{\pi}{10\tau_1}$, où τ_1 est la durée de l'impulsion bichromatique qui a servi à créer la cohérence Raman. La ligne verticale pointillée correspond à la position $t - t_0 = \tau_1$ où sont calculées les amplitudes tracées dans la figure 3.15.

[figure 3.14(a)], ou préparé dans un seul sous-niveau [figure 3.14(b)], et excité par une impulsion bichromatique $(\omega_{L1}, \omega_{L2})$ de durée τ_1 , à résonance Raman. La figure montre que l'amplitude du signal de battement dépend de la pulsation de Rabi Ω'_2 du faisceau de détection et du temps écoulé $t - t_0$ depuis le début de l'impulsion de lecture.

Pour une pulsation de Rabi relativement faible ($\Omega'_2 \lesssim \pi/10$), le signal de battement atteint son maximum au bout de la durée τ_1 , et reste ensuite constant. En effet, en régime perturbatif, le champ de réponse Stokes ou anti-Stokes à l'instant t résulte de la somme de toutes les cohérences optiques créées par le champ de lecture entre les instants t_0 et t . Or, chacune de ces cohérences optiques évolue avec un facteur de phase qui dépend du désaccord optique Δ du champ de lecture par rapport à la transition atomique. Chaque cohérence optique participant au signal provient de la cohérence Raman créée par l'impulsion bichromatique sur un intervalle spectral de l'ordre de $1/\tau_1$. Chaque contribution au champ de réponse s'éteint donc par interférences destructives au bout d'un temps ca-

ractéristique τ_1 . Ceci signifie que le champ de réponse à l'instant t résulte en fait de la somme des cohérences optiques créées sur l'intervalle de largeur τ_1 précédant l'instant t . Ainsi, l'amplitude du battement augmente pour $t - t_0 \leq \tau_1$, et reste ensuite constante pour $t - t_0 \geq \tau_1$, où τ_1 est la durée de l'impulsion bichromatique excitatrice.²

Pour une pulsation de Rabi plus importante ($\Omega'_2 \gtrsim \pi/4$), le signal de battement atteint son maximum au bout de τ_1 également, mais décroît ensuite vers zéro.

Une lecture peu intense semble donc adaptée à l'observation d'un signal de battement Raman cohérent, qui peut se prolonger sur une durée bien plus longue que la durée de l'impulsion excitatrice. Une lecture intense, en revanche, est adaptée à l'observation d'échos Raman, plus localisés dans le temps.

L'amplitude maximum atteinte au bout d'un temps τ_1 après l'application du champ de lecture augmente régulièrement avec la pulsation de Rabi Ω'_2 du faisceau de détection pour des pulsations de Rabi inférieures à $\pi/2\tau_1$, comme le montre la figure 3.15. Ceci est valable quel que soit l'état initial du système. Elle décroît pour des pulsations de Rabi supérieures.

La préparation préalable du système dans un état pur apporte donc une amélioration d'un facteur 4 environ sur l'amplitude du signal par rapport à un système initialement à l'équilibre thermique. Cette amélioration ne vient pas seulement du fait que la cohérence maximale créée a un module de 0,25 ou de 0,5 selon que le système est à l'équilibre thermique ou qu'il est préparé. Elle provient également de la distribution spectrale des cohérences de spin créées. En effet, contrairement à la spectroscopie par absorption linéaire décrite au début de la partie 3.2.2, le signal de battement produit par diffusion Raman cohérente ne provient pas seulement des cohérences créées dans les atomes résonnants avec le champ de lecture, mais de l'ensemble des cohérences Raman créées dans le milieu atomique, à condition que ces cohérences possèdent une composante impaire selon le désaccord Δ .

3.2.5 Impulsion rephasante : écho Raman

La formation d'un écho Raman a été proposée par S. Hartmann [123]. Elle est obtenue par une inversion de phase des cohérences Raman, grâce à une seconde impulsion bichromatique insérée entre la première impulsion et la détection. On peut aussi présenter le phénomène comme une transformation de ρ_{ac} en ρ_{ca} .

Soit τ_2 la durée de la deuxième impulsion, et Δ'' le désaccord optique de cette seconde impulsion. Elle est appliquée sur l'échantillon à un instant noté t . Ses pulsations de Rabi

²Ce comportement a déjà été évoqué dans la partie 3.2.2 : l'équation (3.15) montre en effet que l'amplitude du champ réponse du système est constante, si le champ de détection est peu intense et si le signal est observé longtemps après le début de l'impulsion de détection.

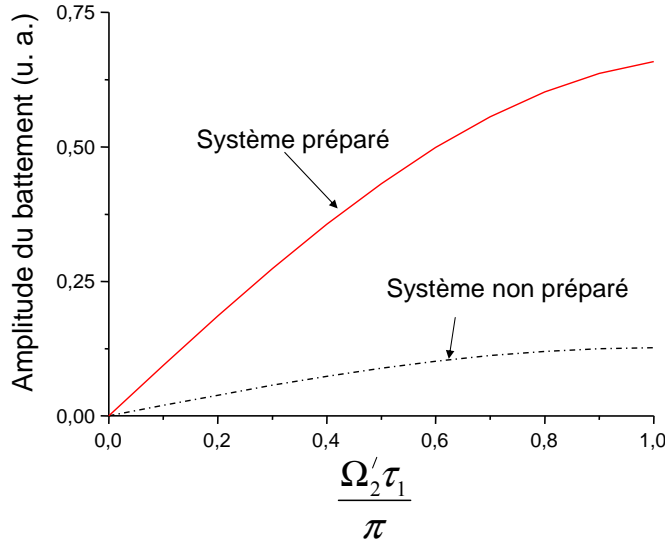


FIG. 3.15 – Amplitude du signal de battement Raman cohérent en fonction de la pulsation de Rabi Ω'_2 du champ de lecture selon la transition $|c\rangle \rightarrow |b\rangle$. La cohérence Raman est créée par une impulsion bichromatique vérifiant la condition de résonance à deux photons. L'amplitude est calculée au bout d'un temps τ_1 après le début de l'impulsion de lecture. τ_1 désigne la durée de l'impulsion bichromatique excitatrice. La ligne continue correspond au cas où le système initialement préparé dans un état pur, et la ligne pointillée correspond à un système initialement à l'équilibre thermique.

sur les transitions $|a\rangle \rightarrow |b\rangle$ et $|c\rangle \rightarrow |b\rangle$ sont notées Ω''_1 et Ω''_2 respectivement. On suppose que cette impulsion vérifie elle aussi la condition de résonance à deux photons. Ainsi, elle peut être décrite par les coefficients de l'opérateur évolution \hat{U} donné dans l'équation (3.35) (voir la partie 3.2.4). Seuls les coefficients U_{13} et U_{31} contribuent à l'inversion de phase. La cohérence Raman juste après l'impulsion rephasante s'écrit :

$$\begin{aligned}
 \rho_{ca}(t + \tau_2, \Delta'') e^{-i\Delta_g(t+\tau_2)} &= \underline{a}^*(t + \tau_2) \underline{c}(t + \tau_2) \\
 &= [U_{13}(\tau_2) \underline{c}(t)]^* U_{31}(\tau_2) \underline{a}(t) \\
 &= U_{13}^*(\tau_2) U_{31}(\tau_2) \rho_{ca}(t, \Delta'') e^{i\Delta_g t}
 \end{aligned} \tag{3.55}$$

La quantité $U_{13}^*(\tau_2) U_{31}(\tau_2)$ sera appelée ici l'efficacité de conversion. On l'a représentée sur la figure 3.16 en fonction du désaccord optique. On voit sur cette figure que, selon la pulsation de Rabi de l'impulsion, le maximum de conversion peut être obtenu soit à résonance optique (pour $\Omega''_1 = \Omega''_2 = \pi$ par exemple), soit hors résonance optique (pour $\Omega''_1 = \Omega''_2 = 2,45\pi$ ou $\Omega''_1 = \Omega''_2 = 3,5\pi/\tau_2$ par exemple). De plus, une augmentation de la pulsation de Rabi élargit la fenêtre spectrale sur laquelle les cohérences sont inversées. Ainsi, en agissant sur l'intensité et sur les fréquences optiques de l'impulsion rephasante

(à condition de conserver la condition de résonance à deux photons), il est possible d'ajuster la largeur de la fenêtre de rephasage et de la centrer sur les atomes porteurs d'une cohérence de spin.

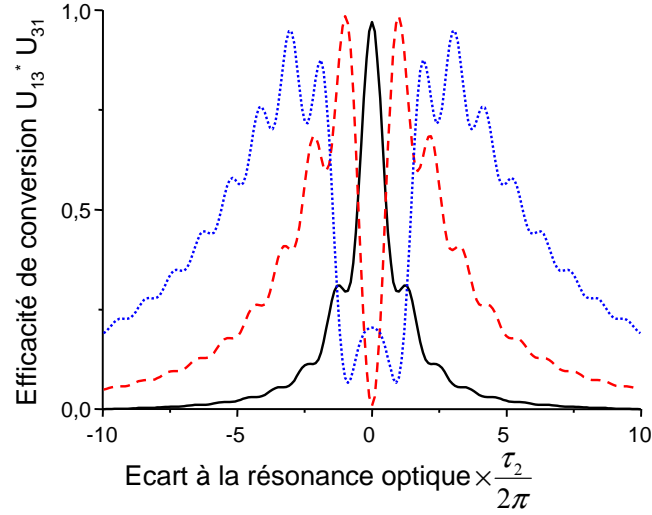


FIG. 3.16 – Efficacité de conversion pour différentes pulsations de Rabi de la deuxième impulsion bichromatique de durée τ_2 , en fonction du désaccord optique $\Delta''\tau_2/2\pi$. Ligne continue : $\Omega_1'' = \Omega_2'' = 1,5\pi/\tau_2$, traits : $\Omega_1'' = \Omega_2'' = 2,5\pi/\tau_2$, points : $\Omega_1'' = \Omega_2'' = 3,5\pi/\tau_2$.

L'efficacité de conversion décroît comme $1/\Delta^2$ pour des désaccords optiques importants, quelles que soient les pulsations de Rabi choisies. Cette sélectivité spectrale est celle d'un processus résonnant à un photon.

3.3 Conclusion

Les différentes étapes de la manipulation et de la détection optique d'une cohérence de spin dans un système à 3 niveaux ont été étudiées en détail dans ce chapitre. Nous en résumons ici les principales conclusions.

Lorsque l'impulsion excitatrice est monochromatique, le signal de battement Raman cohérent est sensible au profil spectral de l'impulsion excitatrice. En effet, pour que l'excitation des deux transitions optiques soit efficace, il faut que le spectre de l'impulsion soit plus large que l'écart en fréquence entre les deux sous-niveaux de spin.

En l'absence de relaxation, l'évolution d'un système à 3 niveaux excité par une impulsion bichromatique résonnante à deux photons est décrite assez simplement au moyen d'un opérateur évolution. La distribution spectrale des cohérences de spin créées dépend fortement des aires d'impulsions et de l'état initial du système. Si le système est initialement à l'équilibre thermique, c'est-à-dire si les populations sont également réparties entre

les deux sous-niveaux fondamentaux, les cohérences de spin ne sont créées que dans les atomes strictement résonnants optiquement avec l'impulsion excitatrice. Si en revanche le système est préparé dans un seul de ces sous-niveaux, les cohérences de spin sont créées non seulement dans les atomes résonnants mais aussi dans des atomes plus éloignés de la résonance optique. Les aires optimales d'excitation ont été déterminées pour les deux conditions initiales du système envisagées.

Lorsqu'une telle excitation est suivie d'une détection optique basée sur la diffusion Raman cohérente, l'amplitude du signal de battement dépend de la pulsation de Rabi du champ de lecture. Si la détection est effectuée à l'aide d'un champ de lecture peu intense, l'amplitude du signal est quasiment stationnaire peu après le début de la détection. Un tel comportement est plutôt adapté à une expérience de battements Raman cohérents. Si au contraire la détection est effectuée à l'aide d'un champ de lecture intense, l'amplitude maximale du signal de battement augmente fortement jusqu'à un maximum (qui augmente avec l'amplitude du champ exciteur), et décroît ensuite jusqu'à zéro. Cela convient plutôt à une expérience d'écho Raman, où l'on recherche un contraste des battements important, et où le signal est localisé dans le temps.

L'amplitude du battement dépend également de l'état initial du système. L'allure temporelle du signal est la même, que le système soit initialement préparé ou non. Néanmoins, la préparation du système entraîne une amélioration d'un facteur 4 environ sur l'amplitude maximale du battement, quelle que soit la pulsation de Rabi de l'excitation. En effet, le processus de diffusion Raman cohérente est très différent du mécanisme d'absorption linéaire, puisque les atomes non résonnants optiquement avec le champ de lecture participent au signal.

L'ajout d'une seconde impulsion bichromatique permet d'inverser le sens d'évolution des cohérences Raman créées par la première impulsion. L'inversion est là aussi limitée à un domaine spectral du profil inhomogène autour de la résonance optique. Nous avons montré qu'en agissant sur l'intensité et sur les fréquences optiques de l'impulsion rephasante (à condition de conserver la résonance à deux photons), il est possible d'ajuster la largeur de la fenêtre de rephasage et de la centrer sur les atomes porteurs d'une cohérence de spin.

Ainsi, on peut exciter optiquement les cohérences Raman, inverser leur sens d'évolution et les détecter sur un domaine spectral qui n'est pas limité par l'inverse de la durée des impulsions excitatrices, à condition que le système soit initialement dans un état pur et que les aires des impulsions excitatrices soient convenablement choisies. Dans le cas d'un processus d'écho de photon, au contraire, les cohérences optiques sont créées sur un intervalle limité par la largeur spectrale de l'impulsion excitatrice. On peut donc s'attendre à ce que le signal d'écho Raman ainsi optimisé soit plus intense qu'un signal d'écho de photon, puisque davantage d'atomes y participent.

Chapitre 4

Etude d'une onde de spin dans le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$

Le chapitre 3 nous a permis de comprendre la formation du signal de battement Raman cohérent et d'écho Raman dans un système à 3 niveaux.

Dans la première partie de ce chapitre, nous détaillerons les expériences de battements Raman cohérents que nous avons réalisées dans le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$, qui donnent accès à l'élargissement inhomogène de la transition Raman. On verra que la durée de vie des cohérences de spin, qui est un paramètre capital pour la caractérisation d'une mémoire, ne peut être mesurée que si l'élargissement inhomogène Raman est compensé. Dans la deuxième partie, nous étendrons les résultats théoriques du chapitre 3 à un système à 4 niveaux. La troisième partie sera consacrée à la description des expériences d'écho Raman qui ont permis la mesure de la durée de vie des cohérences Raman dans le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$. Enfin, dans la quatrième partie, nous étudierons les mécanismes de relaxation des cohérences dans ce matériau et relierons les prévisions théoriques aux résultats expérimentaux obtenus.

4.1 Battements Raman cohérents dans le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$

Du fait de sa structure à 4 niveaux, le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ permet de mettre en œuvre le processus de battements Raman cohérents dans un système en V, ou dans un système en Λ . Ces deux types de systèmes présentent le même rapport de branchement R déterminé dans le chapitre 2. En revanche, l'écart en fréquence entre les sous-niveaux est plus grand dans l'état excité que dans l'état fondamental.

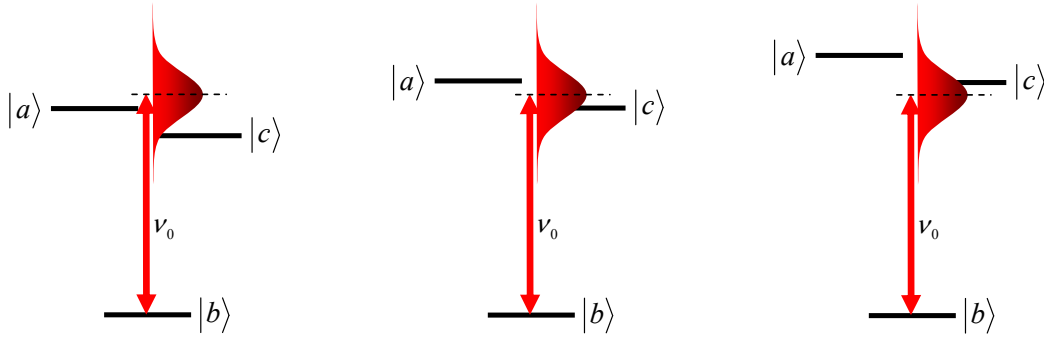


FIG. 4.1 – Système à 3 niveaux en V des ions thulium, à trois positions différentes dans le profil d'absorption inhomogène. Des cohérences optiques sont créées dans les trois systèmes représentés, mais la cohérence hyperfine entre les sous-niveaux $|a\rangle$ et $|c\rangle$ ne peut être excitée que dans le système central pour lequel les deux transitions optiques sont simultanément excitées.

Nous avons reproduit les expériences de Shelby *et al.* [25, 127] dans le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$: une impulsion monochromatique de durée τ et de fréquence ν_0 vient exciter les cohérences optiques des ions au centre du profil inhomogène optique, sur un intervalle spectral de l'ordre de l'inverse de τ . Dans certains des ions excités par l'impulsion courte, les deux cohérences optiques peuvent être excitées simultanément, ce qui a pour effet d'exciter aussi la cohérence de spin. Ceci est illustré dans la figure 4.1, dans le cas d'un système en V. On détecte ensuite ces cohérences de spin à l'aide de la diffusion Raman cohérente.

4.1.1 Battements Raman cohérents dans l'état excité

Le cristal de $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ est placé dans un champ magnétique orienté dans la direction $\theta = -48,4^\circ$ pour laquelle les ions des sites 3 et 5 présentent un système en Λ avec un rapport de branchement $R = 0,13 \pm 0,015$ (voir chapitre 2). On s'intéresse dans un premier temps au système en V, construit sur les deux sous-niveaux hyperfins de l'état excité, reliés chacun par une transition optique au même sous-niveau de l'état fondamental. En effet, l'hypothèse selon laquelle l'élargissement inhomogène de la transition Raman est très

inférieur à l'inverse de la durée de l'impulsion n'est valable dans notre système que dans l'état excité.

On utilise le montage optique décrit dans la partie 2.3.2. La séquence d'impulsions utilisée est donnée dans la figure 3.2. La puissance du faisceau est de 32 mW à la sortie de la fibre. Le faisceau est focalisé sur un spot de diamètre $100 \mu\text{m}$ dans le cristal. Par une expérience de nutation optique, nous mesurons une pulsation de Rabi pour les ions à résonance de $5,08 \cdot 10^6 \text{ rad.s}^{-1}$ le long d'une transition forte. L'impulsion excitatrice est rectangulaire et a une durée $\tau_1 = 300 \text{ ns}$, ce qui correspond à une aire d'impulsion de $\Omega\tau = 1,52 \text{ rad}$ à résonance optique. L'impulsion de lecture par diffusion Raman cohérente est atténuée d'un facteur 0,26 en amplitude (soit 0,07 en intensité) par rapport à l'impulsion excitatrice. Sa pulsation de Rabi le long d'une transition forte est donc de $1,32 \cdot 10^6 \text{ rad.s}^{-1}$. Le modulateur acousto-optique AO2 est ouvert seulement au moment de l'impulsion de lecture afin de ne pas saturer la photodiode à avalanche lors de l'impulsion excitatrice. La température de l'échantillon est ajustée entre 3 et 4 K. En effet, en-dessous de 3 K, la relaxation des populations dans les sous-niveaux de l'état fondamental n'est pas assez rapide pour compenser le pompage optique dû aux impulsions envoyées sur le système. Ce phénomène de pompage optique transfère les ions participant au signal vers le sous-niveau non-résonnant de l'état fondamental. Les ions quittent le système en V, et le signal disparaît. Au-dessus de 4 K, en revanche, c'est la durée de vie des cohérences Raman dans l'état excité qui diminue dramatiquement. Le laser n'est pas asservi en fréquence, c'est-à-dire que sa largeur de raie est de quelques MHz.

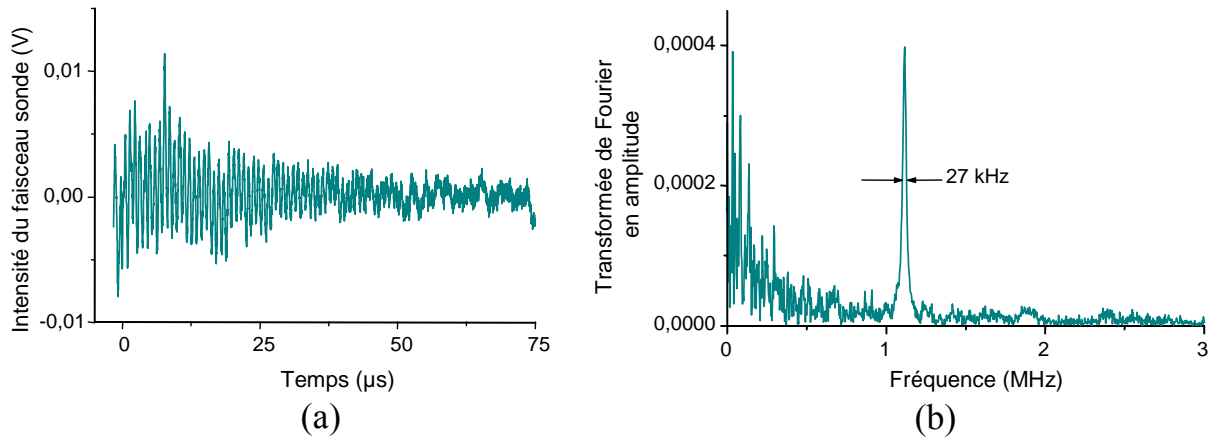


FIG. 4.2 – Battements Raman cohérents avec une impulsion excitatrice courte et monochromatique. (a) signal de battement sur le détecteur ; (b) transformée de Fourier en amplitude du signal de battement pour un champ magnétique de 0,067 T.

Un signal typique de battements Raman cohérents est donné en figure 4.2(a), et sa transformée de Fourier en amplitude est donnée dans la figure 4.2(b). Le pic principal sur

la transformée de Fourier est observé à la fréquence $\Delta_e = 1,115$ MHz, ce qui correspond à un champ magnétique de 0,067 T environ. La largeur du pic à la fréquence Δ_e correspond en principe à la largeur inhomogène de la transition de spin. Il peut néanmoins être élargi par saturation, selon l'intensité du faisceau de lecture. D'après Brewer et Hahn [128], la largeur du pic mesurée est donnée par :

$$\Gamma_{\text{mesure}} = \Gamma_{\text{inh}}^e + \Gamma_{\text{sat}} \quad (4.1)$$

avec

$$\Gamma_{\text{sat}} = \frac{1}{4T_2} \frac{\Omega_s^2 + \Omega_w^2}{(\pi\Delta_e)^2 + 1/T_2^2} \quad (4.2)$$

où $T_2 = 105 \mu\text{s}$ représente la durée de vie des cohérences optiques, $\Delta_e = 1,115$ MHz l'écart en fréquence entre les sous-niveaux de l'état excité, et $\Omega_s = 1,32 \cdot 10^6 \text{ rad.s}^{-1}$ et $\Omega_w = 0,48 \cdot 10^6 \text{ rad.s}^{-1}$ les pulsations de Rabi du faisceau de détection sur la transition forte et la transition faible, respectivement¹. On trouve finalement un élargissement par saturation de $\Gamma_{\text{sat}} = 380$ Hz environ, négligeable devant la largeur mesurée de $\Gamma_{\text{mesure}} = 27 \pm 2$ kHz. Ainsi, cette largeur mesurée correspond bien à la largeur inhomogène de la transition entre les deux sous-niveaux hyperfins de l'état excité. La résolution que permettent d'obtenir les battements Raman cohérents est largement meilleure que la résolution offerte par la spectroscopie de hole-burning, alors même que le laser n'est pas asservi. En effet, dans les mesures décrites dans la partie 2.4.3, la largeur des structures était limitée inférieurement par la racine carrée du taux de chirp, qui valait alors $\sqrt{r} = 190$ kHz.

Influence du profil spectral de l'impulsion excitatrice

Nous avons étudié le comportement du signal de battements Raman cohérents en fonction du splitting de l'état excité Δ_e , pour 14 valeurs du champ magnétique, entre 0,012 T et 0,1 T. La transformée de Fourier du signal de battement Raman cohérent est calculée directement par l'oscilloscope numérique Tektronix TDS 3032B. Le champ magnétique est toujours orienté dans la direction qui optimise le rapport de branchement des systèmes en Λ et en V dans l'échantillon. Le laser n'est pas asservi en fréquence. L'impulsion excitatrice est rectangulaire, de durée $\tau_1 = 2 \mu\text{s}$. Ces enregistrements sont donnés dans la figure 4.3. Comme on s'y attendait, le signal décroît à mesure que l'on augmente le splitting Δ_e .

On a mesuré l'aire de l'impulsion excitatrice selon la transition forte pour les atomes sur l'axe du faisceau par une expérience de nutation optique (voir la partie 2.3.3 de ce manuscrit). Cette aire est de $0,83\pi$ radians. On a décrit de façon détaillée dans la

¹Le facteur 1/4 de l'équation (4.2) n'apparaît pas dans la référence [128], car les auteurs Brewer et Hahn ont utilisé une définition de la pulsation de Rabi différente de la nôtre.

partie 3.2.3 un calcul qui permet de donner l'allure théorique du signal de battement en fonction du splitting si l'impulsion excitatrice est monochromatique. En analysant les résultats de ce calcul, nous avons remarqué que selon l'aire de l'impulsion excitatrice, l'amplitude du signal de battement pouvait avoir des minima plus ou moins prononcés, espacés de l'inverse de la durée de l'impulsion. Cependant, ce calcul ne tient pas compte de la non-uniformité spatiale de l'excitation : en effet, le faisceau laser étant gaussien, seuls les atomes sur l'axe du faisceau voient réellement l'aire d'impulsion mesurée. C'est pourquoi l'allure théorique de l'amplitude du signal pour l'aire mesurée représentée dans la figure 3.8 reproduit assez mal les variations expérimentales, même si les positions des minima coïncident. Le signal de la figure 4.3 présente en effet des minima très marqués pour des valeurs du splitting Δ_e séparées de 500 kHz. On peut néanmoins conclure que ces variations proviennent bien de la forme temporelle rectangulaire de l'impulsion excitatrice.

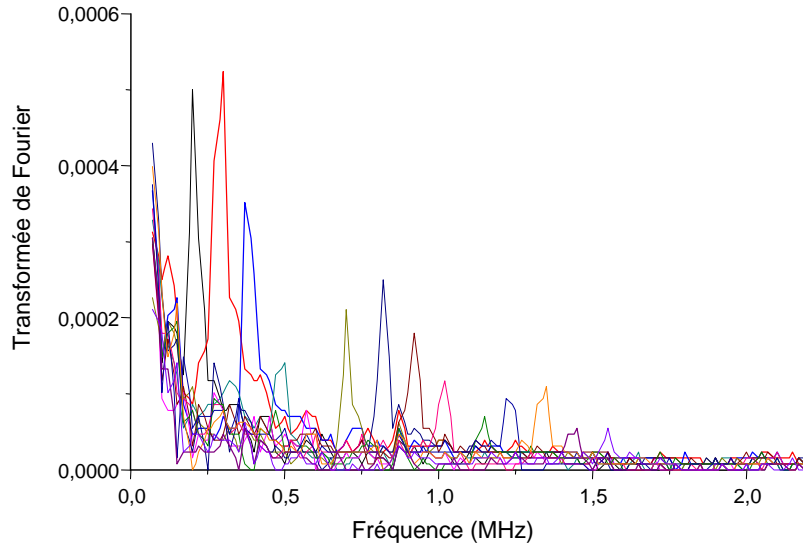


FIG. 4.3 – Transformée de Fourier des battements Raman cohérents obtenus pour différents champs magnétiques.

Battements Raman cohérents pour des splittings supérieurs à 1 MHz

Nous avons également observé des battements Raman cohérents en suivant l'exemple de Blasberg *et al.*, qui consiste à exciter le système avec une impulsion bichromatique [26]. Cette technique permet de s'affranchir de la limite imposée par la puissance du laser, et d'exciter et de détecter des cohérences de spin entre des sous-niveaux espacés de plus de 1 MHz.

On peut créer ces deux fréquences optiques à partir d'un seul modulateur acousto-optique. Toutefois, ces fréquences optiques seront portées par deux faisceaux se propageant

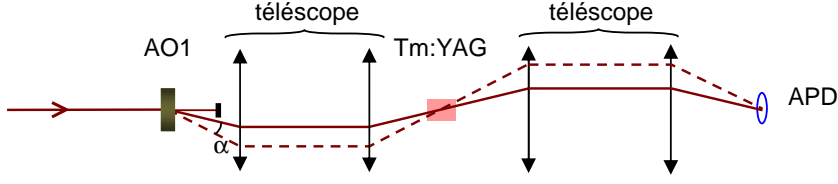


FIG. 4.4 – Production de deux fréquences par un modulateur acousto-optique. Les angles sont exagérés pour la lisibilité du schéma. Par deux télescopes, on image d'une part le modulateur acousto-optique AO1 sur le cristal de Tm :YAG et d'autre part le cristal sur le détecteur (APD), afin que le faisceau représenté par une ligne pointillée et le faisceau représenté par une ligne continue soient superposés sur le cristal de Tm :YAG et sur le détecteur.

dans des directions différentes. En effet, l'angle de déviation d'un faisceau diffracté dans l'ordre 1 par effet acousto-optique est donné par :

$$\theta_d = \frac{\lambda \nu_{ac}}{V} \quad (4.3)$$

où λ désigne la longueur d'onde optique, ν_{ac} désigne la fréquence de l'onde acoustique, et V désigne la vitesse des ondes acoustiques dans le cristal acousto-optique. Si deux ondes acoustiques de pulsation ν_{ac1} et ν_{ac2} se propagent dans un même cristal acousto-optique, le faisceau incident est diffracté selon deux directions différentes à la sortie de l'AO, comme le montre la figure 4.4. Ces deux faisceaux forment un angle

$$\alpha = \theta_d(\nu_{ac2}) - \theta_d(\nu_{ac1}) = \frac{\lambda \Delta \nu}{V} \quad (4.4)$$

où $\Delta \nu = \nu_{ac2} - \nu_{ac1} = \nu_2 - \nu_1$.

L'échantillon de Tm :YAG est placé en position d'imagerie par rapport au modulateur acousto-optique, c'est-à-dire que les deux faisceaux portant chacun une des deux fréquences de l'impulsion sont superposés sur l'échantillon, quel que soit l'angle qu'ils forment à la sortie de l'AO. De même, la surface sensible de la photodiode est placée en position d'imagerie par rapport à l'échantillon, pour que les deux faisceaux s'y superposent. Si l'on détecte la cohérence Raman avec un faisceau de fréquence ν_1 créé par le même acousto-optique AO1, celui-ci va suivre la direction de propagation de la composante à ν_1 de l'impulsion excitatrice. Le faisceau diffusé par *coherent Raman scattering* doit alors satisfaire la condition d'accord de phase fixée par la création de la cohérence Raman par l'impulsion excitatrice bichromatique. Il est émis dans la direction de propagation du faisceau à la fréquence ν_2 .

Deux faisceaux cohérents de fréquences optiques légèrement différentes ν_1 et ν_2 formant un angle α donnent naissance lorsqu'ils se croisent à des franges d'interférence

rectilignes, d'interfrange i et se déplaçant à la vitesse v_i . Un calcul simple permet d'obtenir :

$$i = \frac{\lambda}{2 \sin(\alpha/2)} \text{ et } v_i = (\nu_2 - \nu_1)i \quad (4.5)$$

où λ est la longueur d'onde moyenne des deux faisceaux. Si le diamètre du spot sur le détecteur est plus grand que l'interfrange, le signal de battement disparaît car le détecteur somme les intensités reçues sur toute sa surface. En revanche, si le diamètre du spot sur le détecteur est inférieure à la moitié de l'interfrange, celui-ci voit successivement une tache sombre, puis une tache brillante. Le défilement de la figure d'interférences donne un signal de battement oscillant à la fréquence $\Delta\nu = \nu_2 - \nu_1$ en sortie du détecteur. Comme le détecteur, l'échantillon et le modulateur acousto-optique sont imagés les uns sur les autres par des télescopes, la condition sur l'interfrange peut donc s'écrire de façon équivalente au niveau du détecteur et au niveau de l'AO. Soit w_0 le waist du faisceau gaussien incident au niveau de l'AO1, où sont formés les deux faisceaux. La condition sur l'interfrange s'écrit :

$$2w_0 \leq i \approx \frac{V}{\Delta\nu} \Rightarrow \Delta\nu \leq \frac{V}{2w_0} \quad (4.6)$$

Les ondes acoustiques se propagent à la vitesse $V = 4200 \text{ m.s}^{-1}$ dans le cristal acousto-optique (TeO_2) du modulateur AO1. Le waist du faisceau focalisé dans le modulateur acousto-optique AO1 est de $w_0 = 180 \mu\text{m}$. On en déduit que l'écart en fréquence des deux faisceaux doit être inférieur à 12 MHz pour que le signal de battement soit visible sur le détecteur.

Nous donnons en figure 4.5 un exemple de signal de battements Raman cohérents dans l'état excité du Tm :YAG pour lequel la cohérence Raman a été excitée par une impulsion bichromatique de $10 \mu\text{s}$ façonnée dans un seul modulateur acousto-optique. Le pic principal de la transformée de Fourier est situé à la fréquence $\Delta_e = 1,77 \text{ MHz}$, ce qui correspond à un champ magnétique de $0,11 \text{ T}$. La largeur inhomogène mesurée sur la transformée de Fourier du signal de battement est de $60 \pm 20 \text{ kHz}$.

Notons que dans une telle expérience, le choix de la température de l'échantillon est un compromis entre la réduction des durées de vie des cohérences (lorsque la température est élevée) et le pompage optique (lorsque la température est basse). En effet, les populations dans les sous-niveaux de l'état fondamental ont une durée de vie d'autant plus longue que la température est basse. Si le laser est asservi, l'impulsion bichromatique répétée pompe les ions résonnants optiquement vers l'autre sous-niveau du fondamental, non résonnant. Les ions quittent alors le système en V et le signal disparaît. Si le laser n'est pas asservi, en revanche, il présente une largeur très supérieure à la largeur homogène de la transition. Les impulsions bichromatiques répétées n'excitent donc pas les mêmes ions d'une fois sur l'autre, et l'effet de pompage optique de ces impulsions est réduit, même à basse température. Par ailleurs, on peut remarquer que la résolution kHz que l'on peut atteindre

n'est pas limitée par la largeur spectrale du laser. Elle est inférieure à 100kHz, que le laser soit asservi ou non.

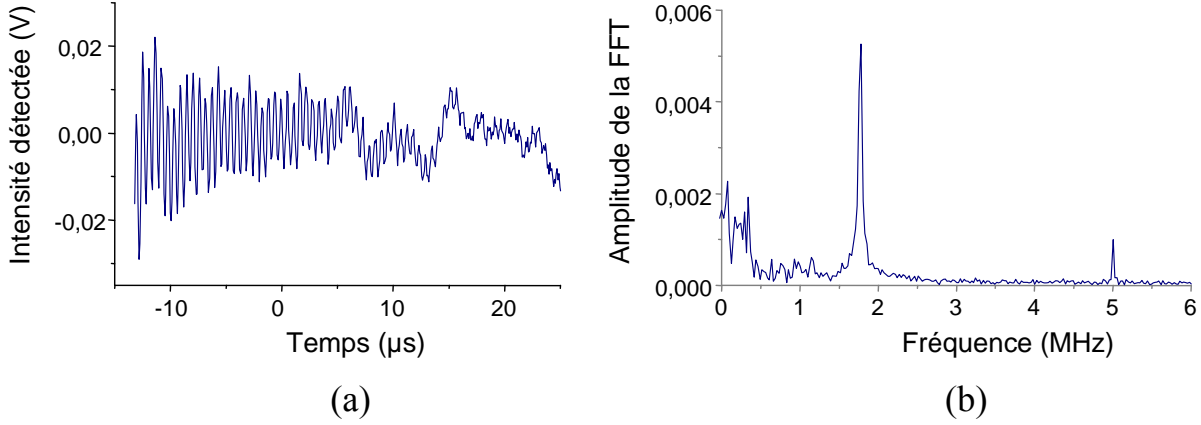


FIG. 4.5 – Battements Raman cohérents dans l'état excité du $\text{Tm}:\text{YAG}$ avec excitation bichromatique. (a) signal de battement sur le détecteur. Le fond a été soustrait ; (b) Transformée de Fourier en amplitude du signal de battement pour un champ magnétique de 0,11 T. Le pic à 5 MHz est dû à une résonance piézoélectrique du cristal électro-optique inséré dans la cavité laser. L'échantillon est refroidi à $T = 2,8$ K et le laser est asservi.

Ainsi, une impulsion bichromatique permet d'exciter et de détecter des cohérences hyperfines dans des niveaux séparés par des splittings supérieurs au MHz, mais elle est limitée à une dizaine de MHz si les deux fréquences sont générées dans un seul modulateur acousto-optique monté en simple passage. Pour dépasser cette limite, les deux fréquences doivent être créées par deux modulateurs acousto-optiques distincts, soit pour que les deux faisceaux se propagent exactement dans le même mode spatial [26], soit pour justement fixer un angle important entre les deux faisceaux [129]. Dans ce dernier cas, le champ Stokes ou anti-Stokes émis par les atomes lors de la diffusion Raman cohérente forme un angle important avec le faisceau de détection. On pourra alors soit le détecter sur fond noir, soit créer un battement grâce à un faisceau supplémentaire servant d'oscillateur local et ne passant pas à travers le cristal étudié.

4.1.2 Battements Raman cohérents dans l'état fondamental

L'observation des battements Raman cohérents dans l'état fondamental de l'ion thulium pose problème. En effet, imaginons que l'on veuille utiliser une impulsion monochromatique courte pour exciter les cohérences de spin du fondamental. La largeur spectrale de cette impulsion doit être supérieure à l'écart en fréquence Δ_g . Or, lorsque le champ magnétique externe est orienté dans la direction donnant un rapport de branchement op-

timal, l'écart énergétique de l'état fondamental Δ_g est 2,5 fois plus grand que celui de l'état excité Δ_e . L'impulsion est donc suffisamment large spectralement pour exciter en même temps les quatre transitions du système. Le fait d'exciter simultanément les deux systèmes en Λ existants (voir la figure 4.6) peut réduire l'efficacité de l'excitation de la cohérence Raman de l'état fondamental. On peut écrire chaque état comme produit de la fonction d'onde électronique $|\Psi_e\rangle$ ou $|\Psi_g\rangle$ selon l'état électronique considéré, et d'une fonction d'onde nucléaire $|\chi\rangle$. Les moments dipolaires associés aux quatre transitions optiques du système sont donnés par :

$$\mu_{ab} = \langle a | \vec{\mu} | b \rangle = \langle \Psi_g | \vec{\mu} | \Psi_e \rangle \langle \chi_a | \chi_b \rangle \quad (4.7)$$

$$\mu_{cb} = \langle c | \vec{\mu} | b \rangle = \langle \Psi_g | \vec{\mu} | \Psi_e \rangle \langle \chi_c | \chi_b \rangle \quad (4.8)$$

$$\mu_{ad} = \langle a | \vec{\mu} | d \rangle = \langle \Psi_g | \vec{\mu} | \Psi_e \rangle \langle \chi_a | \chi_d \rangle \quad (4.9)$$

$$\mu_{cd} = \langle c | \vec{\mu} | d \rangle = \langle \Psi_g | \vec{\mu} | \Psi_e \rangle \langle \chi_c | \chi_d \rangle \quad (4.10)$$

Les parties électroniques des moments dipolaires sont les mêmes pour les quatre transitions. Les parties nucléaires $|\chi_c\rangle$ et $|\chi_d\rangle$ s'obtiennent à partir de $|\chi_a\rangle$ et $|\chi_b\rangle$ par une transformation unitaire. C'est pourquoi $\langle \chi_c | \chi_d \rangle = \langle \chi_a | \chi_b \rangle^*$ et $\langle \chi_a | \chi_d \rangle = -\langle \chi_c | \chi_b \rangle^*$. Ainsi, les moments dipolaires μ_{cd} et μ_{ad} sont directement reliés à μ_{ab} et μ_{cb} par :

$$\mu_{cd} = \mu_{ab}^* \quad \text{et} \quad \mu_{ad} = -\mu_{cb}^* \quad (4.11)$$

La cohérence Raman créée dans l'état fondamental par excitation simultanée des deux systèmes en Λ est donnée par la somme de deux termes, l'un correspondant à la cohérence Raman excitée dans le système $|a\rangle, |b\rangle, |c\rangle$, et l'autre excitée dans le système $|a\rangle, |d\rangle, |c\rangle$. Chacune de ces composantes est proportionnelle au produit des pulsations de Rabi le long des deux transitions optiques formant le Λ . La fréquence de Rabi est, elle, proportionnelle au moment dipolaire de la transition excitée. Ainsi, la cohérence Raman créée dans le système $|a\rangle, |b\rangle, |c\rangle$ est proportionnelle à $\mu_{ab}\mu_{bc}$, alors que l'autre cohérence Raman, créée dans le système $|a\rangle, |d\rangle, |c\rangle$, est proportionnelle à $\mu_{ad}\mu_{dc} = -\mu_{cb}^*\mu_{ba}^* = -\mu_{ab}\mu_{bc}$. Ces deux termes sont de signe opposé et peuvent se compenser.

Par ailleurs, on ne peut pas exciter la cohérence de spin de l'état fondamental sans exciter aussi la cohérence de spin de l'état excité, lorsque l'on utilise une impulsion courte et monochromatique. On peut éviter cela en utilisant une impulsion excitatrice bichromatique. En effet, dans ce cas, seules les cohérences de spin pour lesquelles la condition de résonance à deux photons est vérifiée peuvent être excitées. Notons que cela n'évite pas pour autant l'excitation simultanée de la cohérence Raman de l'état fondamental par l'intermédiaire de deux systèmes en Λ .

L'élargissement inhomogène particulièrement élevé dans l'état fondamental que nous avons observé dans le chapitre précédent (partie 2.4.3) constitue un obstacle majeur à

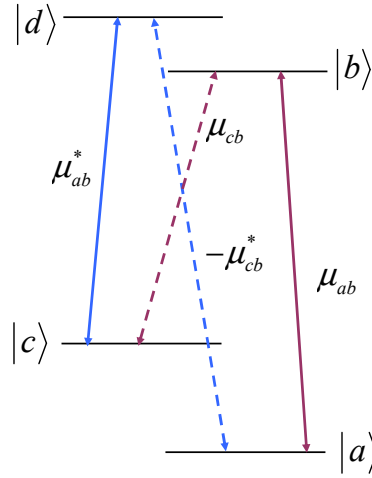


FIG. 4.6 – Deux systèmes en Λ dans le Tm. Les transitions faibles sont représentées par des traits pointillés.

l'observation des battements Raman cohérents. D'une part, le signal de précession libre optique décroît en un temps caractéristique de l'ordre de la durée de l'impulsion τ_1 , que cette impulsion soit monochromatique ou bichromatique. Pour éliminer ce signal de précession libre, il est nécessaire de laisser le système évoluer librement pendant plusieurs τ_1 avant d'appliquer l'impulsion de détection. D'autre part, le signal provenant de la conversion optique de la cohérence Raman décroît en un temps caractéristique de l'ordre de l'inverse de la largeur inhomogène Raman. Le temps d'évolution libre doit donc être à la fois grand devant τ_1 et petit devant l'inverse de la largeur inhomogène Raman Γ_{inh} . Ceci n'est possible que si $\tau_1 \ll 1/\Gamma_{inh}$. Or, la puissance laser disponible étant limitée, la durée τ_1 des impulsions ne peut pas être réduite à volonté.

De plus, des réflexions acoustiques donnent lieu à l'émission d'une seconde impulsion lumineuse, de très faible intensité. Dans le modulateur acousto-optique utilisé pour les expériences de battements Raman cohérents (ST102.5 de AA OptoElectronics), cette impulsion est décalée de $16 \mu\text{s}$ et son intensité est réduite d'un facteur 2500 par rapport à l'impulsion principale. Cette atténuation importante n'est toutefois pas suffisante car cette deuxième impulsion perturbe excessivement le signal de battements Raman cohérents quand l'impulsion de détection est branchée avant son apparition. Le temps d'attente entre l'impulsion excitatrice et la détection doit donc être supérieur à $20 \mu\text{s}$. Ainsi, pour que le signal soit visible, l'élargissement inhomogène Raman Γ_{inh} doit être très inférieur à 50 kHz. Cela correspond à limiter les expériences à des splittings $\Delta_g \ll 2 \text{ MHz}$. Le seul moyen d'observer un signal optique provenant des cohérences de spin dans l'état fondamental du Tm consiste à compenser l'élargissement inhomogène au moyen d'expériences d'*écho Raman* [123].

4.2 Extension de l'étude théorique à un système à 4 niveaux

Nous avons présenté dans la partie 3.2 de ce manuscrit une analyse théorique de la formation du signal de battements Raman cohérents et d'écho Raman dans le cas d'un système à 3 niveaux présentant un élargissement inhomogène optique important. Cette étude nous servira de guide pour optimiser les différentes étapes de l'expérience. Cependant, comme nous venons de le mentionner, l'ion Tm présente 4 niveaux, et deux systèmes en Λ construits sur ces 4 niveaux. Les transitions n'étant pas sélectives en polarisation, chaque champ peut exciter toutes les transitions. Dans un tel système, les différents processus que nous avons étudiés (création de la cohérence de spin, inversion de phase, détection par diffusion Raman cohérente) ont lieu simultanément dans les deux systèmes en Λ .

4.2.1 Excitation d'une cohérence de spin par une impulsion bichromatique

On s'intéresse ici à un système à 4 niveaux excité par une impulsion bichromatique, de fréquences optiques ω_{L1} et ω_{L2} telles que $\omega_{L1} - \omega_{L2} = \Delta_g$. Comme les quatre transitions atomiques ne sont pas sélectives en polarisation, il faudrait en principe considérer l'excitation de chaque transition par les deux champs. Or, il semble naturel de supposer que l'excitation d'une cohérence de spin n'est efficace que si la condition de résonance à deux photons est satisfaite. Nous restreindrons donc cette étude au cas où la composante de l'excitation à la fréquence ω_{L1} excite seulement les transitions $|a\rangle \rightarrow |b\rangle$ et $|a\rangle \rightarrow |d\rangle$, et la composante de l'excitation à la fréquence ω_{L2} excite seulement les transitions $|c\rangle \rightarrow |b\rangle$ et $|c\rangle \rightarrow |d\rangle$, comme cela est représenté sur la figure 4.7. On note Ω_1 et Ω_2 les pulsations de Rabi de l'impulsion excitatrice selon les transitions $|a\rangle \rightarrow |b\rangle$ et $|c\rangle \rightarrow |b\rangle$. Ces deux systèmes en Λ ont des probabilités de transitions inversées. Plus précisément, les transitions $|a\rangle \rightarrow |b\rangle$ et $|c\rangle \rightarrow |d\rangle$ sont les transitions fortes, et $|c\rangle \rightarrow |b\rangle$ et $|a\rangle \rightarrow |d\rangle$ sont les transitions faibles. Les pulsations de Rabi de l'impulsion excitatrice selon les transitions $|a\rangle \rightarrow |d\rangle$ et $|c\rangle \rightarrow |d\rangle$ sont donc respectivement $\Omega_1 \mu_{ad} / \mu_{ab}$ et $\Omega_2 \mu_{cd} / \mu_{cb}$.

L'état de l'atome à 4 niveaux est décrit par la fonction $|\psi\rangle = a(t)|a\rangle + b(t)|b\rangle + c(t)|c\rangle + d(t)|d\rangle$. On appelle Δ l'écart à la résonance optique des composantes spectrales de l'impulsion excitatrice par rapport aux transitions $|a\rangle \rightarrow |b\rangle$ et $|c\rangle \rightarrow |b\rangle$. Le désaccord optique dans l'autre système en Λ est donc $\Delta + \Delta_e$. L'évolution du système est décrite

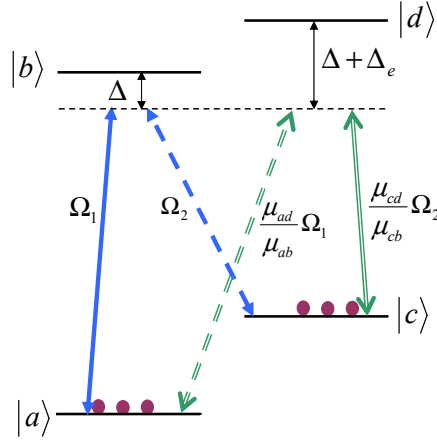


FIG. 4.7 – Création d'une cohérence de spin par l'intermédiaire de deux systèmes en Λ dans un système à 4 niveaux. Les transitions fortes (respectivement, faibles) sont représentées par des flèches en traits pleins (pointillés).

par l'équation de Schrödinger qui se met sous la forme suivante :

$$\begin{pmatrix} \dot{\underline{a}} \\ \dot{\underline{b}} \\ \dot{\underline{c}} \\ \dot{\underline{d}} \end{pmatrix} = \frac{i}{2} \begin{pmatrix} 0 & \Omega_1 & 0 & \frac{\mu_{ad}}{\mu_{ab}} \Omega_1 \\ \Omega_1^* & -2\Delta & \Omega_2^* & 0 \\ 0 & \Omega_2 & 0 & \frac{\mu_{cd}}{\mu_{cb}} \Omega_2 \\ \frac{\mu_{ad}^*}{\mu_{ab}^*} \Omega_1^* & 0 & \frac{\mu_{cd}^*}{\mu_{cb}^*} \Omega_2^* & -2(\Delta + \Delta_e) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \underline{a} \\ \underline{b} \\ \underline{c} \\ \underline{d} \end{pmatrix} \quad (4.12)$$

avec les changements de variables :

$$\begin{aligned} a(t) &= \underline{a}(t)e^{-i\omega_a t} \\ b(t) &= \underline{b}(t)e^{-i\omega_b t}e^{i\Delta t} \\ c(t) &= \underline{c}(t)e^{-i\omega_c t} \\ d(t) &= \underline{d}(t)e^{-i\omega_b t}e^{i(\Delta + \Delta_e)t} \end{aligned} \quad (4.13)$$

Même lorsque la condition de résonance Raman est satisfaite, il n'est pas possible de trouver une solution analytique simple sous forme d'un opérateur évolution $\hat{U}(t)$. Nous avons néanmoins pu modéliser l'action d'une impulsion optique bichromatique dans un système à 4 niveaux, en résolvant numériquement le système différentiel donné dans l'équation (4.12).

Système initialement à l'équilibre thermique

On se donne un système à 4 niveaux dont les populations sont initialement réparties également dans les deux sous-niveaux $|a\rangle$ et $|c\rangle$ de l'état fondamental. On excite ce système avec une impulsion bichromatique de durée τ_1 , et dont l'action est décrite par le

système différentiel de l'équation (4.12). On résout ce système d'une part avec les conditions initiales $a(0) = 1$, $c(0) = 0$ et d'autre part avec les conditions initiales $a(0) = 0$, $c(0) = 1$, afin de rendre compte du mélange statistique. On obtient alors la cohérence de spin $\rho_{ac}^{(1,0)}(\tau_1, \Delta)$ pour le premier cas et $\rho_{ac}^{(0,1)}(\tau_1, \Delta)$ pour le second. La cohérence Raman créée par l'impulsion bichromatique dans un système initialement dans un état de mélange statistique est donnée par : $\rho_{ac}(\tau_1, \Delta) = 1/2[\rho_{ac}^{(1,0)}(\tau_1, \Delta) + \rho_{ac}^{(0,1)}(\tau_1, \Delta)]$.

Les aires de l'impulsion bichromatique sont optimisées pour le système $|a\rangle, |b\rangle, |c\rangle$, c'est-à-dire $\Omega_1\tau_1 = \Omega_2\tau_1 = \pi/\sqrt{2}$. On obtient dans l'état fondamental une cohérence Raman dont le module est donné dans la figure 4.8. On a aussi représenté sur cette figure la cohérence Raman optimale créée dans un système à 3 niveaux par la même impulsion bichromatique.

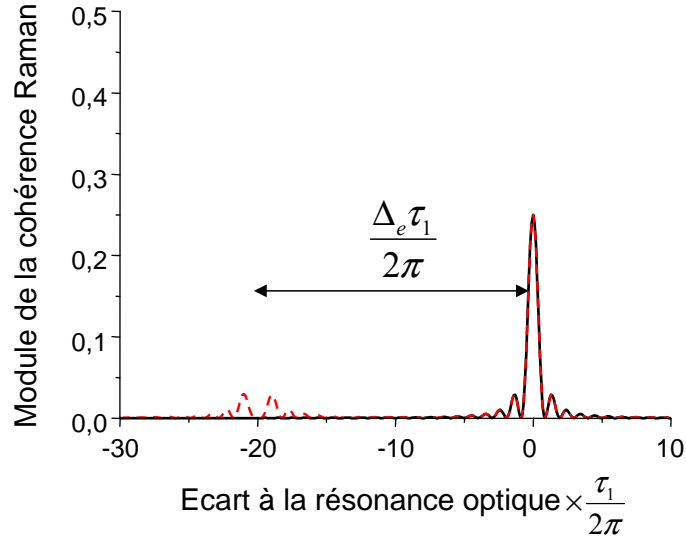


FIG. 4.8 – Module de la cohérence de spin créée par une impulsion bichromatique de durée τ_1 dans un système initialement à l'équilibre thermique, en fonction du désaccord optique par rapport au système $|a\rangle, |b\rangle, |c\rangle$. Les aires de l'impulsion sont $\Theta_1 = \Theta_2 = \pi/\sqrt{2}$ sur les transitions $|a\rangle \rightarrow |b\rangle$ et $|c\rangle \rightarrow |b\rangle$. Ligne continue : système à 3 niveaux. Ligne pointillée : système à 4 niveaux. Le splitting des sous-niveaux de l'état excité est choisi tel que $\Delta_e\tau_1/2\pi = 20$.

L'égalité de population des deux sous-niveaux $|a\rangle$ et $|c\rangle$ inhibe l'excitation à deux photons. C'est pourquoi la cohérence de spin n'est créée que dans les atomes résonnants optiquement avec l'impulsion excitatrice. La résonance optique pouvant avoir lieu dans l'un ou l'autre des systèmes en Λ , la cohérence Raman est non nulle au voisinage des fréquences $\Delta = 0$, correspondant à la résonance optique dans le système $|a\rangle, |b\rangle, |c\rangle$ et $\Delta = -\Delta_e$, correspondant à la résonance optique dans le système $|a\rangle, |d\rangle, |c\rangle$.

La contribution du système $|a\rangle, |b\rangle, |c\rangle$, centrée sur $\Delta = 0$ n'est quasiment pas modifiée par l'ajout du quatrième niveau. La cohérence de spin vaut 0,25 à $\Delta = 0$. En revanche, la cohérence créée dans le système $|a\rangle, |d\rangle, |c\rangle$ (centrée sur $\Delta = -\Delta_e$) est nettement moins importante, car les aires d'impulsion selon les transitions $|a\rangle \rightarrow |d\rangle$ et $|c\rangle \rightarrow |d\rangle$ sont respectivement $0,25\pi$ et $1,96\pi$, et ne sont plus optimales.

Système préparé dans un état pur

On considère maintenant que le système à 4 niveaux a été préparé dans l'état $|a\rangle$. On résout le système différentiel de l'équation (4.12) avec les conditions initiales $a(0) = 1$, $b(0) = c(0) = d(0) = 0$.

On a représenté sur la figure 4.9 le module de la cohérence Raman pour les aires d'impulsions optimales déterminées dans la partie 3.2.4 : $\Omega_1\tau_1 = 2\pi \cos(\pi/8)$ et $\Omega_2\tau_1 = 2\pi \sin(\pi/8)$. On a aussi ajouté à la figure le module de la cohérence Raman créée par la même impulsion bichromatique dans un système à 3 niveaux.

La préparation des atomes dans un seul état autorise l'excitation de la cohérence de spin par l'intermédiaire d'un processus à deux photons. On voit en effet dans la figure 4.9 que la cohérence Raman est créée aussi dans les atomes relativement éloignés de la résonance optique avec l'un ou l'autre des systèmes en Λ . Son module décroît comme l'inverse du désaccord optique, ce qui est caractéristique d'une excitation à deux photons.

La contribution du système $|a\rangle, |b\rangle, |c\rangle$, centrée sur $\Delta = 0$ est légèrement modifiée par l'ajout du quatrième niveau. La cohérence de spin vaut 0,5 à $\Delta = 0$. La cohérence de spin créée dans le système $|a\rangle, |d\rangle, |c\rangle$ (centrée sur $\Delta = -\Delta_e$) est différente, car les aires d'impulsion selon les transitions $|a\rangle \rightarrow |d\rangle$ et $|c\rangle \rightarrow |d\rangle$ sont respectivement $0,66\pi$ et $2,13\pi$. Ces aires d'impulsions correspondent à une excitation quasiment optimale, comme on peut le voir sur la figure 3.12. C'est pourquoi les contributions des deux systèmes en Λ sont assez semblables. Lorsque $\Delta = -\Delta_e/2$, les deux systèmes en Λ interfèrent destructivement, et la cohérence Raman créée dans les sous-niveaux de l'état fondamental s'annule. Ceci est vrai pour n'importe quelle valeur du rapport de branchement.

Les parties réelle et imaginaire de la cohérence Raman créée sont représentées dans la figure 4.10. Comme dans le cas d'un système à 3 niveaux, on voit que la partie réelle décroît comme l'inverse du carré du désaccord optique, tandis que la partie imaginaire décroît comme l'inverse du désaccord. Ces deux comportements sont caractéristiques d'une excitation à un photon pour la partie réelle, et d'une excitation à 2 photons pour la partie imaginaire.

La préparation du système dans le sous-niveau $|a\rangle$ de l'état fondamental est effectuée par pompage optique à l'aide d'une impulsion balayée en fréquence. Si l'intervalle balayé est plus grand que $\Delta_g - \Delta_e$, où Δ_g est l'écart entre les sous-niveaux $|a\rangle$ et $|c\rangle$, certains ions

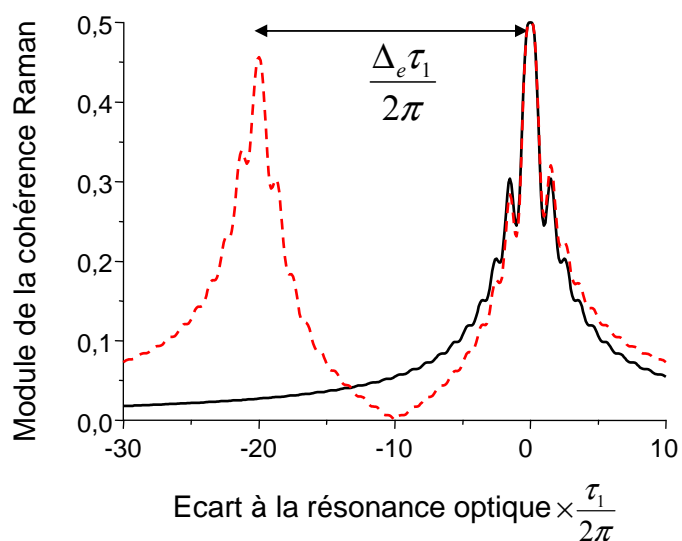


FIG. 4.9 – Module de la cohérence de spin créée par une impulsion bichromatique de durée τ_1 , en fonction du désaccord optique $\Delta\tau_1/2\pi$. Les ions sont initialement préparés dans un des sous-niveaux fondamentaux. Les aires d'impulsion sont $2\pi \sin(\pi/8)$ sur la transition initialement vide d'atomes et $2\pi \cos(\pi/8)$ sur l'autre. Ligne continue : système à 3 niveaux. Ligne pointillée : système à 4 niveaux. Le splitting entre les sous-niveaux de l'état excité est choisi tel que $\Delta_e \tau_1/2\pi = 20$.

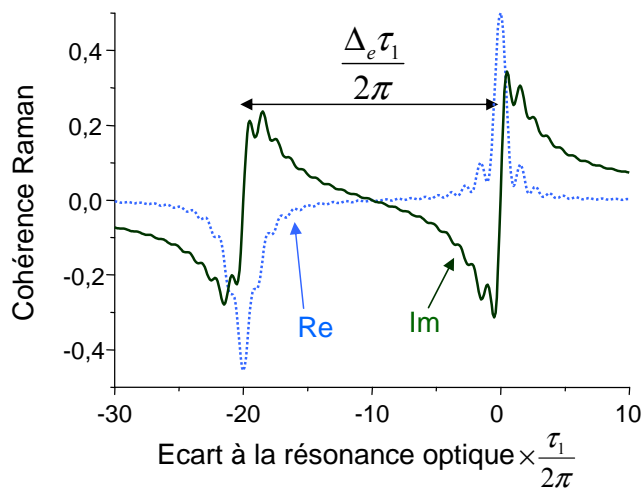


FIG. 4.10 – Parties réelle (ligne continue) et imaginaire (ligne pointillée) de la cohérence de spin créée par une impulsion bichromatique de durée τ_1 dans un système à 4 niveaux.

sont repompés du niveau $|a\rangle$ vers le niveau $|c\rangle$. La préparation est donc nécessairement confinée dans une fraction du profil inhomogène de largeur inférieure à $\Delta_g - \Delta_e$. La cohérence Raman ne peut donc être excitée sur un intervalle plus grand que $\Delta_g - \Delta_e$.

4.2.2 Détection d'une cohérence de spin dans un système à 4 niveaux

La détection d'une cohérence de spin est effectuée par diffusion Raman cohérente. On applique pour cela un champ de lecture monochromatique et d'intensité constante sur l'échantillon à l'instant t_0 . On suppose qu'une cohérence de spin $\rho_{ac}(t_0, \Delta)$ a été préparée dans l'état fondamental. Soit Ω la pulsation de Rabi du champ de lecture selon la transition $|c\rangle \rightarrow |b\rangle$. On note Δ le désaccord du champ de lecture par rapport à la transition $|c\rangle \rightarrow |b\rangle$.

Comme dans le chapitre 3, nous allons d'abord nous intéresser au champ anti-Stokes diffusé par le système. On suppose pour cela que le champ de lecture n'excite que les transitions $|c\rangle \rightarrow |b\rangle$ et $|c\rangle \rightarrow |d\rangle$. Le champ de réponse du système est émis dans les deux systèmes en Λ selon les transitions $|a\rangle \rightarrow |b\rangle$ et $|a\rangle \rightarrow |d\rangle$, comme le montre la figure 4.11.

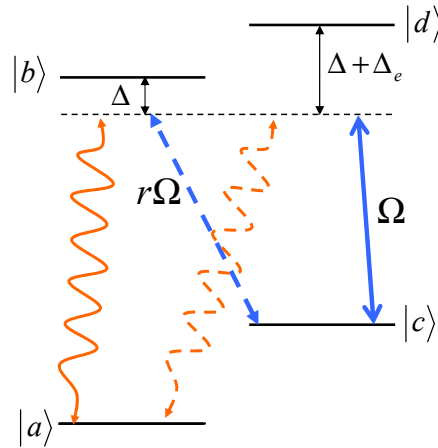


FIG. 4.11 – Détection d'une cohérence de spin par l'intermédiaire de deux systèmes en Λ . On a seulement représenté la formation du champ anti-Stokes généré selon les transitions $|a\rangle \rightarrow |b\rangle$ et $|a\rangle \rightarrow |d\rangle$, représentées par des flèches en zigzags. Les transitions fortes (respectivement, faibles) sont représentées par des flèches en traits pleins (pointillés).

L'état de l'atome à 4 niveaux est décrit par la fonction $|\psi\rangle = a(t)|a\rangle + b(t)|b\rangle + c(t)|c\rangle + d(t)|d\rangle$. En présence d'un champ de lecture, son évolution est décrite par l'équation de

Schrödinger, qui se met sous la forme suivante :

$$\begin{pmatrix} \dot{\underline{a}} \\ \dot{\underline{b}} \\ \dot{\underline{c}} \\ \dot{\underline{d}} \end{pmatrix} = \frac{i}{2} \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -2(\Delta + \Delta_g) & \Omega^* & 0 \\ 0 & \Omega & -2\Delta_g & \frac{\mu_{cd}}{\mu_{cb}}\Omega \\ 0 & 0 & \frac{\mu_{cd}^*}{\mu_{cb}^*}\Omega^* & -2(\Delta + \Delta_g + \Delta_e) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \underline{a} \\ \underline{b} \\ \underline{c} \\ \underline{d} \end{pmatrix} \quad (4.14)$$

avec les changements de variables :

$$\begin{aligned} a(t) &= \underline{a}(t)e^{-i\omega_a t} \\ b(t) &= \underline{b}(t)e^{-i\omega_b t}e^{i\Delta t} \\ c(t) &= \underline{c}(t)e^{-i\omega_c t}e^{i\Delta_g t} \\ d(t) &= \underline{d}(t)e^{-i\omega_d t}e^{i(\Delta + \Delta_e)t} \end{aligned} \quad (4.15)$$

Les cohérences optiques $\rho_{ab}(t, \Delta)$ et $\rho_{ad}(t, \Delta)$ créées par le champ de lecture s'écrivent :

$$\rho_{ab}(t, \Delta)e^{i(\omega_L + \Delta_g)t} = \underline{b}(t)\rho_{ac}(t_0, \Delta)e^{-i\Delta_g t_0} \quad (4.16)$$

$$\rho_{ad}(t, \Delta)e^{i(\omega_L + \Delta_g)t} = \underline{d}(t)\rho_{ac}(t_0, \Delta)e^{-i\Delta_g t_0} \quad (4.17)$$

où $\underline{b}(t)$ et $\underline{d}(t)$ sont calculés d'après l'équation différentielle (4.14) avec comme conditions initiales : $\underline{a}(t_0) = \underline{b}(t_0) = \underline{d}(t_0) = 0$ et $\underline{c}(t_0) = 1$. L'amplitude du champ anti-Stokes rayonné par les cohérences optiques ρ_{ab} et ρ_{ad} est donnée par :

$$E_{AS}(t) = i\frac{kL}{2\epsilon_0}e^{i(\omega_L + \Delta_g)t} \int d\Delta G(\Delta) [\mu_{ab}\rho_{ab}(t, \Delta) + \mu_{ad}\rho_{ad}(t, \Delta)] \quad (4.18)$$

Si on s'intéresse au champ Stokes, il faut considérer que le champ de lecture excite seulement les transitions $|a\rangle \rightarrow |b\rangle$ et $|a\rangle \rightarrow |d\rangle$. Ω est aussi la pulsation de Rabi du champ de lecture selon la transition $|a\rangle \rightarrow |d\rangle$. L'évolution du système est donnée par le système différentiel suivant :

$$\begin{pmatrix} \dot{\underline{a}} \\ \dot{\underline{b}} \\ \dot{\underline{c}} \\ \dot{\underline{d}} \end{pmatrix} = \frac{i}{2} \begin{pmatrix} 0 & \frac{\mu_{ab}}{\mu_{ad}}\Omega & 0 & \Omega \\ \frac{\mu_{ab}^*}{\mu_{ad}^*}\Omega^* & -2(\Delta + \Delta_g) & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -2\Delta_g & 0 \\ \Omega^* & 0 & 0 & -2(\Delta + \Delta_g + \Delta_e) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \underline{a} \\ \underline{b} \\ \underline{c} \\ \underline{d} \end{pmatrix} \quad (4.19)$$

où \underline{a} , \underline{b} , \underline{c} , et \underline{d} sont définis par l'équation (4.15). Les cohérences optiques $\rho_{cb}(t, \Delta)$ et $\rho_{cd}(t, \Delta)$ créées par le champ de lecture s'écrivent :

$$\rho_{cb}(t, \Delta)e^{i(\omega_L - \Delta_g)t} = \underline{b}(t)\rho_{ca}(t_0, \Delta)e^{i\Delta_g t_0} \quad (4.20)$$

$$\rho_{cd}(t, \Delta)e^{i(\omega_L - \Delta_g)t} = \underline{d}(t)\rho_{ca}(t_0, \Delta)e^{i\Delta_g t_0} \quad (4.21)$$

où $\underline{b}(t)$ et $\underline{d}(t)$ sont calculés d'après l'équation différentielle (4.19) avec comme conditions initiales : $\underline{b}(t_0) = \underline{c}(t_0) = \underline{d}(t_0) = 0$ et $\underline{a}(t_0) = 1$. L'amplitude du champ Stokes s'écrit alors :

$$E_S(t) = i \frac{kL}{2\epsilon_0} e^{i(\omega_L - \Delta_g)t} \int d\Delta G(\Delta) [\mu_{cb}\rho_{cb}(t, \Delta) + \mu_{cd}\rho_{cd}(t, \Delta)] \quad (4.22)$$

Comme dans la partie 3.2.2, l'amplitude du signal de battement avec le champ de lecture est proportionnelle à $|E_{AS}(t) + E_S^*(t)|$.

4.2.3 Impulsion rephasante

L'impulsion bichromatique que l'on insère dans une séquence de battements Raman cohérents permet de transformer ρ_{ac} en ρ_{ca} . Pour évaluer l'efficacité de conversion dans un double système en Λ , on résout le système différentiel de l'équation (4.12) d'une part avec les conditions initiales $a(0) = 1$, $c(0) = 0$ et d'autre part avec les conditions initiales $a(0) = 0$, $c(0) = 1$.

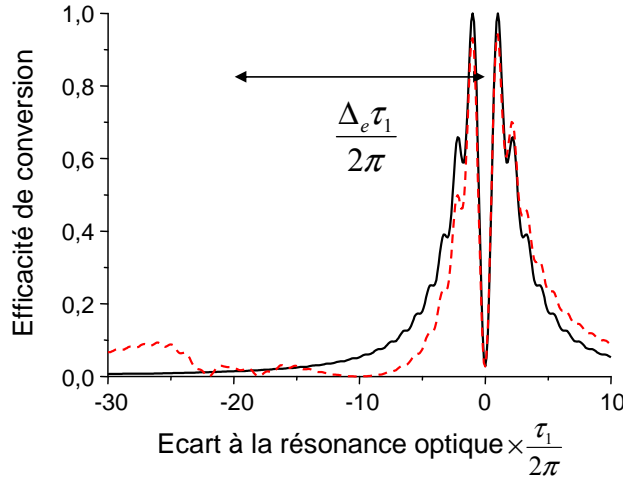


FIG. 4.12 – Efficacité de conversion de la cohérence Raman en fonction du désaccord optique $\Delta''\tau_2/2\pi$. Les pulsations de Rabi dans le système $|a\rangle, |b\rangle, |c\rangle$ sont $\Omega_1'' = \Omega_2'' = 2,45\pi$. Ligne continue : système à 3 niveaux. Ligne pointillée : système à 4 niveaux. Le splitting des sous-niveaux de l'état excité est choisi tel que $\Delta_e\tau_1/2\pi = 20$.

On a représenté dans la figure 4.12 l'efficacité de conversion de la cohérence Raman lors de la seconde impulsion, dans un système à 4 niveaux, avec $\Omega_1''\tau_2 = \Omega_2''\tau_2 = 2,45\pi$ le long des transitions du système $|a\rangle, |b\rangle, |c\rangle$. On a aussi représenté sur la même figure l'efficacité de conversion dans un système à 3 niveaux.

Pour ces pulsations de Rabi, la conversion est très peu efficace dans le système $|a\rangle, |d\rangle, |c\rangle$. En effet, les aires de cette seconde impulsion selon les transitions $|a\rangle \rightarrow |d\rangle$

et $|c\rangle \rightarrow |d\rangle$ sont respectivement $0,88\pi$ et $6,8\pi$. Ainsi, l'inversion de phase semble n'avoir lieu que dans un seul des systèmes en Λ .

Nous nous sommes aussi intéressés aux modifications de l'efficacité de conversion lorsque l'on modifie les aires de la seconde impulsion. Comme dans le cas d'un système à 3 niveaux (voir la partie 3.2.5), nous avons observé que la position du maximum de conversion, ainsi que la largeur du domaine spectral sur lequel les cohérences sont inversées, dépendent des aires d'impulsions choisies. Ainsi, en agissant sur l'intensité et sur les fréquences optiques de l'impulsion rephasante, il est possible d'ajuster la largeur de la fenêtre de rephasage et de la centrer sur les atomes porteurs d'une cohérence de spin.

4.3 Résultats expérimentaux

4.3.1 Dispositif expérimental

Comme nous l'avons déjà mentionné dans la partie 4.1.1 de ce chapitre, pour pouvoir exciter les cohérences Raman dans un système où le splitting est important (quelques dizaines de MHz typiquement), il est nécessaire de créer les deux fréquences ω_{L1} et ω_{L2} par deux modulateurs acousto-optiques distincts. De plus, la réponse radiative que constitue le signal d'écho Raman est, comme dans l'écho de photon, séparée temporellement de l'excitation. Ce signal est détecté par diffusion Raman cohérente par battements avec un faisceau moins intense que les impulsions excitatrices. L'expérience d'écho Raman peut donc être réalisée dans un montage à un seul faisceau, si on arrive à recombinaison des faisceaux sortant des AO pour que les faisceaux incidents sur l'échantillon soient bien copropageants.

On modifie pour cela le montage donné dans le chapitre 2. Le montage utilisé ici est représenté dans la figure 4.13. On utilise la même source laser, asservie par la méthode de Pound-Drever-Hall sur une cavité Fabry-Pérot. Le faisceau est amplifié à l'aide du BoosTA (Toptica). Le faisceau sortant de l'amplificateur est ensuite séparé en deux faisceaux d'intensités égales par un cube séparateur de polarisation. Sur chacune des deux voies, on réalise un montage en double passage d'un modulateur acousto-optique MT110 (AA OptoElectronics). Ce modulateur a une bande passante nominale de 50 MHz autour de la fréquence 110 MHz. Le montage en double passage est schématisé sur la figure 4.14. Le faisceau est focalisé dans le cristal acousto-optique. Au premier passage, le faisceau est séparé en plusieurs ordres de diffraction. Le faisceau d'ordre zéro est arrêté par un carton noir. Le faisceau d'ordre 1 est réfléchi sur un miroir à incidence normale. Ainsi, le faisceau réfléchi parcourt en sens inverse le chemin du faisceau incident. On a vu que tout changement de la fréquence acoustique modifie la direction de propagation du faisceau diffracté d'ordre 1. Pour que le faisceau revienne sur ses pas quelle que soit la fréquence

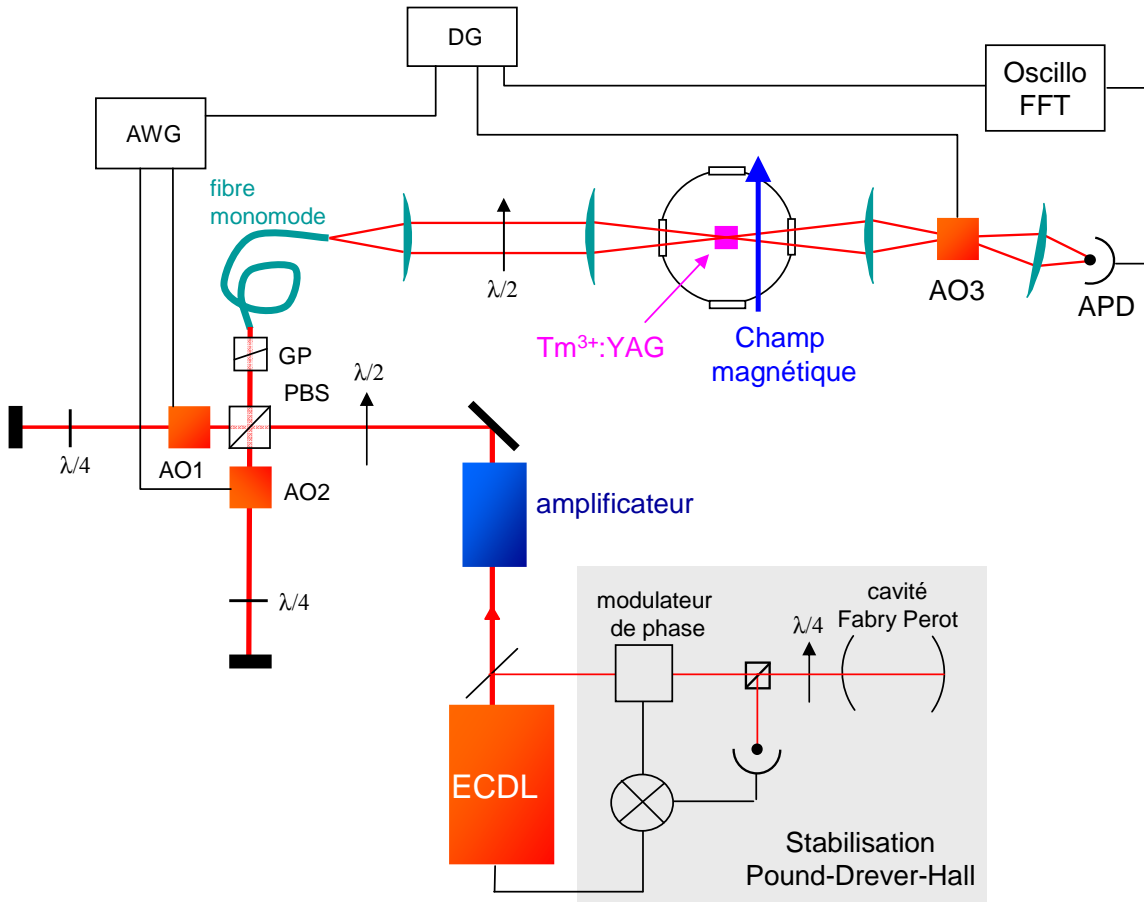


FIG. 4.13 – Dispositif expérimental utilisé pour les expériences d'écho Raman dans le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$. ECDL : diode laser en cavité étendue ; AWG : générateur de formes arbitraires ; DG : générateur d'impulsions ; PBS : cube séparateur de polarisation ; AO : modulateur acousto-optique ; GP : prisme de Glan ; APD : photodiode à avalanche. La lame demi-onde placée devant le cube séparateur de polarisation (PBS) permet de faire en sorte que l'intensité lumineuse soit la même dans les deux bras.

acoustique, on intercale une lentille à mi-distance entre l'AO et le miroir. La distance focale de cette lentille doit être égale à la moitié de la distance entre l'AO et le miroir, afin que l'ensemble composé de la lentille et du miroir constitue un télescope de grandissement -1 . Après un second passage à travers la lentille, le faisceau réfléchi est focalisé dans le modulateur acousto-optique et est à nouveau diffracté dans le modulateur acousto-optique. Le faisceau noté $\{1, 1\}$, diffracté lors de ses deux passages successifs dans le même modulateur acousto-optique est donc superposé avec le faisceau incident. Sa fréquence optique est décalée de $2\nu_{ac}$ par rapport au faisceau incident, où ν_{ac} est la fréquence de l'onde acoustique. Ainsi, la bande passante effective d'un modulateur acousto-optique monté en double passage est le double de sa bande passante propre, ici 50 MHz.

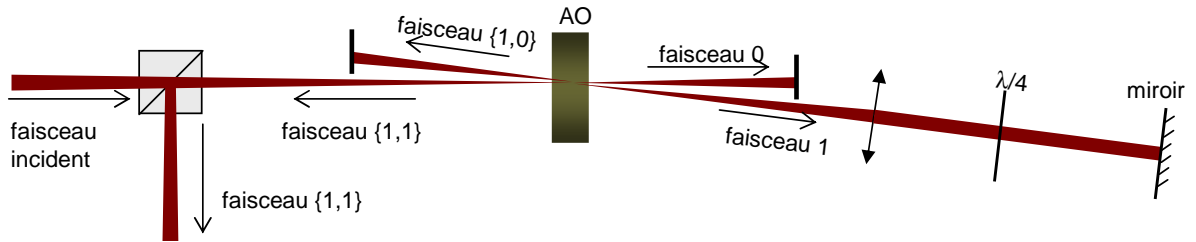


FIG. 4.14 – Montage d'un modulateur acousto-optique (AO) en double passage. Le faisceau incident est focalisé dans le cristal acousto-optique. Il est séparé en un faisceau transmis (noté "faisceau 0") et un faisceau diffracté (noté "faisceau 1"). On n'a pas représenté les ordres supérieurs sur cette figure. Après passage à travers la lentille et réflexion sur le miroir, le faisceau 1 revient exactement sur ses pas, quel que soit l'angle induit par la diffraction acousto-optique entre les faisceaux 0 et 1. Le faisceau 1 est alors lui aussi focalisé dans le cristal, et est donc séparé en deux faisceaux, notés "faisceau {1,0}" et "faisceau {1,1}". Le faisceau {1,0} est diffracté au premier passage et transmis au second passage, et le faisceau {1,1} est diffracté lors des deux passages à travers le cristal acousto-optique. La lame $\lambda/4$ permet de faire tourner la polarisation de $\pi/2$ après deux passages.

Grâce au cube séparateur de polarisation, le faisceau incident de la figure 4.14 est polarisé linéairement. On intercale une lame quart d'onde dans le montage en double-passage, afin que la direction de polarisation du faisceau diffracté deux fois soit orthogonale à la direction de polarisation du faisceau incident. Ainsi, le faisceau diffracté emprunte le port inutilisé du cube. Un tel montage garantit que les faisceaux deux fois diffractés provenant de chacun des deux AO sont superposés à la sortie du cube séparateur, quelle que soit la fréquence acoustique. En pratique, le faisceau est dévié d'environ 2 mrad pour un changement de fréquence acoustique de 85 à 135 MHz. L'injection de ces deux faisceaux dans la même fibre permet de transformer cette faible déviation angulaire en une variation d'intensité. La fibre monomode garantit que ces deux faisceaux sont exactement dans le même mode spatial en arrivant sur l'échantillon. Par ailleurs, ces faisceaux ont des directions de polarisations orthogonales l'un par rapport à l'autre. Afin que tous les faisceaux incidents sur l'échantillon soient rectilignement polarisés, dans la même direction, on place à l'entrée de la fibre un prisme de Glan qui sert de polariseur.

Les deux modulateurs acousto-optiques AO1 et AO2 montés en double passage mettent en forme les impulsions lumineuses en amplitude et en phase. Un générateur de formes arbitraires (Sony Tektronix AWG 520) déclenché par un générateur d'impulsions (Stanford Research DG535) produit point par point l'onde radio-fréquence utilisée pour commander ces AO à travers un amplificateur rf. Une lame demi-onde placée à l'en-

trée du cryostat permet de tourner la polarisation du faisceau incident sur l'échantillon de Tm^{3+} :YAG. Ce faisceau est focalisé dans l'échantillon, sur un spot de diamètre du faisceau à $1/e^2$ de $110 \mu\text{m}$. Le faisceau transmis est ensuite focalisé dans un troisième modulateur acousto-optique (AO3), dont l'ouverture est synchronisée sur l'impulsion de détection, grâce au générateur d'impulsions (DG). On le détecte sur une photodiode à avalanche (Hamamatsu C4777), dont la tension de sortie est visualisée sur un oscilloscope Tektronix TDS 3032B.

L'échantillon de Tm^{3+} :YAG est refroidi à $1,7 \text{ K}$ dans un cryostat Spectromag SM4 (Oxford Instruments) muni de bobines supraconductrices, qui permettent de produire un champ magnétique statique jusqu'à 6 T . L'échantillon est orienté dans le champ magnétique de façon que le système à trois niveaux en Λ construit sur les sous-niveaux Zeeman des niveaux d'énergie de l'ion Tm^{3+} ait un rapport de branchement optimal. La détermination de cette orientation a été détaillée dans le chapitre 2 de ce manuscrit.

Grâce au montage des modulateurs acousto-optiques en double passage, on s'est affranchi des problèmes de déviation angulaire des faisceaux qui limitaient l'expérience d'écho Raman à des splittings de quelques MHz tout au plus. La limite supérieure pour ce splitting est dorénavant déterminée par la bande passante de la photodiode utilisée. En effet, on cherche à détecter un battement entre le faisceau de détection à la fréquence ω_{L2} et la réponse radiative de l'échantillon par diffusion Raman cohérente à la fréquence ω_{L1} . Ce battement a lieu à la fréquence $\omega_{L1} - \omega_{L2}$ qui est égale à l'écart en fréquence entre les sous-niveaux de l'état fondamental Δ_g . La photodiode utilisée dans les expériences du chapitre 2 et dans les expériences de battements Raman cohérents (Hamamatsu C5460) a une bande passante qui s'étend des signaux DC à 10 MHz . Pour les expériences décrites ici, en particulier lorsque le splitting est supérieur à 10 MHz , nous avons aussi utilisé la photodiode Hamamatsu C4777 dont la bande passante s'étend de 10 kHz à 100 MHz . Cette bande passante coïncide par ailleurs avec la bande passante de 100 MHz des modulateurs acousto-optiques montés en double passage.

On sépare le signal de battement à la fréquence Δ_g des bruits expérimentaux en visualisant directement sur l'oscilloscope la transformée de Fourier rapide du signal.

4.3.2 Elimination de l'écho de photon

La séquence d'impulsions utilisée pour mettre en œuvre un écho Raman (voir figure 3.4) est composée de deux séquences d'écho de photon, l'une à ω_{L1} et l'autre à ω_{L2} . L'écho de photon est émis par les ions au même instant que l'écho Raman. De plus, comme tous les faisceaux incidents se propagent dans le même mode spatial, l'écho de photon à ω_{L1} et le faisceau de détection à la fréquence ω_{L2} se propagent dans la même direction. On observe alors un battement sur le détecteur à la fréquence $\omega_{L2} - \omega_{L1}$.

La figure 4.15 (ligne pointillée) montre le signal observé sur l'oscilloscope lorsque l'on applique la séquence d'écho Raman décrite précédemment à un échantillon de Tm :YAG en l'absence de champ magnétique. Si l'on appliquait un champ magnétique de façon que les impulsions bichromatiques excitent effectivement la cohérence Raman de l'état fondamental, le signal d'écho Raman viendrait se superposer au signal de battement de l'écho de photon visible sur cette figure.

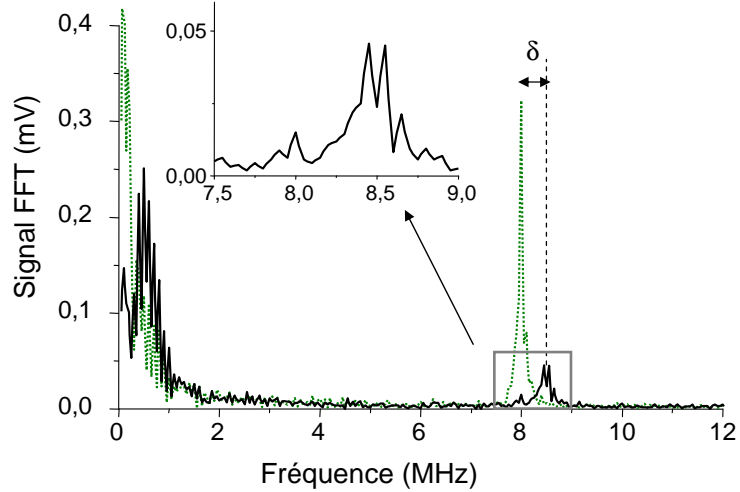


FIG. 4.15 – Transformée de Fourier du signal détecté par la photodiode au moment de l'impulsion de détection, en l'absence de champ magnétique appliqué. Les deux impulsions bichromatique ont des fréquences de Rabi de $\Omega_1/2\pi = \Omega_2/2\pi = 0,21$ MHz et $\Omega'_1/2\pi = \Omega'_2/2\pi = 0,31$ MHz respectivement, et une durée de $10 \mu\text{s}$. Ligne pointillée : les deux impulsions excitatrices sont toutes deux composées des fréquences ω_{L1} et ω_{L2} . L'écho de photon généré à la fréquence ω_{L1} s'ajoute au champ de détection à ω_{L2} pour donner ce signal à $\omega_{L2} - \omega_{L1} = 8$ MHz. Ligne continue : les fréquences de la seconde impulsion excitatrice sont décalées de δ par rapport aux fréquences de la première impulsion. Le signal de battement dû aux échos de photons est décalé en fréquence de δ par rapport à $\omega_{L2} - \omega_{L1}$. Insert : zoom sur le signal d'écho de photon lorsque la deuxième impulsion est décalée en fréquence. Le délai entre les deux impulsions est de $T = 100 \mu\text{s}$. L'échantillon est refroidi à $2,4$ K.

Les ions résonnants optiquement avec l'une ou l'autre de ces fréquences optiques participent à l'émission d'un signal d'écho de photon, et à l'émission d'un signal d'écho Raman. Les ions non résonnants optiquement peuvent aussi participer au signal d'écho Raman si le système a été préalablement préparé. Il y a donc en principe un plus grand nombre d'ions participant à l'écho Raman qu'à l'écho de photon. Pourtant, dans toutes nos expériences, et malgré le travail d'optimisation que nous avons effectué dans la partie 3.2, on a observé un signal d'écho Raman plus faible que l'écho de photon. Peut-être l'écho

Raman est-il plus sensible que l'écho de photon à la non-uniformité spatiale de la fréquence de Rabi des champs optiques. Les figures 3.12 et 3.16 montrent bien cette sensibilité. Cet effet n'a pas été pris en compte dans l'analyse théorique de la formation du signal d'écho Raman présentée dans les paragraphes précédents.

Quoi qu'il en soit, il semble nécessaire d'éliminer ce signal d'écho de photon à la fréquence Δ_g pour pouvoir observer le signal d'écho Raman sur fond noir. Dans notre montage à un seul faisceau, il nous faut jouer sur les fréquences des différents champs optiques.

Détection décalée en fréquence

Une première idée consiste à décaler la fréquence du champ de détection, d'une quantité δ . Le battement entre l'écho de photon à ω_{L1} et le champ de détection se produit alors à la fréquence $\Delta_g + \delta$. Le signal d'écho Raman, en revanche, est toujours observé à la fréquence Δ_g . En effet, le champ Stokes (ou anti-Stokes) produit par diffusion Raman cohérente vérifie la condition de résonance à deux photons avec le champ de détection. Les deux signaux sont donc séparés sur la transformée de Fourier du signal de battement. Cette méthode a été proposée par S. R. Hartmann [123], et employée dans plusieurs expériences d'écho Raman [130, 27]. Elle n'est cependant pas suffisante pour observer l'écho Raman dans le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ sur fond noir car l'écho de photon reste très intense.

Deuxième impulsion décalée en fréquence

Une autre solution consiste à décaler les deux fréquences de la seconde impulsion d'une même quantité δ , comme indiqué sur la figure 4.16. Si le décalage δ est grand devant la fréquence de Rabi de l'excitation, les deux impulsions n'excitent pas les mêmes atomes dans le profil inhomogène optique. L'écho de photon est donc à la fois décalé en fréquence et atténué. L'écho Raman peut toutefois être préservé puisque la condition de résonance à deux photons est toujours vérifiée.

Pour évaluer la contribution de l'écho de photon au signal, considérons un ensemble d'atomes excité par deux impulsions rectangulaires successives de même durée τ , et de fréquences ω_{L1} et $\omega_{L1} + \delta$ respectivement. On s'attend à ce que seuls les atomes proches de la résonance avec l'une ou l'autre des impulsions excitatrices contribuent au signal d'écho de photon au voisinage de l'écho Raman dans la transformée de Fourier du signal de battement. On s'intéresse dans un premier temps aux ions dont la fréquence de transition optique ω est proche de la fréquence $\omega_{L1} + \delta$ de la deuxième impulsion. On a supposé que δ est grand devant la fréquence de Rabi de l'excitation. L'interaction de ces ions peut donc être décrite au premier ordre de perturbation. La cohérence optique créée dans ces

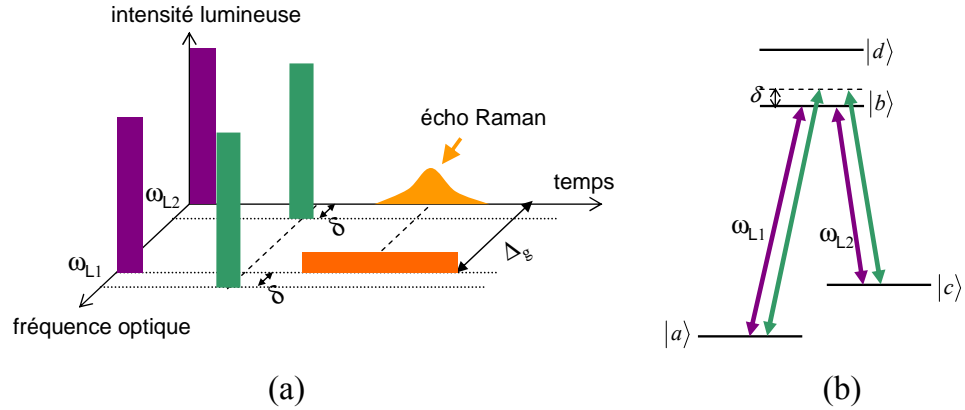


FIG. 4.16 – (a) Séquence d'écho Raman permettant d'éliminer l'écho de photon par un léger désaccord δ des deux fréquences de la deuxième impulsion excitatrice. (b) Schéma des différentes fréquences utilisées dans le système à 4 niveaux.

ions est donc :

$$\rho(\omega) = \Omega\tau \operatorname{sinc} \left[\frac{(\omega - \omega_{L1})\tau}{2} \right] \quad (4.23)$$

où Ω représente la fréquence de Rabi de la première impulsion. La contribution de ces ions à l'écho de photon varie lentement avec le désaccord δ , comme $1/\delta$. Malgré cette lente variation, le signal d'écho de photon issu de ces ions est séparé du signal d'écho Raman, puisqu'il est émis autour de la fréquence $\omega_{L1} + \delta$. Considérons maintenant les ions dont la fréquence de transition optique est proche de ω_{L1} . Ces ions sont résonnants avec la première impulsion, mais pas avec la deuxième. L'interaction avec la deuxième impulsion peut ici aussi être décrite à l'ordre de perturbation le plus bas. Lors de la deuxième impulsion, la cohérence produite par la première impulsion est multipliée par la quantité suivante :

$$\left(\Omega\tau \operatorname{sinc} \left[\frac{(\omega - \omega_{L1} - \delta)\tau}{2} \right] \right)^2 \quad (4.24)$$

où Ω représente la fréquence de Rabi de la deuxième impulsion. Cette quantité décroît rapidement avec le désaccord δ , comme $1/\delta^2$. Ainsi, bien que l'écho de photon issu de ces ions se produise à la même fréquence que l'écho Raman, il est efficacement atténué. Enfin, on peut montrer que les ions qui ne sont résonnants avec aucune des deux fréquences ω_{L1} ou $\omega_{L1} + \delta$ produisent un écho de photon d'amplitude négligeable.

On a représenté dans la figure 4.15 la transformée de Fourier rapide du signal de battement détecté sur la photodiode, lorsque l'échantillon est soumis à la séquence d'impulsions décrite dans la figure 3.4, en l'absence de champ magnétique. La deuxième impulsion est décalée en fréquence de $\delta = 500$ kHz. Les deux impulsions excitatrices ont une durée de $10 \mu\text{s}$. L'écho de photon est alors atténué d'un facteur 7 environ, et décalé de δ par rapport

à sa position originelle $\omega_{L2} - \omega_{L1}$ sur la transformée de Fourier du signal. Comme on peut le voir dans l'insert de la figure 4.15, il ne subsiste qu'une petite fraction du signal d'écho de photon à la fréquence $\omega_{L2} - \omega_{L1}$.

Cette technique permet donc d'éliminer la majeure partie des signaux d'écho de photon, tout en conservant le signal d'écho Raman. Comme les deux fréquences de la deuxième impulsion sont décalées d'un même désaccord δ , si la condition de résonance à 2 photons est vérifiée pour la première impulsion, elle est également vérifiée pour la seconde. Dans l'étude théorique menée dans la partie 3.2.5, nous avons constaté que pour des pulsations de Rabi de la deuxième impulsion bien choisies, l'inversion de phase des cohérences n'a pas lieu pour les atomes résonants optiquement avec la deuxième impulsion, mais seulement pour les atomes désaccordés d'une quantité déterminée. Par exemple, pour $\Omega_1'' = \Omega_2'' = 2,45\pi/\tau_2$, la conversion est optimale pour les atomes dont les transitions optiques sont désaccordées de $2\pi/\tau_2$. Le décalage en fréquence de la deuxième impulsion permet donc à la fois d'optimiser l'écho Raman et d'atténuer les échos de photons.

L'atténuation de l'écho de photon est d'autant meilleure que le désaccord δ est grand. Or, les calculs de la partie 3.2.5 ont montré que le désaccord optimal pour la deuxième impulsion augmente avec la fréquence de Rabi de cette deuxième impulsion. La puissance du laser étant limitée, on ne peut pas décaler la deuxième impulsion suffisamment pour éliminer complètement la contribution de l'écho de photon tout en préservant l'écho Raman. Un décalage typique de $\delta = 8/\tau$ suffit pour séparer efficacement le signal d'écho Raman du signal d'écho de photon réduit.

On a représenté sur la figure 4.17 le signal d'écho Raman lorsque les deux impulsions bichromatiques de $10 \mu\text{s}$ sont décalées de $\delta = 800 \text{ kHz}$. L'écho de photon produit par les ions résonnants avec la seconde impulsion est bien visible autour de $\Delta_g + \delta$.

En plus de décaler en fréquence la deuxième impulsion bichromatique, il est également possible d'atténuer davantage le signal d'écho de photon proche du signal d'écho Raman que l'on veut étudier. Il suffit pour cela de préparer le système dans un des sous-niveaux de l'état fondamental, mettons $|a\rangle$, de façon que la transition à ω_{L2} soit initialement vide d'atomes. Si l'impulsion de détection est appliquée à la fréquence ω_{L1} , comme indiqué sur la figure 4.16, l'écho de photon au voisinage de Δ_g est moins intense, au détriment de celui qui se manifeste autour de la fréquence nulle. Par ailleurs, nous avons aussi montré dans la partie 3.2.4 qu'une telle préparation permet d'exciter les cohérences Raman sur un domaine spectral très large dans le profil inhomogène, et d'améliorer d'un facteur 4 l'amplitude du signal de détection optique des cohérences Raman. La préparation préalable du système présente donc deux avantages. Toutes les expériences d'écho Raman qui sont décrites ultérieurement dans ce chapitre contiennent, en plus des impulsions schématisées dans la figure 4.16, une étape de préparation. Celle-ci est placée quelques centaines de μs après l'impulsion de détection. Elle est constituée d'une série d'impulsions balayées en

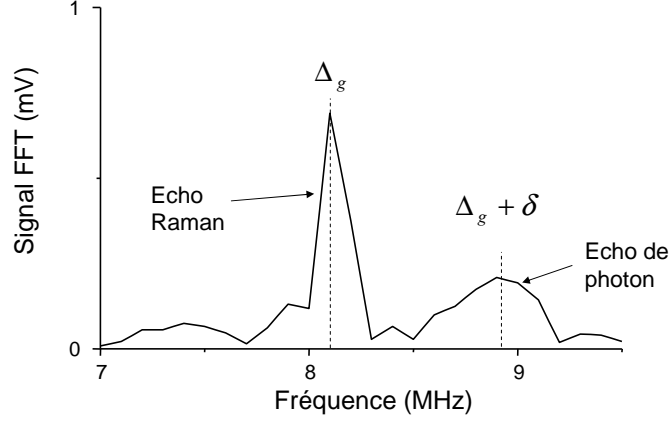


FIG. 4.17 – Exemple de signal d'écho Raman obtenu lorsque la deuxième impulsion bichromatique est décalée de $\delta = 800$ kHz par rapport à la première. On distingue l'écho Raman à la fréquence $\Delta_g = 8,1$ MHz et l'écho de photon à la fréquence $\Delta_g + \delta$. L'échantillon est initialement à l'équilibre thermique, à 1,8 K. Les deux impulsions ont une durée de $10 \mu\text{s}$.

fréquence sur 1 MHz en $100 \mu\text{s}$, sur une durée totale de 60 ms. La durée de cette étape de préparation est choisie de façon que les ions puissent subir plusieurs cycles de pompage optique, même s'ils sont envoyés dans l'état métastable 3F_4 .

Deuxième impulsion accordée sur l'autre système en Λ

Une troisième méthode peut être utilisée pour éliminer plus efficacement l'écho de photon. Elle consiste à désaccorder d'une même quantité δ les deux fréquences de la deuxième impulsion excitatrice, en fixant $\delta = \Delta_e$, où Δ_e est l'écart en fréquence entre les deux sous-niveaux de l'état excité. Cette séquence est schématisée sur la figure 4.18. Ainsi, comme précédemment, un tel décalage prévient la formation de l'écho de photon. De plus, les atomes excités à résonance optique par la première impulsion sont aussi excités à résonance optique avec la seconde impulsion. On peut donc ajuster les aires de la seconde impulsion bichromatique de manière à centrer la fenêtre de rephasage sur ces atomes. D'après l'analyse théorique effectuée dans la partie 3.2.5, ces aires optimales sont $\Omega_1''\tau_2 = \Omega_2''\tau_2 = \pi$ pour inverser les cohérences de spin dans les atomes résonnants optiquement avec l'impulsion rephasante. Les aires d'impulsions optimales pour la seconde impulsion sont donc plus accessibles que dans la méthode précédente.

Ainsi, l'utilisation du quatrième niveau permet de réaliser un processus d'écho Raman aussi efficace que si l'on n'avait pas décalé la seconde impulsion, tout en atténuant fortement les échos de photon.

Cette méthode est particulièrement adaptée aux champs magnétiques importants,

puisque plus Δ_e est grand, moins l'écho de photon est présent. En pratique, nous avons utilisé cette méthode pour des splittings Δ_g de quelques MHz à 80 MHz. Cette limite de 80 MHz est fixée par les modulateurs acousto-optiques. En effet, l'expérience d'écho Raman décrite ici met en jeu 4 fréquences optiques : ω_{L1} et $\omega_{L1} + \Delta_g$ pour la première impulsion, et $\omega_{L1} + \Delta_e$ et $\omega_{L1} + \Delta_g + \Delta_e$ pour la seconde. La bande passante de 100 MHz des modulateurs acousto-optiques constitue une borne supérieure non pas pour Δ_g , mais pour $\Delta_g + \Delta_e = 1,4\Delta_g$.

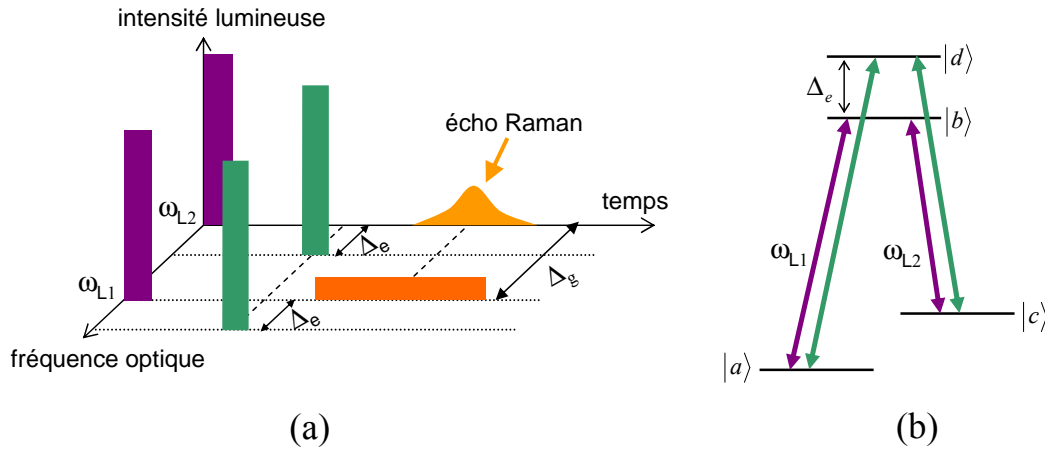


FIG. 4.18 – (a) Séquence d'écho Raman pour éliminer l'écho de photon. (b) Schéma des différentes fréquences utilisées dans le système à 4 niveaux.

4.3.3 Optimisation expérimentale du signal

L'analyse théorique effectuée dans la partie précédente permet d'ajuster les aires d'impulsion pour optimiser les différentes étapes du processus. En pratique, il ne suffit pas de se tenir aux aires d'impulsion déterminées ici pour pouvoir observer un signal d'écho Raman intense et sur fond noir. Il existe un grand nombre de degrés de liberté expérimentaux qui doivent être explorés. Parmi ces degrés de liberté, nous allons décrire ici les effets sur le signal d'écho Raman de la largeur spectrale du laser, de la température de l'échantillon, et enfin de l'instant où l'impulsion de détection est branchée.

Stabilité du laser

Nous avons vu dans la partie 4.1.1 que les instabilités de fréquence du laser n'empêchent pas l'observation des signaux de battements Raman cohérents. En effet, on utilise des modulateurs acousto-optiques pour produire les différentes fréquences optiques à partir d'une seule cavité laser. Ainsi, les bruits de fréquence sont corrélés entre les différents

faisceaux, et la différence de fréquence présente une stabilité inférieure au kHz. Ceci a été observé par exemple par R. M. Shelby *et al.* dans le Pr :YAG [25].

Pourtant, les cohérences Raman créées par l'impulsion excitatrice sont produites à partir des cohérences optiques. C'est pourquoi, comme nous l'avons montré dans la partie 3.2.4 de ce manuscrit, le bruit de fréquence du laser ne doit pas excéder l'inverse de la durée des impulsions si on veut exciter efficacement la cohérence Raman. Dans une expérience d'écho Raman, l'efficacité de l'excitation des cohérences Raman est cruciale si l'on veut pouvoir observer la décroissance du signal sur une dynamique importante. Les impulsions bichromatiques ont ici une durée de $10 \mu\text{s}$, donc la largeur du laser doit être inférieure à 100 kHz.

On a représenté sur la figure 4.19 les signaux observés lorsque le laser est asservi (et présente une largeur inférieure au kHz), et lorsqu'il n'est pas asservi (le laser présentant alors une largeur de quelques MHz). L'asservissement permet ici d'augmenter l'amplitude du signal d'écho Raman de 35%. On note également que les signaux d'échos de photons, attendus autour des fréquences 800 kHz et 10,1 MHz, ne sont visibles que lorsque le laser est asservi. En effet, les cohérences optiques ne peuvent être manipulées efficacement que si la largeur spectrale du laser est inférieure que la largeur homogène des transitions optiques (3 kHz), ce qui est le cas seulement lorsque celui-ci est asservi.

Température

Le choix de la température de l'échantillon peut se révéler critique lors des expériences de battements Raman cohérents dans un système en V, décrites dans la partie 4.1.1. En effet, elle doit être suffisamment basse pour que les durées de vie des cohérences soient assez longues, mais aussi suffisamment élevée pour éviter les phénomènes de pompage optique qui tendent à vider le système à 3 niveaux de ses ions.

Lorsque l'on cherche à observer des échos Raman dans l'état fondamental cette fois, les phénomènes de pompage optique ne posent pas de problème puisque les atomes ne quittent pas le système. On s'attend donc à ce que le signal soit d'autant meilleur que la température est basse. On représente dans la figure 4.20 les signaux d'écho Raman obtenus pour différentes températures de l'échantillon entre 2,5 K et 1,8 K. Cette figure montre que la température est un paramètre très critique pour ces expériences, et qu'elle doit être aussi basse que le permet le dispositif expérimental.

Lors de la mesure de la durée de vie des cohérences Raman, on se placera toujours à la température de 1,7 K, à laquelle le niveau d'hélium liquide est stabilisé à quelques millimètres en-dessous de l'échantillon.

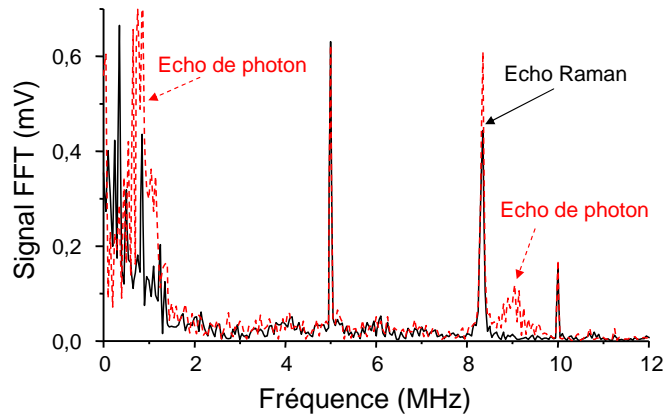


FIG. 4.19 – Effet de l’asservissement du laser sur l’écho Raman. Les impulsions excitatrices ont une durée de $10 \mu\text{s}$. Ligne continue : le laser n’est pas asservi, et présente donc une largeur spectral de quelques MHz. Les cohérences optiques ne sont donc pas excitées de façon cohérente sur toute la durée des impulsions, ce qui empêche la formation des échos de photon. L’écho Raman est visible à la fréquence $\Delta_g = 8,3 \text{ MHz}$. On distingue aussi la modulation à 864 kHz due à l’émetteur radio de Villebon. Ligne pointillée : le laser est asservi. Les signaux d’écho de photon sont observés aux fréquences $\delta = 800 \text{ kHz}$ et $\Delta_g + \delta = 10,1 \text{ MHz}$. Le signal d’écho Raman est plus intense.

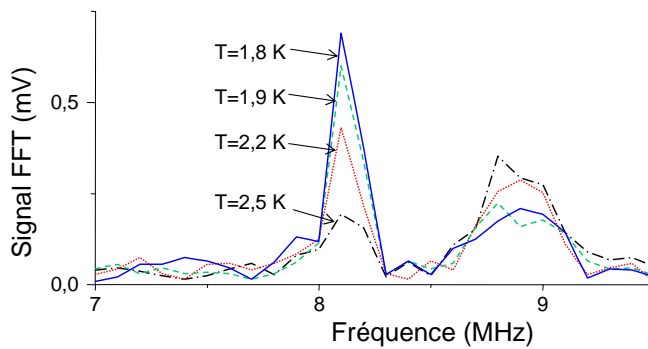


FIG. 4.20 – Effet de la température de l’échantillon sur le signal d’écho Raman avec $\Delta_g = 8,1 \text{ MHz}$. La deuxième impulsion est décalée en fréquence de $\delta = 800 \text{ kHz}$ par rapport à la première. Le signal d’écho de photon est visible à $\Delta_g + \delta = 8,9 \text{ MHz}$. La température est mesurée à l’aide d’une sonde placée quelques millimètres au-dessus de l’échantillon. Une réduction de la température de $2,5$ à $1,8 \text{ K}$ permet d’amplifier le signal d’écho Raman tout en réduisant modérément le signal d’écho de photon.

Moment de la lecture

Nous nous sommes intéressés dans la partie 3.2.2 au mécanisme de conversion d'une cohérence Raman en cohérence optique dans un système à quatre niveaux, lorsque la cohérence Raman a été initialement créée par une impulsion bichromatique de durée τ . D'après la figure 3.14, la cohérence optique se forme progressivement, pour atteindre son maximum au bout d'une durée τ après le début de l'impulsion de détection.

Conformément à ces prévisions, nous avons observé expérimentalement que l'amplitude du signal passe par un maximum lorsque l'impulsion de détection est décalée dans le temps par rapport au moment de l'écho Raman. Les deux impulsions excitatrices de $10 \mu\text{s}$ sont séparées de $100 \mu\text{s}$. L'impulsion de détection doit être branchée de façon que le maximum d'efficacité de conversion des cohérences Raman en signal optique coïncide avec l'apparition de l'écho Raman. La figure 4.21 montre l'évolution de l'amplitude du signal d'écho Raman lorsque l'on déplace le début de l'impulsion de détection. Ce signal trouve son maximum lorsque cette impulsion démarre 30 à 40 μs avant l'écho Raman.

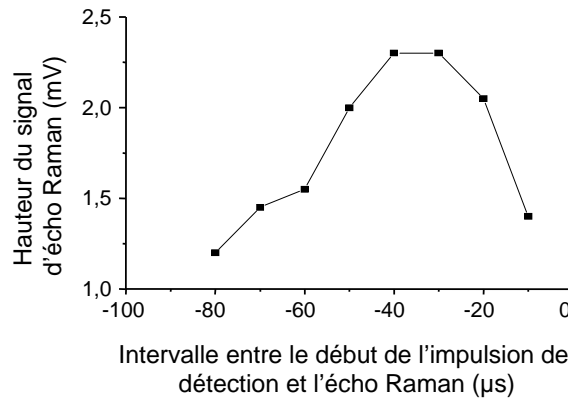


FIG. 4.21 – Amplitude du signal d'écho Raman, lorsque l'on déplace le début de l'impulsion de détection. Le champ magnétique appliqué est de 0,195 T, ce qui correspond à $\Delta_g = 8,1 \text{ MHz}$. La seconde impulsion est décalée en fréquence de $\delta = 800 \text{ kHz}$.

4.3.4 Mesure de T_2

Maintenant que le signal d'écho Raman est optimisé, à la fois par l'analyse théorique et par l'exploration de différents paramètres expérimentaux, on fait varier la durée T séparant les deux impulsions excitatrices afin de mesurer la durée de vie T_2 des cohérences Raman. On suppose que la décroissance du signal d'écho Raman est exponentielle, de la forme e^{-2T/T_2} .

Niveau fondamental

Dans un cristal dopé aux ions de terre rare, les transitions optiques ne sont pas sélectives en polarisation. Pour exciter indépendamment les deux transitions d'un système en Λ , il est indispensable que la différence de fréquence entre les transitions soit suffisamment grande par rapport à la largeur spectrale du champ excitateur. Pour cette raison, le Tm pourrait se révéler très intéressant, grâce à l'ajustabilité du splitting dans ses sous-niveaux hyperfins, à condition de présenter une longue durée de vie des cohérences Raman même à fort champ magnétique.

Pour un champ magnétique appliqué de 0,99 T, le splitting de l'état fondamental est de $\Delta_g = 41$ MHz, ce qui est déjà très supérieur au splitting entre les sous-niveaux hyperfins du praséodyme (10,2 MHz). On donne dans la figure 4.22 les signaux d'écho Raman obtenus pour différentes durées T entre les deux impulsions bichromatiques. La hauteur des pics observés à la fréquence 41 MHz décroît comme e^{-2T/T_2} avec $T_2 = 350 \pm 40 \mu\text{s}$. Dans la perspective d'évaluer les qualités de cet ion en tant que support pour une mémoire quantique, nous mesurons la durée de vie des cohérences Raman pour différentes valeurs du champ magnétique appliqué.

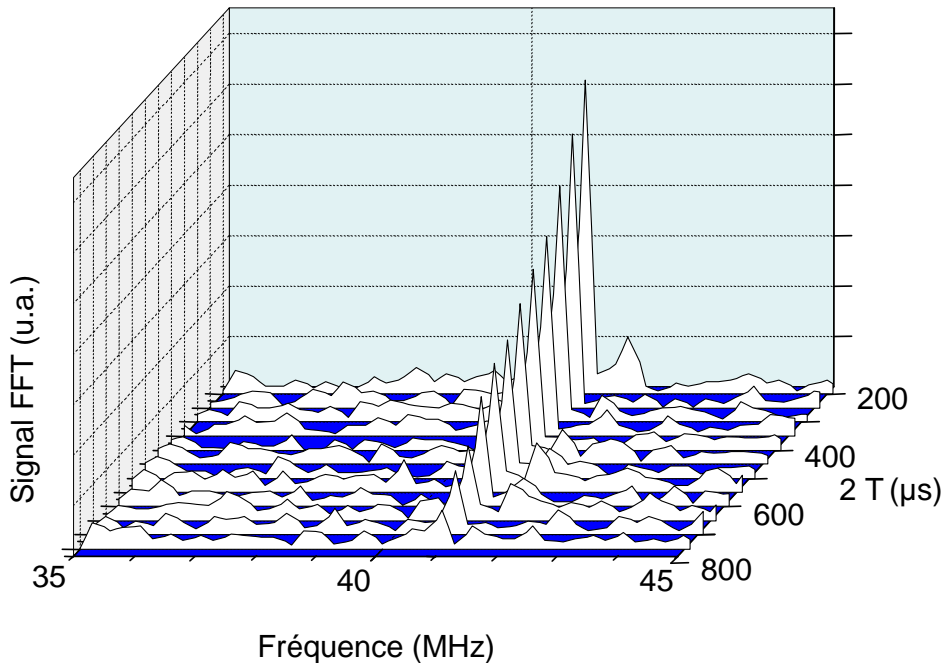


FIG. 4.22 – Transformée de Fourier des signaux détectés enregistrés pour différents temps d'attente T (entre 100 et 400 μs , séparés de 25 μs) pour la mesure de T_2 . Le champ magnétique appliqué est de 0,99 T, ce qui correspond à un splitting de $\Delta_g = 41$ MHz dans l'état fondamental.

Nous avons dans un premier temps réalisé des mesures du T_2 avec le montage représenté dans la figure 2.12, où toutes les impulsions sont mises en forme à l'aide d'un seul modulateur acousto-optique, monté en simple passage [131]. Comme nous l'avons remarqué dans la partie 4.1.1 de ce manuscrit, ce type de montage ne permet pas d'observer des battements à des fréquences très supérieures à 10 MHz. Pour pouvoir explorer des splittings plus importants, nous avons remplacé le montage de l'AO en simple passage par le montage représenté en figure 4.13. Cela nous a permis d'observer des échos Raman et de mesurer la durée de vie des cohérences Raman T_2 pour des splittings Δ_g allant de 5 à 83 MHz, ce qui correspond à un champ magnétique appliqué allant de 0,12 à 2 T [101]. Dans la figure 4.23, on a reporté les mesures de T_2 pour différents splittings Δ_g de l'état fondamental, effectuées avec l'un ou l'autre des deux montages. Les barres d'erreur correspondent à l'erreur standard déduite de l'ajustement par la méthode des moindres carrés.

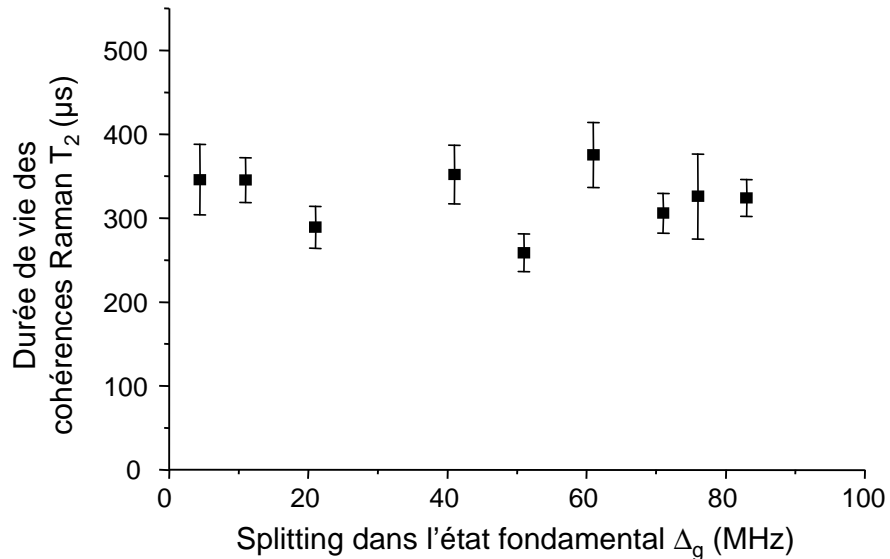


FIG. 4.23 – Mesure de la durée de vie des cohérences Raman pour différents champs magnétiques appliqués. Les cercles ouverts correspondent aux expériences réalisées avec un seul modulateur acousto-optique en simple passage [131]. Les carrés noirs correspondent aux expériences réalisées avec deux AO montés en double passage [101].

Niveau excité

Nous avons aussi observé des échos Raman dans l'état excité. Les impulsions utilisées sont, pour la première impulsion, ω_{L1} et $\omega_{L1} + \Delta_e$, et pour la deuxième impulsion, $\omega_{L1} - \Delta_g$ et $\omega_{L1} - \Delta_g + \Delta_e$. La première excite les transitions optiques du système $|a\rangle$, $|b\rangle$, $|d\rangle$, et la seconde excite celles du système $|c\rangle$, $|b\rangle$, $|d\rangle$, afin d'éviter la formation d'un écho de

photon, tout en conservant une efficacité optimale pour l'écho Raman. Les paramètres expérimentaux sont identiques à ceux utilisés pour la mesure de la durée de vie des cohérences Raman dans l'état fondamental.

Nous avons ainsi mesuré $T_2 = 540 \pm 35 \mu\text{s}$ dans l'état excité, pour un splitting $\Delta_e = 16,4 \text{ MHz}$. Cela correspond à un champ magnétique de 1 T. Cette durée de vie est sensiblement plus longue que celle que nous avons mesurée dans l'état fondamental.

4.4 Origine de la relaxation des cohérences Raman

Nous avons remarqué dans la partie 2.4.1 que la composante dominante du tenseur gyromagnétique est particulièrement élevée dans l'état fondamental du $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ ($\gamma_y^{(g)} = 403 \text{ MHz/T}$). Ceci signifie que l'ion thulium est sensible aux fluctuations du champ magnétique induites par le basculement des spins des ions qui l'entourent. Ces basculements sont responsables de la relaxation des cohérences Raman dans le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$. Nous allons préciser ici la nature de ces fluctuations, puis les relier aux résultats expérimentaux.

4.4.1 Mécanismes responsables de la décohérence

L'amplitude d'un écho de photon ou d'un écho Raman à deux impulsions est donnée par :

$$\mathcal{A}(t_{12}) = \mathcal{A}_0 \exp[-2\pi t_{12} \Gamma_{eff}(t_{12})] \quad (4.25)$$

où t_{12} est la durée séparant les deux impulsions. En l'absence de perturbations dynamiques dues à l'environnement de l'ion, la quantité Γ_{eff} ne dépend pas du temps. La décroissance de l'écho est alors exponentielle. En revanche, en présence de *diffusion spectrale*, c'est-à-dire s'il existe une interaction provoquant des déplacements des niveaux d'énergie, et si ces déplacements dépendent du temps, alors la décroissance n'est plus exponentielle. La quantité Γ_{eff} permet de décrire les différents processus de relaxation des cohérences. Böttger *et al.* ont effectué une analyse détaillée des facteurs de relaxation des cohérences dans l'orthosilicate d'yttrium dopé aux ions erbium ($\text{Er}:\text{YSO}$) [132].

Le cristal de $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ est porté à une température suffisamment basse (2 K) pour que l'on puisse négliger le couplage des spins aux phonons du réseau. La diffusion spectrale, provenant des fluctuations du champ magnétique local ressenti par les ions de Tm, constitue donc le facteur principal de décohérence. Ces fluctuations sont dues aux basculements de spins d'aluminium environnant les ions de thulium. Elles provoquent un déplacement au cours du temps des niveaux Zeeman du Tm par l'intermédiaire de l'interaction dipolaire magnétique.

Les ions Tm peuvent aussi être perturbés par le basculement des spins des ions Tm environnants, ou par les spins des ions Y de la matrice de YAG. Ces contributions sont

négligeables par rapport à l'effet des basculements des spins d'aluminium. En effet, le spin nucléaire de l'yttrium possède un moment magnétique 26 fois plus faible que celui de l'aluminium. En ce qui concerne les interactions Tm-Tm, la concentration de notre échantillon (0,1 %) est suffisamment faible pour que l'on puisse les négliger. Le moment magnétique de l'ion Tm libre est de $0,232\mu_N$, où μ_N est le magnéton nucléaire. Cela représente une sensibilité Zeeman de 3,5 MHz/T. Dans le YAG, l'effet Zeeman exacerbé donne au Tm un moment magnétique qui dépend fortement de l'orientation du champ magnétique appliqué². Il peut atteindre $26,5\mu_N$ au maximum, ce qui correspond à une sensibilité magnétique de 403 MHz/T. Cette sensibilité est encore très inférieure à celle que l'on peut observer dans des ions Kramers tels que l'erbium (dont le moment magnétique électronique est de l'ordre de plusieurs dizaines de GHz/T).

La quantité Γ_{eff} ne contient donc que la contribution de la diffusion spectrale due aux spins d'aluminium. On note R_{Al} le taux de basculement des spins nucléaires d'aluminium. Selon qu'il se produit peu ou beaucoup de basculements pendant la durée de l'expérience d'écho, Γ_{eff} s'écrit [132] :

$$\Gamma_{eff}(t_{12}) = \frac{1}{2}\Gamma_{AlSD}R_{Al}t_{12} \quad \text{si } R_{Al}t_{12} \ll 1 \quad (4.26)$$

$$\Gamma_{eff}(t_{12}) = \Gamma_{AlSD}\sqrt{\frac{2}{R_{Al}t_{12}}} \quad \text{si } R_{Al}t_{12} \gg 1 \quad (4.27)$$

La fréquence Γ_{AlSD} est donnée par l'équation :

$$\Gamma_{AlSD} = 0,14\mu_0h\gamma_{Tm}I_{Tm}\gamma_{Al}n_{Al}\sqrt{I_{Al}(I_{Al}+1)} \operatorname{sech}\left(\frac{h\gamma_{Al}B}{2kT}\right) \quad (4.28)$$

Les quantités γ_{Tm} et $I_{Tm} = 1/2$ désignent respectivement le coefficient gyromagnétique et le spin nucléaire du thulium. Cette expression a été obtenue en supposant que le tenseur gyromagnétique du thulium est isotrope. Les quantités γ_{Al} , $I_{Al} = 5/2$ et n_{Al} désignent respectivement le coefficient gyromagnétique (exprimé en Hz/T), le spin nucléaire, et la densité volumique des atomes d'aluminium. B désigne le champ magnétique externe en teslas, T est la température de l'échantillon en kelvins, k est la constante de Boltzmann, h est la constante de Planck, et μ_0 est la perméabilité magnétique du vide.

A basse température, les basculements des spins nucléaires d'aluminium sont principalement dûs aux *flip-flops*. Le taux de basculement par flip-flops est donné par [132] :

$$R_{Al} = 0,25\mu_0h\gamma_{Al}^2n_{Al}\sqrt{I_{Al}(I_{Al}+1)} \operatorname{sech}\left(\frac{h\gamma_{Al}B}{2kT}\right) \quad (4.29)$$

Les basculements par flip-flop ne peuvent se produire qu'entre deux spins antiparallèles. Or, en présence d'un champ magnétique suffisamment fort pour que l'énergie d'inter-

²En effet, le moment magnétique nucléaire μ est relié au coefficient gyromagnétique γ par : $\mu = h\gamma I$, où I désigne le spin nucléaire, et h la constante de Planck.

action magnétique $h\gamma B$ domine l'énergie thermique kT , les spins ont tendance à s'aligner, ce qui réduit le taux de flip-flops selon un comportement en sécante hyperbolique ($\text{sech}(x) = 1/\text{ch}(x)$). C'est ainsi que l'on gèle les basculements de spin des ions erbium dans le $\text{Er}:\text{YSO}$ en appliquant un champ magnétique de plusieurs teslas. L'aluminium, en revanche, possède un moment magnétique de spin nucléaire 2000 fois plus faible que celui de l'erbium. A une température de 2 K, et sous un champ magnétique de 2 T, $h\gamma_{Al}B/2kT \approx 2,7 \cdot 10^{-4}$. On en conclut que le champ magnétique n'a aucun effet sur le taux de basculement R_{Al} tant qu'il est de l'ordre du tesla, ce qui est le cas dans l'ensemble de nos expériences d'écho Raman.

L'amplitude de l'écho Raman suit donc une décroissance non-exponentielle [133, 132] :

$$\mathcal{A}(T) = \mathcal{A}_0 \exp(-\pi\Gamma_{AlSD}R_{Al}t_{12}^2) \quad \text{si} \quad R_{Al}t_{12} \ll 1 \quad (4.30)$$

$$\mathcal{A}(T) = \mathcal{A}_0 \exp\left(2\sqrt{\frac{2\pi}{R_{Al}}}\Gamma_{AlSD}\sqrt{t_{12}}\right) \quad \text{si} \quad R_{Al}t_{12} \gg 1 \quad (4.31)$$

4.4.2 Comparaison avec les résultats expérimentaux

Le coefficient gyromagnétique de l'aluminium est de $\gamma_{Al} = 11,1 \text{ MHz/T}$. Dans le YAG, la densité d'atomes d'aluminium est $n_{Al} = 2,3 \cdot 10^{28} \text{ m}^{-3}$. Le taux de basculement des ions aluminium R_{Al} est donc :

$$R_{Al} = 1750 \text{ Hz} \quad (4.32)$$

$R_{Al}t_{12} = 0,70$ pour $t_{12} = 400 \mu\text{s}$. Or, le domaine temporel le plus large sur lequel la décroissance de l'écho a pu être mesurée s'étend de $t_{12} = 50 \mu\text{s}$ à $t_{12} = 400 \mu\text{s}$. On est donc dans le cas $R_{Al}t_{12} \ll 1$. On s'attend donc à observer une décroissance de l'écho Raman en e^{-t^2} , plus rapide qu'une exponentielle, aussi bien dans l'état fondamental que dans l'état excité.

Sur cette échelle de temps ($50 \mu\text{s} \leq t_{12} \leq 400\mu\text{s}$), l'amplitude de l'écho est divisée par 10 environ. Sur une échelle si faible, il est difficile de distinguer une fonction exponentielle d'une fonction en e^{-t^2} , ou d'une fonction en $e^{-\sqrt{t}}$. Selon le domaine de t_{12} sur lequel la décroissance est observée, on pourra mesurer différentes pentes, et obtenir différentes valeurs pour T_2 . Ceci explique sans doute en partie les variations de la durée de vie T_2 observées d'une mesure à l'autre.

Comme nous l'avons mentionné plus haut, la valeur de Γ_{AlSD} donnée dans l'équation (4.28) est obtenue en supposant que le tenseur gyromagnétique de l'ion de terre rare est isotrope [133, 132]. Or, ce n'est pas le cas de l'ion thulium, qui présente une anisotropie particulièrement marquée (voir tableau 2.4). On peut malgré cela utiliser l'équation (4.28), pour déterminer à partir des résultats expérimentaux le coefficient gyromagnétique effectif

γ_{Tm}^{eff} , qui tiendrait compte de l'anisotropie magnétique.

$$\Gamma_{ALSD} = 44,07 \cdot 10^{-6} \times \gamma_{Tm}^{eff} \quad (4.33)$$

où γ_{Tm}^{eff} et Γ_{ALSD} sont exprimés respectivement en Hz/T et en Hz.

On peut également estimer le coefficient gyromagnétique effectif du Tm en supposant qu'il est égal à la moyenne quadratique des trois composantes $\gamma_x, \gamma_y, \gamma_z$ du tenseur gyromagnétique, soit $\sqrt{(\gamma_x^2 + \gamma_y^2 + \gamma_z^2)/3}$. On devrait alors trouver $\gamma_{eff}^{(g)} = 233,1$ MHz/T dans l'état fondamental et $\gamma_{eff}^{(e)} = 48,4$ MHz/T dans l'état excité.

Décroissance de l'écho Raman dans l'état fondamental

A titre d'exemple, on a représenté sur la figure 4.24 la décroissance de l'écho Raman dans l'état fondamental pour un splitting $\Delta_g = 8$ MHz (soit un champ appliqué de $B = 0,19$ T), obtenue pour t_{12} allant de 100 à 425 μs . L'ajustement par une fonction exponentielle donne une durée de vie $T_2 = 367 \pm 17$ μs . Nous avons aussi ajusté aux points expérimentaux la courbe représentant la décroissance de l'écho Raman telle qu'elle est prédite par l'équation (4.30). Cet ajustement nous permet de déterminer $\Gamma_{ALSD}^g = 2190 \pm 50$ Hz, et d'en déduire le coefficient gyromagnétique effectif dans l'état fondamental du Tm^{3+} :YAG :

$$\gamma_{Tm}^{eff,g} = 49,7 \pm 1,5 \text{ MHz/T} \quad (4.34)$$

Décroissance de l'écho Raman dans l'état excité

Dans le Tm^{3+} :YAG, les coefficients γ_y et γ_z du tenseur gyromagnétique sont 5 fois plus faibles dans l'état excité que dans l'état fondamental. Le coefficient γ_x est en revanche 1,5 fois plus fort dans l'état excité (voir le tableau 2.4). On s'attend donc à ce que le coefficient gyromagnétique effectif soit plus faible dans l'état excité que dans l'état fondamental. Ceci implique que la décroissance de l'écho Raman doit être plus lente dans l'état excité. On représente sur la figure 4.25 la décroissance de l'écho Raman dans l'état excité pour un splitting $\Delta_e = 16,4$ MHz (soit un champ appliqué de $B = 0,99$ T), obtenue pour t_{12} allant de 50 à 450 μs . Sur cet intervalle de temps, le signal est observé sur une dynamique extrêmement faible, car l'amplitude de l'écho est divisée seulement par 3. L'ajustement par une fonction exponentielle donne une durée de vie $T_2 = 573 \pm 40$ μs . On a également ajusté aux points expérimentaux la courbe représentant la décroissance de l'écho donnée dans l'équation (4.30). Cet ajustement nous permet de déterminer $\Gamma_{ALSD}^e = 1380 \pm 140$ Hz, et d'en déduire le coefficient gyromagnétique effectif dans l'état excité du Tm^{3+} :YAG :

$$\gamma_{Tm}^{eff,e} = 31,4 \pm 3 \text{ MHz/T} \quad (4.35)$$

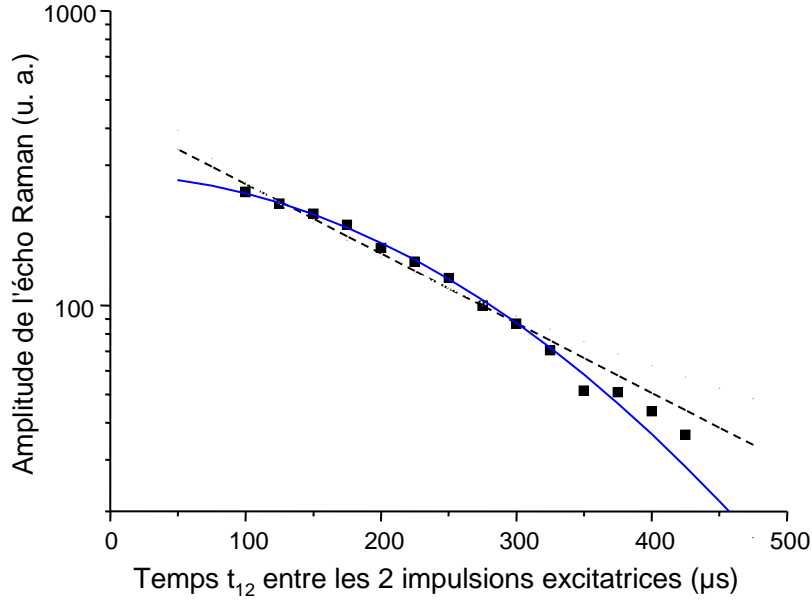


FIG. 4.24 – Amplitude de l'écho Raman dans l'état fondamental pour $\Delta_g = 8$ MHz. L'échelle verticale est logarithmique. On a ajusté les points expérimentaux (carrés noirs) avec une fonction exponentielle e^{-2T/T_2} avec $T_2 = 367 \mu\text{s}$ (ligne tiretée), et avec l'expression de l'équation (4.30), avec $\Gamma_{ALSD} = 2190$ Hz (ligne continue).

4.4.3 Bilan

La durée de vie des cohérences de spin nucléaire dans le $\text{Tm}:\text{YAG}$ ($350 \mu\text{s}$) est comparable à celle mesurée dans le $\text{Pr}:\text{YSO}$ ($500 \mu\text{s}$). Ce résultat est surprenant, car comme le montre le tableau 4.1, le coefficient gyromagnétique moyen du thulium dopé dans le YAG est environ 3 fois plus important que celui du praséodyme dans l'YSO. En outre, à cause des ions aluminium, le cristal de YAG possède une densité de spins largement supérieure à celle du YSO. Le thulium est donc à la fois plus sensible que le praséodyme aux fluctuations du champ magnétique, et est placé dans un environnement donnant lieu à davantage de ces fluctuations. Cela devrait entraîner des mécanismes de relaxation plus rapides dans le $\text{Tm}:\text{YAG}$, et une durée de vie des cohérences de spin largement inférieure à celle qui a été mesurée dans le $\text{Pr}:\text{YSO}$.

Cette apparente contradiction peut s'expliquer par un effet de *frozen core*. Chaque ion Tm^{3+} possède un moment magnétique qui déplace de façon statique les niveaux d'énergie des atomes d'aluminium environnants. Les basculements entre Al par flip-flops sont alors ralentis au voisinage des ions de thulium. Cet effet est d'autant plus important que le moment magnétique du Tm est élevé. A cause de l'effet Zeeman nucléaire exacerbé, l'ion thulium possède un moment magnétique plus important dans l'état fondamental que dans l'état excité. On s'attend alors à un effet de frozen core plus marqué dans l'état

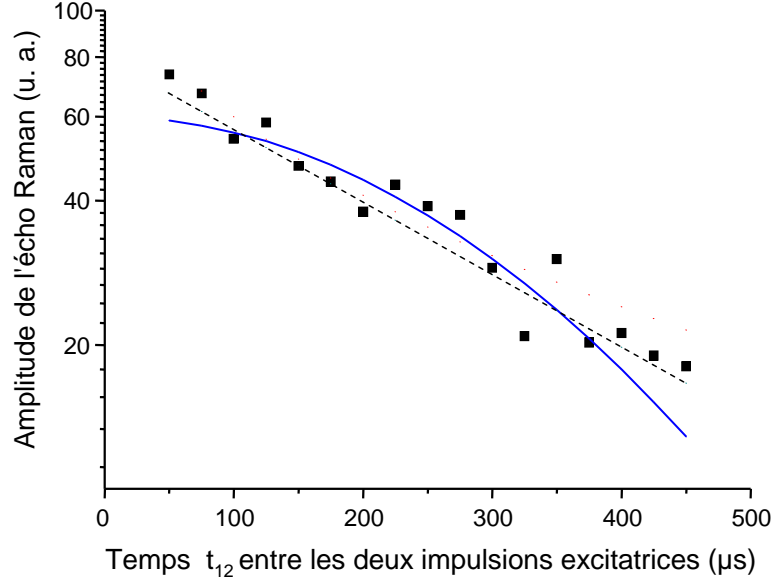


FIG. 4.25 – Amplitude de l'écho Raman dans l'état excité pour $\Delta_e = 16,4$ MHz. L'échelle verticale est logarithmique. On a ajusté les points expérimentaux (carrés noirs) avec une fonction exponentielle e^{-2T/T_2} avec $T_2 = 573 \mu\text{s}$ (ligne tiretée), et avec l'expression de l'équation (4.30), avec $\Gamma_{AISD} = 1383$ Hz (ligne continue).

fondamental que dans l'état excité. Cet effet a été observé dans le $\text{Pr}:\text{LaF}_3$ [135] autour des ions Pr^{3+} qui présentent un moment magnétique plus faible que le thulium. C'est probablement à cause de l'effet de frozen core que les coefficients gyromagnétiques effectifs $\gamma_{Tm}^{eff,g}$ et $\gamma_{Tm}^{eff,e}$ déterminés à partir de la décroissance de l'écho Raman (voir les figures 4.24 et 4.25) sont largement inférieurs aux coefficients moyens du tableau 4.1. L'effet de frozen core n'est pas pris en compte dans le calcul de Böttger *et al.* [132].

La diffusion spectrale due aux basculements des spins nucléaires des atomes d'aluminium présents dans le cristal de YAG combinée à un effet de frozen core explique donc de façon relativement satisfaisante les résultats expérimentaux.

Les équations (4.30) et (4.31) qui décrivent la décroissance du signal d'écho Raman en fonction du temps séparant les deux impulsions nous permettent de prévoir le comportement de la durée de vie T_2 des cohérences Raman pour des champs magnétiques plus importants. Les paramètres Γ_{AISD} et R_{Al} dépendent de l'amplitude du champ magnétique appliqué à travers la fonction $\text{sech}\left(\frac{\hbar\gamma_{Al}B}{2kT}\right)$. Pour une température de $T = 2$ K, cette fonction reste constante égale à 1 tant que $B < 1000$ T. Or, le champ magnétique statique que l'on peut générer avec des bobines supraconductrices conventionnelles est limité à une dizaine de teslas. On s'attend donc à ce que la durée de vie des cohérences Raman reste constante dans l'état fondamental et dans l'état excité pour n'importe quel champ

	Tm :YAG	Pr :YSO
γ_x (MHz/T)	11,8	28,6
γ_y (MHz/T)	403	30,5
γ_z (MHz/T)	20,7	115,6
$\sqrt{\gamma_x^2 + \gamma_y^2 + \gamma_z^2}/\sqrt{3}$ (MHz/T)	233	70
T_2	350 μs	500 μs

TAB. 4.1 – Coefficients gyromagnétiques et durée de vie des cohérences Raman dans l'état fondamental du Tm :YAG et du Pr :YSO. Les coefficients du tenseur gyromagnétiques du Pr :YSO sont tirées de la thèse d'E. Fraval [134].

magnétique externe supérieur à 2 T produit en laboratoire.

Pour allonger la durée de vie des cohérences de spin nucléaire dans le Tm :YAG, on pourrait envisager de découpler les spins nucléaires des ions aluminium, en excitant leur transition hyperfine à résonance avec un champ radio-fréquence, comme cela a été fait dans le $\text{Pr}^{3+}:\text{LaF}_3$ [136].

4.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté les différentes étapes théoriques et expérimentales qui nous ont permis de mesurer la durée de vie des cohérences Raman dans l'état excité et dans l'état fondamental de l'ion Tm^{3+} au moyen d'excitations optiques uniquement. La mise en évidence expérimentale des battements Raman cohérents dans l'état excité constitue la première étape de cette démarche. A cause d'un élargissement inhomogène trop important sur la transition hyperfine, les battements Raman cohérents n'ont pas pu être observés dans l'état fondamental. La mise en œuvre d'expériences d'écho Raman est donc nécessaire pour accéder à la durée de vie des cohérences Raman. Nous avons ensuite généralisé les résultats théoriques de la partie 3.2, où l'on a décrit les différentes étapes d'une expérience d'écho Raman dans un système à 3 niveaux, au cas d'un système à 4 niveaux. Enfin, l'optimisation expérimentale de la séquence d'impulsions et de certains paramètres expérimentaux a permis d'obtenir un signal d'écho Raman suffisamment intense pour que la durée de vie T_2 des cohérences Raman puisse être mesurée.

L'ajustabilité du splitting entre les sous-niveaux hyperfins combinée à la simplicité de sa structure de niveaux est une spécificité de l'ion thulium. Nous avons mesuré la durée de vie des cohérences T_2 dans les sous-niveaux de l'état fondamental pour différents champs magnétiques compris entre 0,12 et 2 T, correspondant à des splittings compris entre 5 et 83 MHz. Nous avons observé que T_2 est d'environ 350 μs et varie peu avec

le splitting sur tout l'intervalle exploré. La relaxation des cohérences Raman dans l'état excité et dans l'état fondamental semble être due aux basculements *flip-flops* des spins d'aluminium proches des ions thulium. On s'attend par ailleurs à une durée de vie des cohérences Raman constante pour des champs magnétiques supérieurs à 2 T.

L'absence de sélectivité en polarisation des transitions optiques rend indispensable l'utilisation de sources dont la bande passante est inférieure au splitting. Or les sources de photon unique existantes peuvent atteindre aujourd'hui une bande passante minimale de 50 MHz [38, 39]. La stabilité du T_2 pour des splittings allant jusqu'à 83 MHz, et probablement au-delà, montre l'attractivité de l'ion thulium pour la réalisation d'une mémoire quantique dans un matériau solide.

Chapitre 5

Passage adiabatique par effet Raman stimulé (STIRAP)

Les expériences d'écho Raman décrites dans le chapitre 4 nous ont permis de mesurer la durée de vie des cohérences de spin dans le Tm :YAG par des moyens optiques. Néanmoins, malgré un effort d'optimisation théorique et expérimentale, le processus est resté très peu efficace par rapport à l'écho de photon. Nous avons su exciter la cohérence Raman, mais nous ne sommes pas parvenus dans ces expériences à la contrôler efficacement. Nous nous sommes donc tournés vers le passage adiabatique par effet Raman stimulé (STIRAP), afin de manipuler la cohérence Raman d'une manière différente.

Dans un système en Λ , le STIRAP permet de transférer la totalité des atomes de l'un des deux niveaux fondamentaux vers l'autre, en faisant évoluer un état de superposition entre ces deux niveaux. Contrairement à l'écho Raman, dans lequel on détecte la réponse radiative du matériau, l'étude du STIRAP consiste à observer la modification des populations atomiques. Ce processus présente l'intérêt d'être robuste, c'est-à-dire peu sensible aux variations des aires d'impulsions.

Dans la première partie de ce chapitre, nous décrirons plusieurs techniques qui permettent de réaliser un transfert de population entre les sous-niveaux fondamentaux d'un système en Λ . Dans la seconde partie, nous présenterons en détail le processus de STIRAP d'un point de vue théorique. Enfin, nous décrirons dans la troisième partie la mise en œuvre expérimentale du STIRAP dans l'échantillon de Tm :YAG que nous avons caractérisé dans les chapitres précédents.

5.1 Transferts de population dans un système en Λ

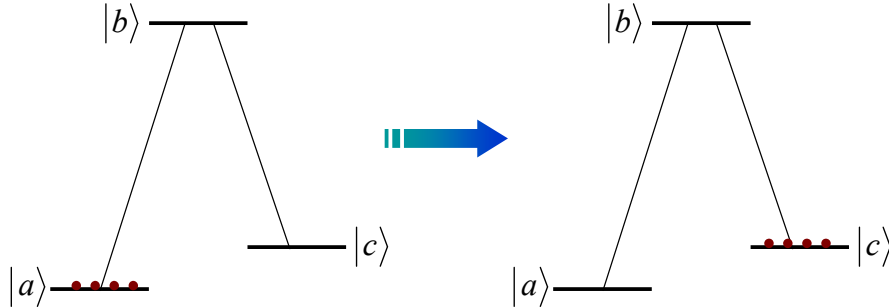


FIG. 5.1 – Etat du système avant et après un transfert idéal de population.

On cherche à transférer la population d'un sous-niveau atomique $|a\rangle$ vers un autre sous-niveau $|c\rangle$ vide d'atomes dans un système à 3 niveaux, comme indiqué dans la figure 5.1. On se place dans un système à 3 niveaux de type Λ , où les deux sous-niveaux fondamentaux $|a\rangle$ et $|c\rangle$ sont reliés par des transitions optiques à un même niveau $|b\rangle$. On fait aussi l'hypothèse que la durée de vie des populations dans les sous-niveaux $|a\rangle$ et $|c\rangle$ est infiniment longue.

Plusieurs techniques sont envisageables pour réaliser un tel transfert de population. Elles sont recensées dans la référence [137]. Certaines de ces techniques mettent en jeu des processus incohérents, comme le pompage optique ou le pompage par émission stimulée (*stimulated emission pumping*). Comme nous allons le voir, ces techniques présentent en général une faible efficacité. Le STIRAP, en revanche, met en jeu des processus cohérents et permet d'atteindre une efficacité de transfert de 100%.

Pompage optique

Ce premier type de transfert consiste à illuminer les atomes à l'aide d'un laser résonnant avec la transition optique qui s'appuie sur le niveau initialement peuplé $|a\rangle$. On suppose que l'excitation laser ne peut exciter que la transition $|a\rangle \rightarrow |b\rangle$, comme cela a été représenté en figure 5.2. Ceci est possible si les deux transitions sont sélectives en polarisation, ou, à défaut, si le niveau $|c\rangle$ est suffisamment séparé en énergie du niveau $|a\rangle$.

Chaque atome qui absorbe un photon est porté dans l'état excité $|b\rangle$. Il a une certaine probabilité de se désexciter, soit vers le niveau $|a\rangle$, soit vers le niveau $|c\rangle$. S'il tombe dans l'état $|c\rangle$, il devient alors insensible au champ excitateur, et il reste donc indéfiniment dans cet état puisque la durée de vie des populations dans les sous-niveaux de l'état fondamental est supposée infinie. Si en revanche l'atome retombe dans le niveau de départ,

il est à nouveau susceptible d'être excité vers le niveau $|b\rangle$. Au bout d'un grand nombre de cycles, même si l'excitation est incohérente, tous les atomes résonnants optiquement avec le champ appliqué auront quitté l'état de départ $|a\rangle$. Un tel processus se produit donc à l'échelle de temps de plusieurs fois la durée de vie du niveau excité.

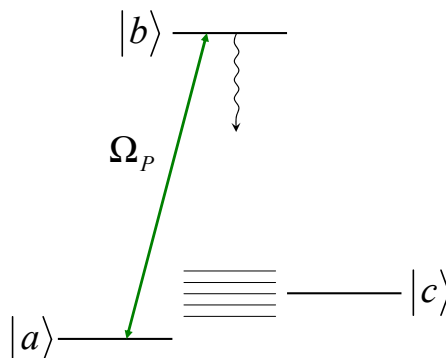


FIG. 5.2 – Pompage optique dans un système à 3 niveaux.

S'il existe d'autres niveaux atomiques vers lesquels l'atome peut se désexciter, alors l'atome va se retrouver dans un mélange statistique entre plusieurs états, plutôt que dans l'état $|c\rangle$. L'efficacité du transfert s'en trouve donc réduite. Si au contraire, le système en Λ est fermé, le transfert de population par pompage optique peut atteindre 100%.

Pompage par émission stimulée

Le pompage par émission stimulée (ou *stimulated emission pumping*) est aussi un processus incohérent. Comme pour le pompage optique, les atomes dans l'état initial $|a\rangle$ sont pompés de façon incohérente dans l'état excité $|b\rangle$ par un premier champ excitateur, appelé Pompe. Puis, au lieu d'attendre que les atomes se désexcitent naturellement vers les niveaux de plus basse énergie, on stimule la transition $|b\rangle \rightarrow |c\rangle$ pour forcer les atomes à se désexciter vers l'état $|c\rangle$ à l'aide d'un second champ, appelé Stokes. On évite ainsi la désexcitation vers d'autres niveaux. Si les deux champs Pompe et Stokes sont suffisamment intenses pour saturer les transitions optiques, on peut atteindre une efficacité de transfert de $1/4$, tandis que la moitié des atomes reste dans l'état de départ. On peut améliorer légèrement l'efficacité de ce processus en appliquant simultanément les deux champs, ce qui conduit en principe à une efficacité de transfert de $1/3$. Malgré son efficacité très faible, le pompage par émission stimulée a été largement utilisé par exemple dans le domaine de la spectroscopie moléculaire [138].

Comme pour le pompage optique, seuls les atomes résonnants avec le champ Pompe sont portés dans l'état excité. En outre, seuls les atomes résonnants avec le champ Stokes peuvent être désexcités vers $|c\rangle$ par émission stimulée. Ainsi, le processus de pompage par

émission stimulée permet de transférer seulement les atomes dont la transition $|a\rangle \rightarrow |b\rangle$ et la transition $|c\rangle \rightarrow |b\rangle$ sont résonnantes optiquement avec les champs Pompe et Stokes respectivement.

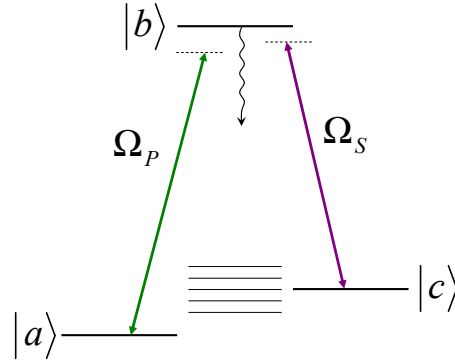


FIG. 5.3 – Pompage par émission stimulée dans un système à 3 niveaux.

Oscillations de Rabi

On considère maintenant le même système en Λ représenté dans la figure 5.3, mais excité de manière cohérente par les champs pompe et Stokes. L'excitation cohérente résonnante d'un système à deux niveaux donne lieu à des oscillations de Rabi. En particulier, lorsque l'aire de l'impulsion excitatrice est un multiple impair de π , les atomes sont tous portés dans l'état excité. On peut tirer parti de cette propriété pour effectuer un transfert complet de population depuis l'état $|a\rangle$ jusqu'à l'état $|c\rangle$, en passant par le niveau $|b\rangle$.

En théorie, l'efficacité d'un tel processus atteint 100% pour les atomes résonnants avec les deux champs. En pratique, elle est limitée par la sensibilité du transfert aux aires d'impulsions. En effet, le profil spatial du faisceau, et éventuellement le mouvement des atomes dans le faisceau fait que même les atomes résonnants ne voient pas tous des impulsions de même aire.

Passage adiabatique par effet Raman stimulé (STIRAP)

Le passage adiabatique par effet Raman stimulé est une autre technique qui permet d'effectuer un transfert complet de population entre les deux états fondamentaux d'un système en Λ . Elle consiste à placer les atomes dans une superposition entre les deux niveaux fondamentaux du Λ , et à faire évoluer lentement cet état de superposition de l'état de départ vers l'état d'arrivée, sans qu'il n'acquière jamais une composante selon l'état excité au cours du processus. Cela est réalisé en excitant les deux transitions optiques à l'aide de deux champs monochromatiques Pompe et Stokes, dans un ordre contre-intuitif (c'est-à-dire que le champ Stokes précède le champ Pompe). Le STIRAP a d'abord été

suggéré dans l'article théorique de Oreg *et al.* [139], avant d'être démontré expérimentalement dans un jet moléculaire [140, 141].

Ce processus présente des différences importantes par rapport aux trois techniques présentées plus haut. D'une part, la population de l'état excité reste nulle tout au long du transfert, malgré l'excitation des transitions optiques. Ceci n'est possible que parce que le champ Stokes précède le champ Pompe. Cela permet d'éviter l'émission spontanée ainsi que les pertes des atomes vers d'autres niveaux n'appartenant pas au Λ . De plus, comme on le montrera plus loin dans ce chapitre, la sélectivité spectrale du STIRAP est celle d'un processus à deux photons. Les atomes transférés par STIRAP ne doivent pas nécessairement être résonnants optiquement avec les champs Pompe et Stokes. En outre, c'est un transfert robuste, c'est-à-dire qu'il n'est pas sensible à de petites variations des paramètres expérimentaux, comme l'aire des impulsions excitatrices. Enfin, le STIRAP fait intervenir la cohérence Raman entre les deux niveaux de départ et d'arrivée. C'est pourquoi il doit être réalisé sur une échelle de temps inférieure à la durée de vie de cette cohérence Raman.

5.2 Le STIRAP : principes généraux

On décrit ici le STIRAP d'abord dans un système à 3 niveaux idéal, en s'appuyant sur l'article de revue de Bergmann *et al.* [142]. Ensuite, on présentera les compléments qu'il faut apporter au modèle lorsque l'on veut décrire le STIRAP dans un système réel.

5.2.1 Description théorique du STIRAP dans un système à 3 niveaux

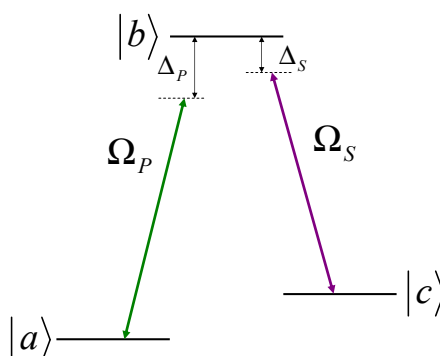


FIG. 5.4 – Système à 3 niveaux pour le STIRAP. Les transitions $|a\rangle \rightarrow |b\rangle$ et $|c\rangle \rightarrow |b\rangle$ sont excitées respectivement par les champs Pompe et Stokes, avec des désaccords optiques respectifs Δ_P et Δ_S .

On considère un système à 3 niveaux en Λ soumis à deux champs monochromatiques, appelés Pompe et Stokes. Ce système est représenté dans la figure 5.4. On suppose pour simplifier que chacun de ces champs ne peut exciter qu'une seule transition ($|a\rangle \rightarrow |b\rangle$ pour le champ Pompe, et $|c\rangle \rightarrow |b\rangle$ pour le champ Stokes). Le système est décrit par la fonction $|\psi(t)\rangle = a(t)|a\rangle + b(t)|b\rangle + c(t)|c\rangle$. On définit un nouveau système de coordonnées $\tilde{a}, \tilde{b}, \tilde{c}$:

$$\begin{aligned}\tilde{a}(t) &= a(t)e^{i\omega_a t} \\ \tilde{b}(t) &= b(t)e^{i(\omega_b - \Delta_P)t} \\ \tilde{c}(t) &= c(t)e^{i(\omega_c + \Delta_S - \Delta_P)t}\end{aligned}\tag{5.1}$$

Δ_P et Δ_S représentent respectivement le désaccord des pulsations optiques par rapport aux transitions Pompe et Stokes. Dans l'approximation de l'onde tournante, l'équation de Schrödinger s'écrit :

$$\begin{pmatrix} \dot{\tilde{a}} \\ \dot{\tilde{b}} \\ \dot{\tilde{c}} \end{pmatrix} = \frac{i}{2} \underbrace{\begin{pmatrix} 0 & \Omega_P & 0 \\ \Omega_P^* & -2\Delta_P & \Omega_S^* \\ 0 & \Omega_S & 2(\Delta_S - \Delta_P) \end{pmatrix}}_A \begin{pmatrix} \tilde{a} \\ \tilde{b} \\ \tilde{c} \end{pmatrix}\tag{5.2}$$

A résonance Raman

Lorsque la condition de résonance à 2 photons ($\Delta_P = \Delta_S$) est satisfaite, la matrice A intervenant dans l'équation (5.2) possède les vecteurs propres et valeurs propres instantanés suivants :

$$\begin{aligned}|a^0\rangle &= \cos \Theta |a\rangle - \sin \Theta |c\rangle \\ |a^+\rangle &= \sin \Theta \sin \Phi |a\rangle + \cos \Phi |b\rangle + \cos \Theta \sin \Phi |c\rangle \\ |a^-\rangle &= \sin \Theta \cos \Phi |a\rangle - \sin \Phi |b\rangle + \cos \Theta \cos \Phi |c\rangle\end{aligned}\tag{5.3}$$

$$\begin{aligned}E^0 &= 0 \\ E^+ &= \frac{\hbar}{2} \left(\Delta + \sqrt{\Delta^2 + \Omega_P^2 + \Omega_S^2} \right) \\ E^- &= \frac{\hbar}{2} \left(\Delta - \sqrt{\Delta^2 + \Omega_P^2 + \Omega_S^2} \right)\end{aligned}\tag{5.4}$$

Δ désigne le désaccord optique commun des champs Pompe et Stokes, $\Delta = \Delta_P = \Delta_S$. Les angles Θ et Φ dépendent du temps et sont définis par :

$$\tan \Theta(t) = \frac{\Omega_P(t)}{\Omega_S(t)} \quad \text{et} \quad \tan 2\Phi(t) = \frac{\sqrt{\Omega_P(t)^2 + \Omega_S(t)^2}}{\Delta}\tag{5.5}$$

Parmi les trois états propres instantanés $|a^0\rangle$, $|a^+\rangle$ et $|a^-\rangle$, seul l'état $|a^0\rangle$, appelé état noir (ou *dark state*) ne possède pas de composante de l'état excité $|b\rangle$, quelles que soient les pulsations de Rabi des champs Stokes et Pompe. Il est donc insensible à la relaxation des cohérences optiques et à la désexcitation par émission spontanée.

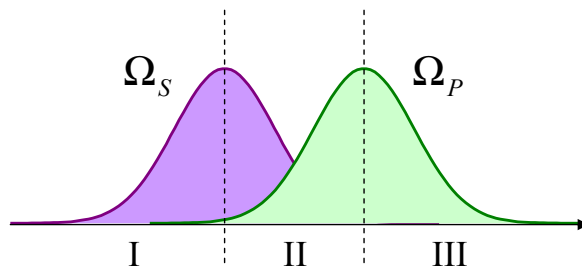


FIG. 5.5 – Enveloppe temporelle des excitations Stokes et Pompe pour le STIRAP.

D'après l'équation (5.5), on peut faire varier l'angle Θ de 0 à $\pi/2$ en jouant sur les pulsations de Rabi des champs Stokes et Pompe. On applique la séquence d'impulsions représentée dans la figure 5.5. Cette séquence peut être subdivisée en 3 étapes I, II et III.

- I. Le champ Stokes est appliqué sur la transition $|b\rangle \rightarrow |c\rangle$, vide d'atomes. La pulsation de Rabi Ω_P du champ Pompe est nulle, donc l'angle Θ est nul. L'état propre $|a^0\rangle$ coïncide avec l'état $|a\rangle$ pendant toute cette première étape.
- II. Ensuite, on réduit jusqu'à zéro la pulsation Ω_S , tout en augmentant Ω_P . L'angle Θ augmente alors, jusqu'à atteindre $\pi/2$ lorsque $\Omega_S = 0$. A la fin de l'étape II, l'état $|a^0\rangle$ coïncide avec l'état $|c\rangle$.
- III. On réduit enfin Ω_P jusqu'à ce que les deux pulsations Pompe et Stokes soient nulles.

Ainsi, pendant que Θ évolue de 0 à $\pi/2$, l'état noir $|a^0\rangle$ évolue progressivement de $|a\rangle$ vers $|c\rangle$, sans jamais acquérir de composante sur l'état excité $|b\rangle$, à condition que les deux impulsions soient partiellement superposées. L'état noir constitue donc le véhicule approprié pour transférer la population de l'état $|a\rangle$ à l'état $|c\rangle$.

Pour que le système suive adiabatiquement l'évolution de l'état noir pendant toute l'expérience, il doit coïncider initialement avec celui-ci, et la condition d'adiabaticité doit être vérifiée. La condition d'adiabaticité est donnée par [57] :

$$\langle \dot{a}^0 | a^\pm \rangle \ll |E^0 - E^\pm| \quad (5.6)$$

Elle signifie que la probabilité de transition entre l'état noir $|a^0\rangle$ et les autres états propres $|a^+\rangle$ et $|a^-\rangle$ est négligeable. Cette condition peut être exprimée en fonction de l'angle Θ :

$$|\dot{\Theta}| \ll |E^0 - E^\pm| \quad (5.7)$$

Elle peut s'écrire sous une forme plus simple à résonance optique [141] :

$$\Omega_{\text{eff}}\Delta\tau \gg 1 \quad (5.8)$$

où $\Delta\tau$ est la durée pendant laquelle les impulsions Pompe et Stokes sont superposées, et Ω_{eff} est la pulsation de Rabi effective donnée par : $\Omega_{\text{eff}} = \sqrt{\Omega_P^2 + \Omega_S^2}$. Loin de la résonance optique, elle s'écrit plutôt :

$$\Omega_{\text{eff}}^2\Delta\tau \gg |\Delta| \quad (5.9)$$

Cette condition d'adiabaticité fixe une borne supérieure au désaccord optique Δ . Le STIRAP est efficace à 100% pour tous les atomes qui vérifient la condition d'adiabaticité. Le transfert peut donc être complet même pour les atomes qui ne sont pas résonnants optiquement avec les deux champs Pompe et Stokes ($\Delta \neq 0$). Si au contraire la condition d'adiabaticité n'est pas vérifiée, par exemple si les pulsations de Rabi des impulsions sont trop faibles, le vecteur décrivant l'état du système précesse autour de l'état noir $|a^0\rangle$. Cela signifie qu'il a des composantes selon les états $|a^+\rangle$ ou $|a^-\rangle$, et l'efficacité du transfert est réduite.

Dans le STIRAP, l'impulsion Stokes doit précéder l'impulsion Pompe. Cela peut paraître contre-intuitif à première vue, par rapport au pompage par émission stimulée. En réalité, il est indispensable que les impulsions soient appliquées dans cet ordre, afin que l'état initial du système coïncide avec l'état noir. La transparence électromagnétiquement induite (EIT) constitue un exemple typique de processus dans un système en Λ dans lequel la transition vide d'atomes doit être excitée en premier [20]. Dans le STIRAP comme dans l'EIT, le champ appliqué sur la transition vide d'atomes crée une superposition entre les états non peuplés, et permet à l'autre champ appliqué ensuite (Pompe dans le STIRAP, ou Signal dans l'EIT) de ne pas être absorbé, même s'il excite une transition peuplée.

Cela a des conséquences sur la stabilité requise de la source utilisée. En effet, comme on cherche à inhiber la création des cohérences optiques, il n'est pas nécessaire que la largeur spectrale du laser soit inférieure à l'inverse de la durée des impulsions Stokes et Pompe pour que la cohérence Raman soit contrôlée efficacement. Cette situation est très différente de celle des échos Raman, où les cohérences Raman sont créées à partir des cohérences optiques. On cherche dans ce cas à contrôler les cohérences optiques, ce qui nécessite de travailler avec un laser présentant une stabilité meilleure que l'inverse de la durée des impulsions excitatrices.

En présence de relaxation, l'évolution du système est décrite par les équations de la matrice densité, dérivées de l'équation (5.2) :

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{aa} &= \frac{i}{2}(\Omega_P\tilde{\rho}_{ab} - \Omega_P^*\tilde{\rho}_{ba}) + r_a\gamma_b\rho_{bb} \\ \dot{\rho}_{cc} &= \frac{i}{2}(\Omega_S\tilde{\rho}_{cb} - \Omega_S^*\tilde{\rho}_{bc}) + r_c\gamma_b\rho_{bb} \\ \rho_{bb} &= 1 - \rho_{aa} - \rho_{cc} \end{aligned} \quad (5.10)$$

$$\begin{aligned}
 \dot{\tilde{\rho}}_{ab} &= \frac{i}{2}\Omega_P^*(\rho_{aa} - \rho_{bb}) - (i\Delta_P + \gamma_{ab})\tilde{\rho}_{ab} + \frac{i}{2}\Omega_S^*\tilde{\rho}_{ac} \\
 \dot{\tilde{\rho}}_{cb} &= \frac{i}{2}\Omega_S^*(\rho_{cc} - \rho_{bb}) - (i\Delta_S + \gamma_{cb})\tilde{\rho}_{cb} + \frac{i}{2}\Omega_P^*\tilde{\rho}_{ca} \\
 \dot{\tilde{\rho}}_{ac} &= -\frac{i}{2}\Omega_P^*\tilde{\rho}_{bc} + \frac{i}{2}\Omega_S\tilde{\rho}_{ab} + [i(\Delta_S - \Delta_P) - \gamma_{ac}]\tilde{\rho}_{ac}
 \end{aligned}$$

γ_{ab} , γ_{cb} , et γ_{ac} désignent les largeurs homogènes des transitions optiques $|a\rangle \rightarrow |b\rangle$ et $|c\rangle \rightarrow |b\rangle$, et de la transition Raman $|a\rangle \rightarrow |c\rangle$. γ_b désigne le taux de relaxation des populations de l'état $|b\rangle$ vers les sous-niveaux de l'état fondamental. r_a et r_c désignent respectivement la probabilité que les atomes dans l'état excité $|b\rangle$ se désexcitent dans l'état $|a\rangle$ ou $|c\rangle$. Ils vérifient $r_a + r_c = 1$.

Hors résonance Raman

Lorsque la condition de résonance à deux photons n'est pas satisfaite ($\Delta_P \neq \Delta_S$), le système d'équations donné dans l'équation (5.2) possède des valeurs propres et états propres plus compliqués, qui ont été explicités dans la référence [143]. Les trois états propres du hamiltonien contiennent tous une composante de l'état excité. Il a été démontré dans cet article qu'aucun de ces états propres ne peut évoluer adiabatiquement de l'état de départ $|a\rangle$ vers l'état d'arrivée $|c\rangle$ si la condition de résonance à deux photons n'est pas strictement vérifiée. Cela n'empêche pas le transfert de population, qui se produit alors via des processus non adiabatiques. L'état excité est alors peuplé au cours de l'expérience, et l'efficacité du transfert est en général réduite.

5.2.2 STIRAP dans un système réel

Dans la partie 5.2.1, nous avons décrit le STIRAP en faisant un certain nombre d'hypothèses, qui ne sont pas toujours valides si l'on veut décrire ce processus dans un système réel, en particulier dans le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$.

Le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ possède non pas 3 mais 4 niveaux reliés par des transitions optiques : les deux sous-niveaux de l'état fondamental ${}^3H_6(0)$, et les deux sous-niveaux de l'état excité ${}^3H_4(0)$. Les transitions optiques n'étant pas sélectives en polarisation, chaque champ peut exciter les 4 transitions optiques. On définit les désaccords des fréquences Pompe et Stokes Δ_P et Δ_S par rapport aux transitions $|a\rangle \rightarrow |b\rangle$ et $|c\rangle \rightarrow |b\rangle$, respectivement.

Les transitions optiques n'étant pas sélectives en polarisation, chaque champ peut exciter les 4 transitions. Les pulsations de Rabi des impulsions Stokes et Pompe doivent donc être largement inférieures au splitting Zeeman de l'état fondamental, et vérifier en même temps la condition d'adiabaticité donnée par l'équation (5.9) :

$$\frac{1}{\Delta\tau} \ll \Omega_{\text{eff}} \ll 2\pi\Delta_g \quad (5.11)$$

Le STIRAP peut avoir lieu dans l'un ou l'autre des systèmes en Λ composés des niveaux $|a\rangle$, $|b\rangle$ et $|c\rangle$ ou $|a\rangle$, $|d\rangle$ et $|c\rangle$. Or, dans un système à 4 niveaux, on est confronté au problème de connectivité [144]. En effet, dans un système qui contient plus de 3 niveaux, il peut exister un état adiabatique coïncidant avec l'état de départ lorsque $t \rightarrow -\infty$ ainsi qu'un état adiabatique coïncidant avec l'état d'arrivée lorsque $t \rightarrow +\infty$, mais il est possible qu'il n'existe pas de chemin adiabatique reliant ces deux états.

Il faut également tenir compte de l'état métastable 3F_4 vers lequel les trois quarts des atomes se trouvant dans l'état excité retombent. La durée de vie de ce niveau est de 10 ms. A l'échelle d'une expérience de STIRAP, on peut considérer cette durée comme infinie. Le système à 4+1 niveaux est représenté sur la figure 5.6.

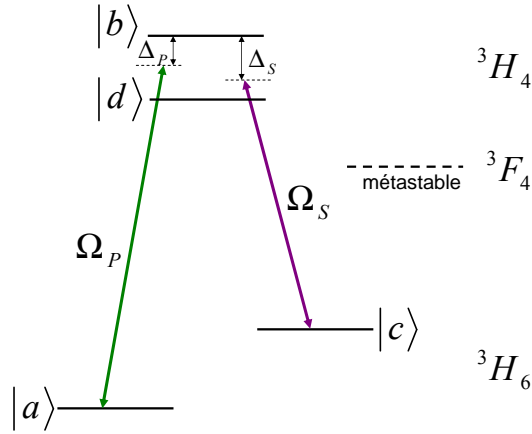


FIG. 5.6 – Système à 4+1 niveaux dans le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$.

Enfin, le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ présente un élargissement inhomogène Raman, qui a été mesuré dans la partie 2.4.3. Quelles que soient les fréquences Stokes et Pompe que l'on choisit, une fraction des atomes ne sera pas excitée à résonance Raman. Comme l'a succinctement décrit, le transfert peut tout de même avoir lieu, mais il se produit selon des transitions non adiabatiques. Cela implique que les cohérences optiques sont créées. Celles-ci ont une durée de vie plus courte encore que les cohérences Raman ($T_2 = 105 \mu\text{s}$ dans le $\text{Tm}:\text{YAG}$).

La première démonstration d'un transfert de population par STIRAP a été réalisée dans un jet moléculaire de Na_2 [141]. De nombreuses expériences dans d'autres matériaux ont suivi. On peut citer par exemple les expériences menées dans des jets de néon métastable (Ne^*) [145], de NO [146, 147], de SO_2 [148], ou dans un nuage d'atomes froids de rubidium [149]. Dans ces systèmes, la durée des impulsions Stokes et Pompe est de l'ordre de quelques ns car elle est limitée par le temps de transit des atomes ou molécules dans le faisceau.

La première démonstration du STIRAP dans un solide est très récente [83]. Elle a été faite dans un cristal de $\text{Pr}:\text{YSO}$ qui présente une durée de vie des cohérences Raman de

500 μs dans l'état fondamental. Les impulsions Stokes et Pompe utilisées ont des durées de l'ordre de 30 μs . Contrairement au Tm :YAG, l'élargissement inhomogène Raman dans le Pr :YSO est suffisamment faible (30 kHz [84]) par rapport aux fréquences de Rabi des faisceaux Pompe et Stokes pour que l'on puisse le négliger dans les simulations. En revanche, le praséodyme présente une structure hyperfine comprenant 6 niveaux (voir la figure 1.8), dans laquelle existent deux systèmes en Λ efficaces. Ces systèmes sont détaillés dans la partie 1.7 de ce manuscrit. Comme dans le Tm :YAG, on peut donc s'attendre à un problème de connectivité entre les différents états adiabatiques du système.

5.3 Expériences

5.3.1 Dispositif expérimental

On utilise le montage optique représenté sur la figure 4.13. On y a ajouté un iris de diamètre 50 μm , placé en position d'imagerie par rapport à l'échantillon, du côté de la détection. Ainsi, on ne sonde avec le faisceau de lecture que les atomes situés à moins de 12,5 μm de l'axe de propagation de la lumière, excités de façon quasiment homogène.

Les étapes de préparation et de lecture sont réalisées à l'aide d'impulsions optiques façonnées par le modulateur acousto-optique AO1. Les impulsions Stokes et Pompe sont façonnées en amplitude et en phase par un générateur de forme arbitraire et transmises respectivement aux modulateurs acousto-optiques AO1 et AO2 montés en double-passage. On programme une enveloppe gaussienne de durée τ pour les impulsions Stokes et Pompe du STIRAP. En raison du montage en double passage, la durée des impulsions appliquées sur l'échantillon est égale à $\tau/\sqrt{2}$. De plus, les modulateurs acousto-optiques présentent des non-linéarités lorsqu'on leur applique une tension rf d'amplitude élevée (supérieure à 600 mV). Les enveloppes temporelles des impulsions Pompe et Stokes sont déformées. L'amplitude maximale du champ électrique est la même pour l'impulsion Stokes que pour l'impulsion Pompe.

5.3.2 Séquence d'impulsions

La séquence d'impulsions est schématisée dans la figure 5.7. A l'équilibre thermique, les atomes sont également répartis sur les deux sous-niveaux de l'état fondamental. Il est nécessaire de commencer par préparer le système dans un de ces deux sous-niveaux. Cette étape, dite de préparation, est effectuée à l'aide d'une dizaine d'impulsions de 500 μs balayées en fréquence sur 3 MHz. Ces impulsions sont séparées de 10 ms, afin de laisser le temps aux ions qui sont tombés dans l'état métastable 3F_4 (de durée de vie 10 ms) de se désexciter vers l'état fondamental 3H_6 . Après un temps d'attente de 10 ms supplémen-

taires, les impulsions Stokes et Pompe sont appliquées. La fréquence ν_S de l'impulsion Stokes est choisie au centre de l'intervalle balayé par les impulsions de préparation. La fréquence de l'impulsion Pompe est décalée de Δ_g par rapport à la fréquence ν_S pour que la condition de résonance à deux photons soit satisfaite. Les impulsions Stokes et Pompe ont la même enveloppe temporelle et la même durée τ . On note τ_d le retard entre ces deux impulsions. $\tau_d < 0$ correspond à l'ordre "contre-intuitif", c'est-à-dire que l'impulsion Stokes précède l'impulsion Pompe. Après ces deux impulsions, on sonde l'absorption de l'échantillon à l'aide d'une impulsion d'1 ms, appelée impulsion de lecture. Elle est peu intense et balayée linéairement en fréquence sur 20 MHz. Cet intervalle doit couvrir le domaine initialement préparé autour de la fréquence Stokes ν_S . L'impulsion de lecture est appliquée 300 μ s après l'impulsion Pompe. Ce temps d'attente de 300 μ s est plus court que la durée de vie des populations dans l'état excité (800 μ s) et de l'état métastable (10 ms). On détecte l'intensité transmise de l'impulsion de lecture avec une photodiode à avalanche. L'intensité transmise à un instant donné au cours de la lecture est fonction de la différence de populations entre le niveau fondamental et le niveau excité des atomes résonnants avec le champ de lecture à cet instant.

Dans le processus de STIRAP, il est important que la différence des deux fréquences des champs Stokes et Pompe soit suffisamment stable pour que la cohérence Raman puisse être manipulée de façon cohérente. Ceci est assuré par l'utilisation d'une même source laser pour produire les deux champs. Comme on n'excite pas les cohérences optiques, il ne semble pas utile de stabiliser cette source. Néanmoins, pour résoudre les différentes structures du spectre en transmission et évaluer correctement l'efficacité de transfert, il est indispensable que la largeur spectrale de la source laser (qui produit les impulsions Stokes et Pompe, mais aussi l'impulsion de lecture) soit inférieure à la racine carrée du taux de chirp de l'impulsion de lecture : $\sqrt{\dot{r}} = 140$ kHz.

La durée de vie des populations dans les sous-niveaux de l'état fondamental est de plusieurs secondes. La séquence étant répétée plusieurs fois par seconde, l'étape de préparation est accumulée sur un grand nombre de séquences. A cause de l'effet de saturation du pompage optique, les ions sont excités sur un intervalle beaucoup plus grand que l'intervalle balayé par les impulsions de préparation, mais qui est néanmoins limité par la quantité $\Delta_g - \Delta_e$.

Lorsque le faisceau incident est polarisé selon la direction [111] par rapport aux axes cristallins, seuls les sites de substitution notés 1, 3 et 5 participent à l'absorption. Par ailleurs, le champ magnétique est orienté de façon que les sites 3 et 5 sont magnétiquement équivalents et présentent tous deux un rapport de branchement optimal. Cette direction optimale a été déterminée dans le chapitre 2. Dans ces conditions, le site 1 ne présente pas de système en Λ . Le transfert de population par STIRAP ne peut donc pas fonctionner dans le site 1. De plus, les splittings Zeeman associés aux ions du site 1 sont très différents

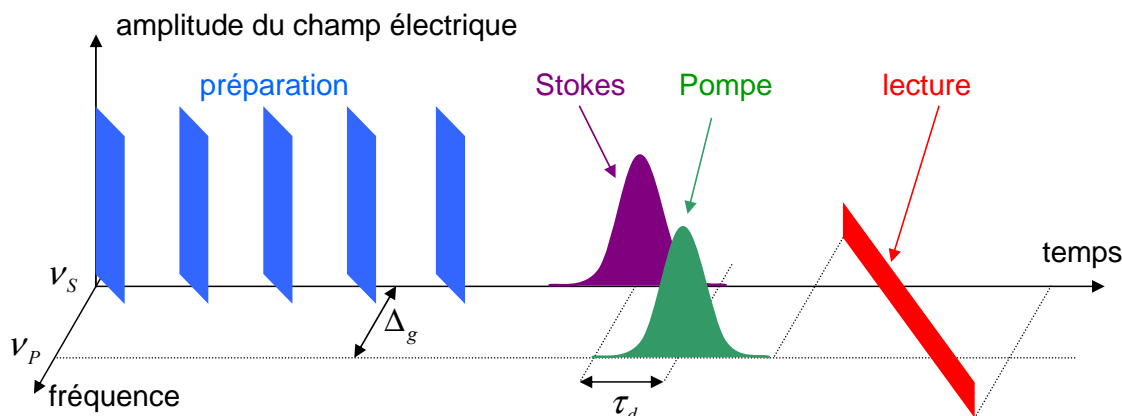


FIG. 5.7 – Séquence d’impulsions pour le STIRAP, constituée successivement d’une étape de préparation, des impulsions Stokes et Pompe, enfin d’une impulsion de lecture. Les impulsions de préparation sont balayées en fréquence sur un intervalle inférieur à $\Delta_g - \Delta_e$. Les impulsions Stokes et Pompe sont monochromatiques et vérifient la condition de résonance à deux photons. L’impulsion de lecture est balayée sur un intervalle assez grand pour couvrir l’intervalle préparé.

de ceux des sites 3 et 5 : la quantité $\Delta_g - \Delta_e$ est de 20 MHz/T pour les sites 3 et 5, et de 261 MHz/T pour le site 1. Les ions du site 1 peuvent donc être préparés sur un intervalle bien plus large que les ions des sites 3 et 5. Les ions du site 1 sont alors placés dans un sous-niveau de l’état fondamental très éloigné en fréquence. La durée de vie de ce niveau étant très longue (voir la partie 2.4.2), on peut considérer que les ions du site 1 ne participent à l’absorption du matériau préparé ni à la fréquence Stokes, ni à la fréquence Pompe, ni sur l’ensemble de l’intervalle balayé par l’impulsion de lecture.

A cause de l’élargissement inhomogène optique, une excitation optique peut exciter 4 classes d’ions, selon la transition résonnante avec l’excitation. On a représenté sur la figure 5.8 les six classes d’ions des sites 3 et 5 qui possèdent une transition optique résonnante avec le champ Stokes ou avec le champ Pompe. On suppose que ces deux champs vérifient la condition de résonance à 2 photons ($\nu_P - \nu_S = \Delta_g$). Soit N le nombre total d’atomes dans chaque classe d’ions. Avant l’étape de préparation, les ions thulium sont à l’équilibre thermique, c’est-à-dire répartis également sur les deux sous-niveaux de l’état fondamental. Dans chacune des 4 classes (i) à (iv), $N/2$ atomes participent à l’absorption à la fréquence ν_S . Sur ces $2N$ atomes, N absorbent selon une transition forte [classes (i) et (iii)] et N absorbent selon une transition faible [classes (ii) et (iv)].

L’étape de préparation modifie les populations dans les sous-niveaux de l’état fondamental dans les classes (i) à (iv). Les impulsions Stokes et Pompe sont ensuite appliquées aux fréquences respectives ν_S et ν_P dans l’ordre contre-intuitif, c’est-à-dire que l’impul-

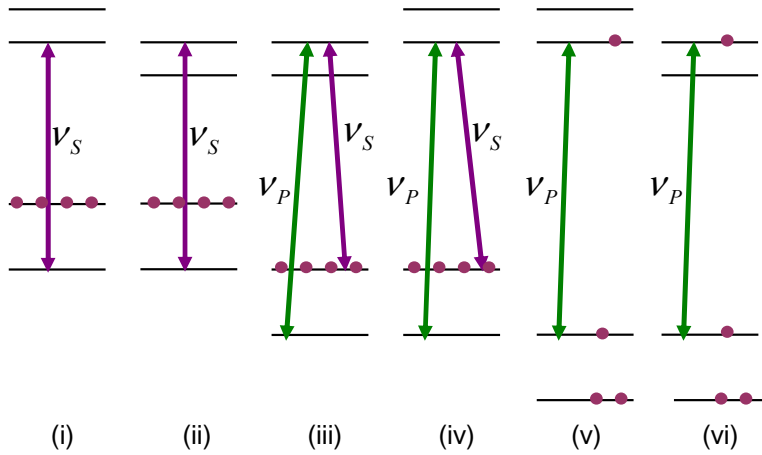


FIG. 5.8 – 6 classes d’ions résonnantes avec les fréquences ν_S ou $\nu_P = \nu_S + \Delta_g$. On a schématisé la répartition des populations atomiques dans les différents niveaux à l’issue de la séquence de STIRAP représentée en figure 5.7. Le niveau résonnant à ν_S est d’abord vidé par les impulsions de préparation dans les classes (i) à (iv). Les classes (v) et (vi), non résonnantes avec les impulsions de préparation, restent dans un état d’équilibre thermique. Puis les impulsions Stokes et Pompe effectuent le transfert de population seulement dans les classes (iii) et (iv) qui sont résonnantes avec les fréquences Stokes et Pompe. En outre, la pompe est absorbée par les ions des classes (v) et (vi).

sions Stokes précède l’impulsion Pompe. On remarque que seules les classes (iii) et (iv) sont préparées dans l’état initial qui permet un transfert par STIRAP. Dans les classes (i) et (ii), en revanche, les ions sont préparés de façon que ce soit l’impulsion Pompe qui excite une transition vide d’atomes. On se trouve donc dans une configuration où l’impulsion qui excite la transition vide succède à celle qui excite la transition peuplée. Dans ce cas, l’état initial ne possède pas de composante de l’état noir. Un transfert de population de ce sous-niveau vers l’autre n’est possible que si l’état excité est peuplé au cours de l’interaction. Or, les deux impulsions Stokes et Pompe sont désaccordées de $\Delta_g - \Delta_e$ [classe (i)] ou de Δ_g [classe (ii)] par rapport aux transitions optiques. Le niveau excité n’est alors peuplé qu’avec une probabilité de l’ordre de $(\frac{\gamma_h}{\Delta_g - \Delta_e})^2 \lesssim 10^{-6}$ pour des champs magnétiques supérieurs à 0,1 T. On en conclut qu’il n’y a aucun transfert de population entre les sous-niveaux des classes (i) et (ii). Le transfert de population par STIRAP ne se produit que dans les deux classes (iii) et (iv). Si le transfert est complet, la totalité des atomes des deux classes (iii) et (iv), soit $2N$ atomes, participe alors à l’absorption d’un faisceau sonde à la fréquence Stokes ν_S . Parmi ces $2N$ atomes, N absorbent selon une transition forte [classe (iii)] et N absorbent selon une transition faible [classe (iv)]. Ainsi, dans un milieu atomique à élargissement inhomogène, l’absorption à la fréquence

Stokes est la même lorsque l'échantillon est à l'équilibre thermique, et après le transfert par STIRAP.

Notons que les classes d'ions (iii) et (iv) ne sont pas équivalentes : l'impulsion Stokes excite une transition forte dans la classe (iii) et une transition faible dans la classe (iv), et inversement pour l'impulsion Pompe. Dans la classe (iii), les pulsations de Rabi maximales vérifient $\Omega_{Pmax} = \sqrt{R} \times \Omega_{Smax}$, où $R = 0,13$ est le rapport de branchement déterminé dans le chapitre 2 de cette thèse. De même, dans la classe (iv), $\Omega_{Smax} = \sqrt{R} \times \Omega_{Pmax}$. Néanmoins, on peut s'attendre à ce que l'efficacité du STIRAP soit identique dans les classes d'ions (iii) et (iv). En effet, la condition d'adiabaticité qui garantit un transfert efficace porte sur la quantité Ω_{eff} et non sur les pulsations de Rabi Ω_P et Ω_S individuellement.

5.4 Résultats expérimentaux

5.4.1 Mesure de l'efficacité de transfert

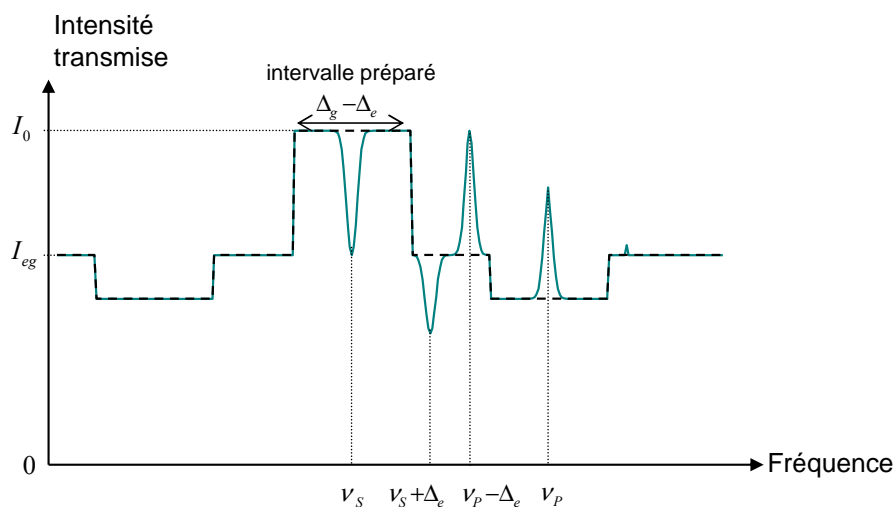


FIG. 5.9 – Intensité transmise attendue après la préparation (ligne pointillée) et après un transfert par STIRAP supposé parfaitement efficace (ligne continue). On considère que seules les transitions fortes occasionnent des modifications de la transmission. L'échantillon est préparé sur un intervalle égal à $\Delta_g - \Delta_e$. Les structures étroites observées aux fréquences ν_S , $\nu_S + \Delta_e$, $\nu_P - \Delta_g$ et ν_P sont dues au transfert de population par STIRAP dans les classes d'ions (iii) et (iv) de la figure 5.8. Les faibles variations d'intensité observées à ν_P et $\nu_P + \Delta_e$ sont dues à l'absorption de l'impulsion Pompe dans les classes (v) et (vi). Par ailleurs, on a fait l'hypothèse que la sélectivité optique du STIRAP prend la forme d'une gaussienne.

Nous représentons schématiquement sur la figure 5.9 l'intensité transmise attendue d'un faisceau sonde balayé en fréquence appliqué à l'échantillon de $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$, après l'étape de préparation ou après l'expérience de STIRAP. On suppose que les ions du site 1 ne participent pas à l'absorption. On suppose aussi que le rapport de branchement dans les ions des sites 3 et 5 est suffisamment faible pour que l'augmentation ou la diminution de l'absorption soit négligeable lorsque le faisceau sonde est résonnant avec une transition faible. Cela revient à supposer que le faisceau sonde ne peut lire que des transitions fortes. On distingue sur la figure 5.9 l'intervalle préparé, de largeur $\Delta_g - \Delta_e$ autour de la fréquence ν_S . Si la préparation est complète, alors l'intensité transmise dans cet intervalle est égale à l'intensité incidente \mathcal{I}_0 . On observe aussi deux intervalles larges de $\Delta_g - \Delta_e$ autour de $\nu_S + \Delta_g$ et $\nu_S - \Delta_g$ où l'absorption est plus importante. Ces structures décrivent l'excès d'atomes dans le sous-niveau non-résonnant avec l'impulsion de préparation. Le processus de STIRAP modifie les populations des sous-niveaux fondamentaux des ions appartenant aux classes (iii) et (iv) (voir figure 5.8). L'intensité transmise de l'impulsion sonde est donc modifiée uniquement au voisinage des fréquences des transitions fortes des classes (iii) et (iv). La forme et la largeur des structures dues au transfert de population par STIRAP sont choisies arbitrairement pour la lisibilité de la figure.

L'efficacité du transfert est mesurée en comparant les différentes intensités dans le signal de la figure 5.9. Elle est donnée par :

$$\eta = \ln \frac{\mathcal{I}_0}{\mathcal{I}_{min}} / \ln \frac{\mathcal{I}_0}{\mathcal{I}_{eg}} \quad (5.12)$$

où \mathcal{I}_0 est l'intensité incidente, \mathcal{I}_{min} est l'intensité du signal transmis à la fréquence ν_S , et \mathcal{I}_{eg} est l'intensité du signal transmis lorsque l'échantillon est à l'équilibre thermique, c'est-à-dire quand les atomes sont également répartis entre les sous-niveaux de l'état fondamental. On suppose que les ions du site 1 ne participent pas à l'absorption sur la totalité de l'intervalle spectral sondé. A la fréquence ν_S , ce sont seulement les ions de la classe (iii) qui sont sondés. Au centre du profil inhomogène, on a en principe :

$$\log_{10} \frac{\mathcal{I}_0}{\mathcal{I}_{eg}} = D_{3,5} \quad (5.13)$$

où $D_{3,5}$ est la densité optique de l'échantillon si l'on suppose que seuls les sites 3 et 5 participent à l'absorption. Dans le chapitre 2, nous avons mesuré $D_{3,5} = 0,2$ au centre de la raie d'absorption du $\text{Tm}:\text{YAG}$.

On donne dans la figure 5.10 un exemple de signal expérimental. Ce signal correspond à l'intensité transmise par l'échantillon lors de l'étape de lecture qui suit les impulsions Stokes et Pompe du STIRAP. La pulsation de Rabi Pompe maximale sur la transition forte, mesurée par nutation optique, est de $\Omega_{Pmax} = 2\pi \times 10^6 \text{ rad.s}^{-1}$. Les impulsions ont une durée de 21 μs et 30 μs et le retard entre l'impulsion Stokes et l'impulsion Pompe est

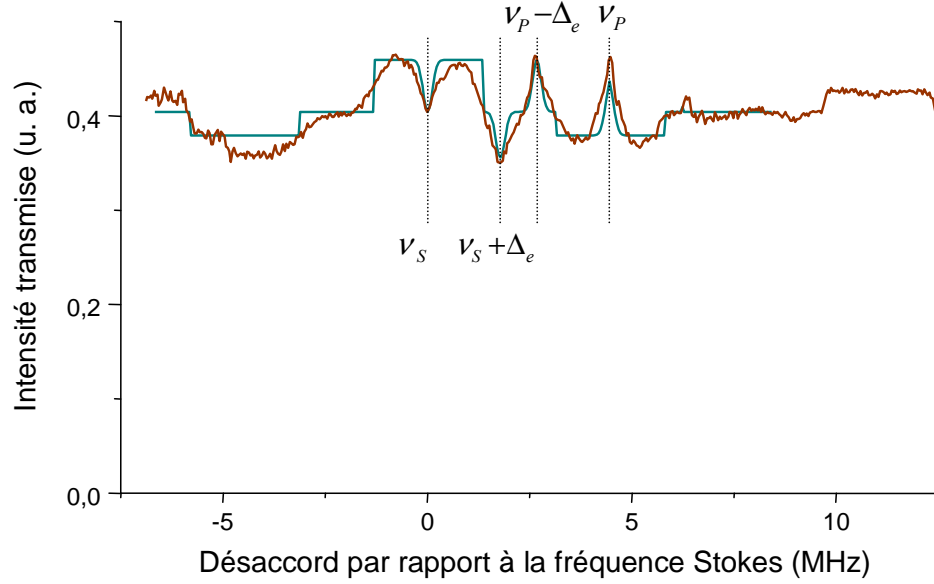


FIG. 5.10 – Intensité transmise par l'échantillon lors de l'application de l'impulsion de lecture balayée en fréquence sur 20 MHz. Le champ magnétique appliqué est de 0,12 T, ce qui correspond à un splitting dans l'état fondamental de $\Delta_g = 4,55$ MHz. L'impulsion Stokes est appliquée avec un retard $\tau_d = -17 \mu\text{s}$. On a superposé à ce signal expérimental la forme attendue du signal donnée dans la figure 5.9.

de $\tau_d = -17 \mu\text{s}$. Le laser est asservi, et présente une largeur spectrale inférieure au kHz. L'efficacité du transfert maximale est ici de 89%. On a superposé à ce signal expérimental le signal attendu donné dans la figure 5.9. La densité optique due à l'absorption des sites 3 et 5 est $D_{3,5} = \log_{10} \frac{I_0}{I_{eg}} \approx 0,06$ est très inférieure à celle attendue car les fréquences optiques utilisées ne sont probablement pas centrées sur le pic d'absorption du Tm :YAG.

Les structures attribuées au STIRAP dans le spectre en transmission représenté dans la figure 5.10 ont une largeur à mi-hauteur de 430 kHz environ. Les atomes sont donc transférés sur un intervalle spectral très large devant l'inverse de la durée des impulsions Stokes et Pompe (de l'ordre de 50 kHz) et devant la largeur spectrale du laser asservi. La largeur spectrale des atomes transférés par STIRAP n'est donc pas limitée par la largeur spectrale des impulsions excitatrices.

La mesure de la transmission de notre échantillon est effectuée à l'aide d'une impulsion balayée en fréquence sur un intervalle plus grand que $\Delta_g - \Delta_e$. Même si la sonde est très peu intense, elle peut pomper une fraction des atomes sondés dans l'état excité. Cet effet se manifeste par une légère diminution de l'absorption à moins de $\Delta_g - \Delta_e$ des extrémités du domaine balayé.

5.4.2 Largeur optique des atomes transférés

Nous avons modélisé le processus de STIRAP à partir des équations de la matrice densité pour un système à 3 niveaux, donné dans le système différentiel de l'équation (5.10), en tenant compte de la relaxation des cohérences optiques et Raman, ainsi que de celle des populations. On se place à résonance Raman, et on néglige un éventuel élargissement inhomogène Raman, comme dans la partie 5.2.1. Cette modélisation permet de calculer le profil spectral des atomes transférés par STIRAP, pour les pulsations de Rabi et les durées d'impulsions mesurées expérimentalement, en fonction du désaccord optique Δ des fréquences Stokes et Pompe par rapport aux transitions atomiques.

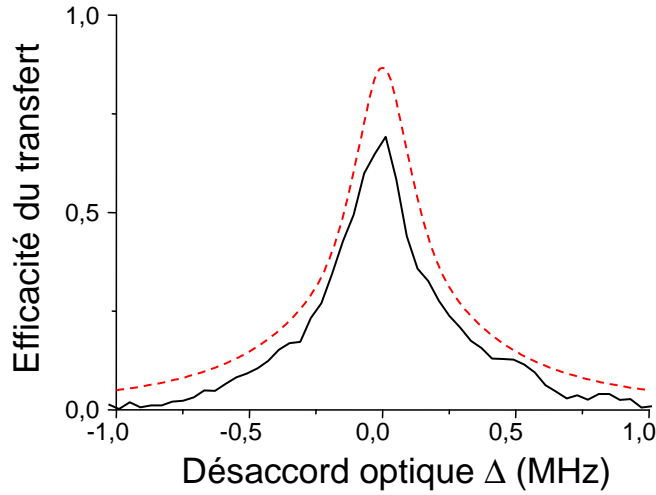


FIG. 5.11 – Efficacité du STIRAP calculée d'après le système d'équations (5.10) (ligne tiretée), et mesurée expérimentalement (ligne continue). Les pulsations de Rabi maximales sont $\Omega_{Pmax} = \Omega_{Smax} = 2\pi \times 0,51 \cdot 10^6 \text{ rad.s}^{-1}$ sur les transitions fortes, et la durée des impulsions Stokes et Pompe est respectivement de $30 \mu\text{s}$ et $21 \mu\text{s}$. Le retard de l'impulsion Stokes est $\tau_D = -17\mu\text{s}$.

Par exemple, nous avons calculé à l'aide du système d'équations (5.10) l'efficacité de transfert en fonction du désaccord optique Δ , lorsque les pulsations de Rabi maximales sont $\Omega_{Pmax} = \Omega_{Smax} = 2\pi \times 0,51 \cdot 10^6 \text{ rad.s}^{-1}$ sur les transitions fortes. La durée des impulsions Stokes et Pompe traversant l'échantillon est respectivement de $30 \mu\text{s}$ et de $21 \mu\text{s}$. Comme le montre la figure 5.11, l'efficacité de transfert calculée atteint 87 % pour les atomes résonnants optiquement avec les champs Stokes et Pompe. De plus, le profil spectral des atomes transférés est symétrique par rapport à la résonance optique, et présente une largeur à mi-hauteur de 330 kHz. Dans l'expérience correspondante, la largeur à mi-hauteur des atomes transférés est aussi de 330 kHz, mais l'efficacité de transfert maximale est de 70 % à résonance optique. Cette réduction de l'efficacité est due en

majeure partie à la présence du quatrième niveau et au problème de connectivité [144].

5.4.3 Signature du STIRAP

Pour prouver que le transfert de population a bien lieu par le mécanisme de STIRAP, on mesure l'efficacité de transfert en fonction du retard τ_d entre l'impulsion Pompe et l'impulsion Stokes. Le retard τ_d prend des valeurs comprises entre $-42 \mu\text{s}$ et $33 \mu\text{s}$. Ces mesures sont données dans la figure 5.12.

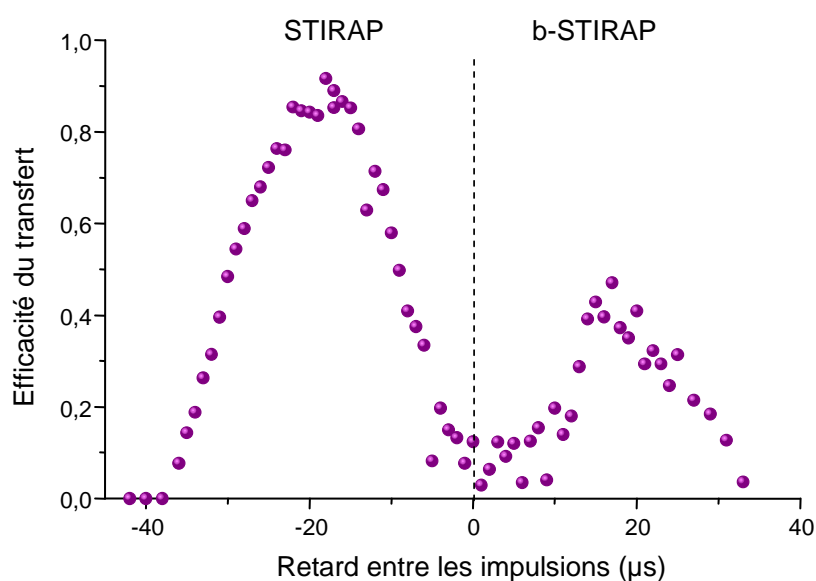


FIG. 5.12 – Signature du transfert de population par STIRAP. On mesure l'efficacité de transfert en fonction du retard τ_d . Les conditions expérimentales sont les mêmes que pour la figure 5.10.

Les impulsions Stokes et Pompe doivent être au moins partiellement superposées dans le temps pour qu'un transfert puisse avoir lieu. Lorsque τ_d est négatif, les impulsions sont appliquées dans un ordre dit "contre-intuitif", indispensable pour éviter de peupler l'état excité. Le transfert le plus efficace (90%) est obtenu lorsque $\tau_d \approx -17 \mu\text{s}$, c'est-à-dire lorsque les impulsions sont décalées d'un intervalle proche de leur durée τ . On observe un large plateau dans l'efficacité de transfert autour de $\tau_d \approx -17 \mu\text{s}$, qui montre bien le caractère robuste du transfert par STIRAP. Ceci avait déjà été remarqué dans les références [141, 142], et constitue la signature du transfert de population par STIRAP. Le fait que le transfert se produise en un temps si court par rapport à la durée d'un cycle de pompage optique (de l'ordre de 10 ms dans le Tm :YAG) garantit qu'il est parfaitement cohérent et que l'on manipule efficacement la cohérence Raman.

Lorsque τ_d est positif, c'est l'impulsion Pompe qui est appliquée en premier, avant l'impulsion Stokes. L'efficacité maximale du transfert est de seulement 45% pour $\tau_d \approx 18 \mu\text{s}$ dans la figure 5.12. En effet, lorsque $\tau_d > 0$, l'état initial du système ($|a\rangle$) ne coïncide pas avec l'état noir. Le transfert de population se produit de façon radicalement différente : l'impulsion Pompe et l'impulsion Stokes excitent les cohérences optiques le long des transitions du Λ et produisent des oscillations de Rabi entre les différents niveaux du Λ [150]. L'état final des atomes dépend à la fois du retard τ_d entre les impulsions et de la pulsation de Rabi (qui varie avec la position des atomes dans le faisceau exciteur). Ce type de transfert ne peut se produire que dans des systèmes où la durée de vie du ou des niveaux excités est plus longue que la durée de l'excitation. C'est pourquoi il a pu être observé par exemple dans le Pr :YSO [29], mais pas dans un gaz de néon métastable Ne^* [145]. Dans nos expériences, les oscillations de Rabi sont amorties à cause de la relaxation de la cohérence optique et effacées par moyenne radiale de la fréquence de Rabi sur le profil transverse des faisceaux optiques. C'est pourquoi elles se manifestent seulement par un transfert partiel inférieur à 50%.

Lorsque les impulsions sont parfaitement superposées ($\tau_d = 0$), l'état noir n'évolue pas pendant la durée de l'excitation. On n'observe qu'un faible transfert de population vers l'état $|c\rangle$, de l'ordre de 10%.

5.5 Conclusion

Nous avons présenté ici la première démonstration du passage adiabatique Raman stimulé dans un cristal de $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$. Nous avons atteint une efficacité de transfert de 90 %, lorsque les impulsions Stokes et Pompe sont appliquées dans l'ordre "contre-intuitif", c'est-à-dire que l'impulsion Stokes précède l'impulsion Pompe. L'exploration de différents retards entre les deux impulsions excitatrices nous a permis d'identifier la "signature" du STIRAP. Lorsque les impulsions Stokes et Pompe sont appliquées dans l'ordre intuitif, on observe aussi un transfert de population dont l'efficacité atteint 45 % malgré le peuplement du niveau excité. Ces résultats ont été publiés dans la référence [151].

La mise en œuvre du processus de STIRAP dans le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ nous a permis de montrer que nous sommes bien capables de contrôler optiquement la cohérence Raman. Cela valide notre étude du système en Λ dans le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$.

Conclusion générale

Au cours de cette thèse, nous avons cherché à contrôler optiquement le spin nucléaire de l'ion thulium inséré à l'état d'impureté dans une matrice de YAG. Cette étude se place dans la perspective d'y réaliser du stockage quantique.

Nous avons d'abord construit un système à trois niveaux en Λ dans le $\text{Tm}^3+:\text{YAG}$. Ce travail s'inscrit dans la continuité des travaux de thèse de Frédéric de Seze [93]. C'est lui qui a réalisé les premières mesures de spectroscopie de hole-burning du $\text{Tm}^3+:\text{YAG}$, permettant de prédire avec une précision satisfaisante les coefficients du tenseur gyromagnétique. Nous avons déduit de ces résultats l'orientation optimale du champ magnétique qui donne un système en Λ [89], et mesuré directement le rapport de branchement entre les deux transitions du Λ pour cette orientation optimale du champ magnétique [100]. Nous avons aussi utilisé la technique de spectroscopie de hole-burning pour mesurer la durée de vie des populations dans les sous-niveaux Zeeman, la sensibilité de l'écart énergétique par rapport au champ magnétique, et la largeur inhomogène des sous-niveaux Zeeman.

Une fois le système en Λ construit, nous avons cherché à mettre en œuvre des processus cohérents permettant de manipuler un état de superposition du spin nucléaire, comme par exemple les échos Raman ou le STIRAP [151]. Les échos Raman nous ont aussi permis de mesurer la durée de vie des cohérences Raman dans l'état fondamental sur un large domaine de champ magnétique [101]. Nous avons montré en particulier que cette durée de vie ne varie pas sur l'intervalle exploré.

C'est pour sa longueur d'onde, accessible aux lasers à semi-conducteurs, que l'on s'est initialement intéressé à l'ion thulium. Il présente en outre un splitting ajustable, ce qui représente un atout important dans la perspective de réaliser une mémoire quantique. En effet, comme les transitions optiques ne sont pas sélectives en polarisation, il est indispensable que le signal quantique à enregistrer présente une largeur spectrale inférieure à l'espacement entre les deux transitions du système en Λ , qui est un élément clé pour la plupart des protocoles de mémoire quantique. Or les sous-niveaux fondamentaux du système en Λ construit dans des cristaux dopés praséodyme ou europium sont espacés au maximum de 10 MHz (Pr) ou 50 MHz (Eu), tandis que le thulium présente un splitting

	Pr :YSO	Tm :YAG
Longueur d'onde	606 nm	793 nm
Largeur inhomogène optique	4,4 GHz	20 GHz
T_2 optique	111 μ s	105 μ s
T_1 optique	164 μ s	800 μ s
Splitting hyperfin du fondamental	10,2 MHz	41,3 MHz/T
Rapport de branchement du système en Λ	0,53 ou 0,40	0,13
Largeur inhomogène Raman (fondamental)	30 kHz	400 kHz/T
T_1 Raman (fondamental)	qq minutes	4,5 s
T_2 Raman (fondamental)	500 μ s	350 μs

TAB. 5.1 – Caractéristiques comparées du Pr :YSO et du Tm :YAG dopés à 0,1 % et refroidis entre 1,5 et 2 K. Les résultats obtenus expérimentalement au cours de cette thèse sont indiqués en gras. Ils ne sont valables que dans l'orientation du champ magnétique qui donne un système en Λ optimal. Les autres valeurs indiquées sont tirées des références [74, 84, 78, 37, 81].

proportionnel au champ magnétique appliqué (41,3 MHz/T dans le YAG, lorsque le champ magnétique est appliqué dans la direction optimisant le système en Λ). On pourra donc ajuster le champ magnétique afin d'adapter le matériau aux caractéristiques de la source quantique disponible, dans la limite de quelques teslas.

Parmi les différents cristaux dopés aux ions de terre rare actuellement étudiés pour la réalisation d'une mémoire quantique dans un système solide, c'est l'orthosilicate d'yttrium dopé praséodyme (Pr :YSO) qui suscite depuis quelques années le plus d'intérêt. Nous résumons dans le tableau 5.1 les différentes caractéristiques du Tm³⁺:YAG et du Pr³⁺:YSO. Celles-ci doivent être interprétées relativement aux protocoles envisagés pour la réalisation d'une mémoire quantique.

Pour mieux comprendre les atouts et les faiblesses du thulium dans la perspective du stockage quantique, nous allons examiner en détail l'un des protocoles envisagés, celui qui s'appuie sur le contrôle par effet Stark de l'élargissement inhomogène optique (CRIB) [12].

Ce protocole nécessite de sélectionner un groupe spectral d'atomes dans le profil d'absorption inhomogène. Pour cela, on creuse un trou dans le profil d'absorption en transférant les atomes dans un niveau auxiliaire. Un groupe spectralement étroit d'atomes placés dans ce niveau auxiliaire est alors ramené au centre de l'intervalle initialement vidé. Le groupe d'atomes ainsi sélectionné est semblable à un nuage d'atomes refroidis par laser car il présente un élargissement inhomogène qui peut atteindre la largeur homogène de la transition optique. Ce groupe spectralement étroit est ensuite élargi par effet Stark au

moyen d'un gradient de champ électrique, afin de couvrir la largeur spectrale du signal quantique à enregistrer. Ce signal incident excite les atomes, et donne naissance à des dipôles optiques. A condition que l'ensemble d'atomes élargi par effet Stark présente une opacité de l'ordre de 2 ou 3, on peut en principe restituer efficacement le signal quantique en inversant le signe du champ électrique appliqué. Contrairement aux échos de photons, où la remise en phase des cohérences est effectuée par une impulsion lumineuse, le CRIB permet de renverser la phase des cohérences optiques sans perturber les populations dans les niveaux atomiques. Cependant, la durée de vie de la mémoire est limitée par l'inverse de la largeur inhomogène du groupe d'atomes initialement sélectionné. De plus, le renversement des déphasages n'est possible qu'au détriment de l'opacité. En effet, l'élargissement du groupe d'atomes initialement sélectionné réduit l'opacité d'un facteur donné par le produit de la bande passante du signal à enregistrer par la durée de la mémoire.

Un protocole plus complet basé sur le CRIB a été proposé par Nilsson *et al.* [13] afin d'allonger le temps de stockage au-delà de cette limite. Il consiste à convertir les cohérences optiques créées par le signal incident en une cohérence Raman. Ceci est possible si la transition optique excitée par le signal à enregistrer fait partie d'un système en Λ . Cette conversion doit avoir lieu juste après l'enregistrement du signal incident dans les cohérences optiques, afin que celles-ci se déphasent le moins possible. Le signal est alors stocké dans les cohérences Raman des atomes sélectionnés. Le signal peut ensuite être restitué en reconvertissant les cohérences Raman en cohérences optiques. La remise en phase des cohérences optiques est alors effectuée en inversant le signe du champ électrique. La conversion des cohérences optiques en cohérences Raman, ou inversement, peut être réalisée à l'aide d'une impulsion π par exemple selon l'autre transition du Λ . L'enregistrement et la restitution du signal incident selon ce protocole sont schématisés dans la figure 5.13.

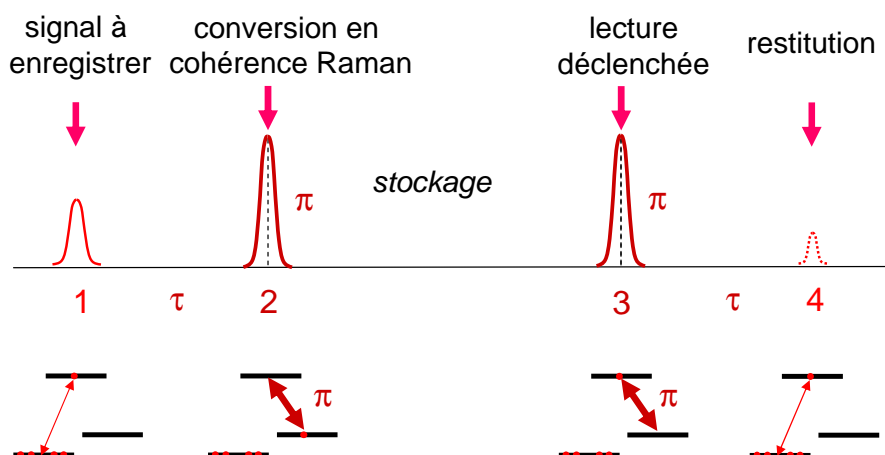


FIG. 5.13 – Schéma du protocole de CRIB tel qu'il a été proposé par Nilsson [13].

D'autres protocoles que le CRIB sont également envisagés pour réaliser une mémoire quantique dans un cristal dopé aux ions de terre rare : le protocole basé sur la lumière arrêtée, liée à la transparence induite électromagnétiquement (EIT) [20], et le protocole AFC, qui s'appuie sur la construction d'un peigne de fréquences atomique [18]. Plusieurs équipes de recherche travaillent actuellement à mettre en œuvre ces protocoles dans des cristaux dopés aux ions de terre rare. On peut citer entre autres les équipes de Thomas Halfmann (Allemagne), de Philippe Goldner et Olivier Guillot-Noël (France), de Matt Sellars (Australie), de Stefan Kröll (Suède), de Wolfgang Tittel (Canada) et de Nicolas Gisin (Suisse).

Comme le CRIB, les protocoles de mémoire quantique basés sur l'EIT ou l'AFC mettent en jeu l'enregistrement d'un signal optique sous forme d'un état de superposition entre deux sous-niveaux de spin, par l'intermédiaire d'un système à 3 niveaux en Λ . De plus, ces trois protocoles nécessitent de préparer un ou plusieurs groupes d'atomes dans le profil d'absorption inhomogène [152, 18]. Pour cela, un niveau auxiliaire est nécessaire. Un sous-niveau hyperfin de l'état fondamental extérieur au système en Λ ou un état électronique métastable peut jouer ce rôle de niveau auxiliaire, pourvu qu'il présente une longue durée de vie.

Les cristaux dopés aux ions praséodyme ou europium présentent une structure hyperfine composée de 3 sous-niveaux dans l'état électronique fondamental, et 3 dans l'état excité. Le système en Λ nécessaire à la réalisation des expériences d'EIT, d'AFC ou de CRIB est construit sur deux sous-niveaux de l'état fondamental, et un des sous-niveaux de l'état excité. La durée de vie des populations dans les sous-niveaux fondamentaux étant très longue (de l'ordre de la minute), on peut utiliser le troisième sous-niveau de l'état fondamental comme niveau auxiliaire, et envisager de réaliser une mémoire quantique basée sur l'un ou l'autre des protocoles mentionnés précédemment.

En revanche, les cristaux dopés avec des ions Tm^{3+} ne présentent pas de structure hyperfine en l'absence d'un champ magnétique. L'application d'un champ magnétique permet de révéler une structure à 4 niveaux, dont 2 dans l'état électronique fondamental, et 2 dans l'état excité. Une telle structure permet de réaliser soit des processus à seulement 3 niveaux en Λ , ne nécessitant pas de niveau auxiliaire de stockage, soit des processus à "2+1" niveaux, où deux niveaux sont reliés par une transition optique, et le troisième est utilisé comme niveau auxiliaire. On peut donc envisager de réaliser dans un cristal dopé aux ions thulium, soit le protocole de CRIB partiel, soit le protocole d'AFC partiel, qui s'appuient sur un système à "2+1" niveaux. L'opération qui consiste à ramener un groupe étroit d'atomes au centre de l'intervalle initialement vidé pourrait alors être réalisée par STIRAP, puisque le niveau auxiliaire présente une longue durée de vie des cohérences avec l'autre sous-niveau hyperfin du fondamental.

Dans ces deux protocoles, la durée de vie de la mémoire est limitée par l'inverse

de la largeur inhomogène du ou des groupes d'atomes initialement sélectionnés dans le profil d'absorption. En pratique, dans le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$, il est impossible de réaliser des expériences de CRIB. En effet, celles-ci reposent sur l'existence d'un effet Stark linéaire, pour que l'élargissement inhomogène puisse être contrôlé et inversé à l'aide d'un gradient de champ électrique. Il ne peut y avoir d'effet Stark linéaire dans le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$, à cause de la symétrie trop élevée des sites de l'yttrium. C'est pourquoi on doit se tourner vers des matrices dans lesquelles la symétrie des sites de substitution est suffisamment faible, comme par exemple le Y_2O_3 [153], ou le LiNbO_3 .

Notons qu'il existe un niveau supplémentaire métastable dans la structure du Tm^{3+} (3F_4 , de durée de vie 10 ms dans le YAG), qui peut être utilisé comme niveau auxiliaire extérieur au système en Λ (voir la figure 1.7). Les atomes peuvent être transférés vers ce niveau par pompage optique, voire par émission stimulée en utilisant une source laser à $1,46 \mu\text{m}$ [154]. Cela permettrait d'expérimenter les protocoles à "3+1" niveaux cités plus haut.

La principale difficulté à laquelle on sera confronté pour réaliser ces expériences est la faible densité optique du matériau, qui provient du fait que les transitions excitées sont quasiment interdites. En effet, quel que soit le protocole envisagé, pour que les propriétés quantiques d'un champ lumineux soient enregistrées dans un ensemble atomique, il est nécessaire que la lumière soit entièrement convertie en excitation atomique. Le milieu matériel doit donc être optiquement épais. Or, la densité optique de l'échantillon utilisé au cours de cette thèse est très faible, d'une part à cause du faible taux de dopage (0,1%), choisi pour éviter la décohérence par les interactions ions-ions, et d'autre part à cause de la multiplicité des sites cristallins. Afin d'augmenter l'épaisseur optique du matériau, on pourra utiliser des cristaux avec un taux de dopage plus important, jusqu'à 0,5 %. A cette concentration, les interactions ion-ion restent sans influence sur la durée de vie des cohérences. C'est dans ces conditions qu'ont été réalisées les expériences d'EIT dans le groupe de Shahriar et Hemmer [30, 32]. On pourra également utiliser un cristal plus épais dans la direction de propagation, ou un système de revêtement réfléchissant sur les faces du cristal permettant aux faisceaux de traverser plusieurs fois l'échantillon [155]. On pourra enfin se tourner vers des matrices cristallines dans lesquels l'ion thulium présente un force d'oscillateur plus élevée, comme par exemple le LiNbO_3 [156], ou un nombre de sites plus faibles, comme le Y_2O_3 [153].

CONCLUSION GÉNÉRALE

Bibliographie

- [1] L. Mandel and E. Wolf. *Optical Coherence and Quantum Optics*. Cambridge University Press, 1995.
- [2] I. I. Rabi, J. R. Zacharias, S. Millman, and P. Kusch. A new method of measuring nuclear magnetic moment. *Phys. Rev.*, 53(4) :318, 1938.
- [3] M. Mehring. *High resolution NMR spectroscopy in solids*. Springer-Verlag, 1976.
- [4] N. A. Kurnit, I. D. Abella, and S. R. Hartmann. Observation of a photon echo. *Phys. Rev. Lett.*, 13(19) :567, 1964.
- [5] S. L. McCall and E. L. Hahn. Self-induced transparency. *Phys. Rev.*, 183(2) :457, 1969.
- [6] R. H. Dicke. Coherence in spontaneous radiation processes. *Phys. Rev.*, 93(1) :99, 1954.
- [7] L. Allen and J. H. Eberly. *Optical Resonance and Two-Level Atoms*. Courier Dover Publications, 1987.
- [8] J. I. Cirac, P. Zoller, H. J. Kimble, and H. Mabuchi. Quantum state transfer and entanglement distribution among distant nodes in a quantum network. *Phys. Rev. Lett.*, 78 :3221, 1997.
- [9] X. Maître, E. Hagle, G. Nogues, C. Wunderlich, P. Goy, M. Brune, J.-M. Raimond, and S. Haroche. Quantum memory with a single photon in a cavity. *Phys. Rev. Lett.*, 79(4) :769, 1997.
- [10] D. L. Moehring, M. J. Madsen, B. B. Blinov, and C. Monroe. Experimental Bell inequality violation with an atom and a photon. *Phys. Rev. Lett.*, 93(9) :90410, 2004.
- [11] A. Kuhn, M. Hennrich, and G. Rempe. Deterministic single-photon source for distributed quantum networking. *Phys. Rev. Lett.*, 89(6) :67901, 2002.
- [12] S. A. Moiseev and S. Kröll. Complete reconstruction of the quantum state of a single-photon wave packet absorbed by a doppler-broadened transition. *Phys. Rev. Lett.*, 87(17) :173601, 2001.

BIBLIOGRAPHIE

- [13] M. Nilsson and S. Kröll. Solid state quantum memory using complete absorption and re-emission of photons by tailored and externally controlled inhomogeneous absorption profiles. *Opt. Commun.*, 247(4-6) :393, 2005.
- [14] B. Kraus, W. Tittel, N. Gisin, M. Nilsson, S. Kröll, and J. I. Cirac. Quantum memory for non-stationary light fields based on controlled reversible inhomogeneous broadening. *Phys. Rev. A*, 73 :020302, 2005.
- [15] N. Sangouard, C. Simon, M. Afzelius, and N. Gisin. Analysis of a quantum memory for photons based on controlled reversible inhomogeneous broadening. *Phys. Rev. A*, 75(3) :032327, 2007.
- [16] A. L. Alexander, J. J. Longdell, M. J. Sellars, and N. B. Manson. Photon Echoes Produced by Switching Electric Fields. *Phys. Rev. Lett.*, 96(4) :43602, 2006.
- [17] G. Hétet, J. J. Longdell, A. L. Alexander, P. K. Lam, and M. J. Sellars. Electro-optic quantum memory for light using two-level atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 100(2) :23601, 2008.
- [18] M. Afzelius, C. Simon, H. de Riedmatten, and N. Gisin. Multi-mode quantum memory based on atomic frequency combs. *Arxiv preprint arXiv :0805.4164v1*, 2008. arxiv.
- [19] D. F. Phillips, A. Fleischhauer, A. Mair, and R. L. Walsworth. Storage of light in atomic vapor. *Phys. Rev. Lett.*, 86 :783, 2001.
- [20] S. E. Harris. Electromagnetically induced transparency. *Phys. Today*, 50(7) :36, 1997.
- [21] M. D. Lukin. Trapping and manipulating photon states in atomic ensembles. *Rev. Mod. Phys.*, 75 :457, 2003.
- [22] D. N. Matsukevich and A. Kuzmich. Quantum state transfer between matter and light. *Science*, 306 :663, 2004.
- [23] T. Chanelière, D. N. Matsukevich, S. D. Jenkins, S. Y. Lan, T. A. B. Kennedy, and A. Kuzmich. Storage and retrieval of single photons transmitted between remote quantum memories. *Nature (London)*, 438 :833, 2005.
- [24] R. M. Macfarlane and R. M. Shelby. *Coherent transient and holeburning spectroscopy of rare earth ions in solids*, volume 21. North-Holland, 1987.
- [25] R. M. Shelby, A. C. Tropper, R. T. Harley, and R. M. Macfarlane. Measurement of the hyperfine structure of $\text{Pr}^{3+}:\text{YAG}$ by quantum-beat free-induction decay, hole burning, and optically detected nuclear quadrupole resonance. *Opt. Lett.*, 8 :304, 1983.
- [26] T. Blasberg and D. Suter. Excitation of coherent Raman beats in rare earth solids with a bichromatic laser field. *Opt. Commun.*, 109(1-2) :133, 1994.

- [27] B. S. Ham, M. S. Shahriar, M. K. Kim, and P. R. Hemmer. Frequency-selective time-domain optical data storage by electromagnetically induced transparency in a rare-earth-doped solid. *Opt. Lett.*, 22(24) :1849, 1997.
- [28] A. L. Alexander, J. J. Longdell, and M. J. Sellars. Measurement of the ground-state hyperfine coherence time of $^{151}\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$. *J. Opt. Soc. Am. B*, 24(9) :2479, 2007.
- [29] J. Klein, F. Beil, and T. Halfmann. Robust population transfer by Stimulated Raman Adiabatic Passage in a $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ crystal. *Phys. Rev. Lett.*, 99 :113003, 2007.
- [30] B. S. Ham, P. R. Hemmer, and M. S. Shahriar. Efficient electromagnetically induced transparency in a rare-earth doped crystal. *Opt. Commun.*, 144(4-6) :227, 1997.
- [31] F. Beil, J. Klein, G. Nikoghosyan, and T. Halfmann. EIT and retrieval of light pulses from a Λ - and V-scheme in $\text{Pr}:\text{YSO}$. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 41 :074001, 2008.
- [32] A. V. Turukhin, V. S. Sudarshanam, M. S. Shahriar, J. A. Musser, B. S. Ham, and P. R. Hemmer. Observation of ultraslow and stored light pulses in a solid. *Phys. Rev. Lett.*, 88 :023602, 2001.
- [33] J. J. Longdell, E. Fraval, M. J. Sellars, and 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.
- [34] M. J. Sellars, R. S. Meltzer, P. T. H. Fisk, and N. B. Manson. Time-resolved ultranarrow optical hole burning of a crystalline solid : $\text{Y}_2\text{O}_3:\text{Eu}^{3+}$. *J. Opt. Soc. Am. B*, 11 :1468, 1994.
- [35] R. Klieber, A. Michalowski, R. Neuhaus, and D. Suter. Nuclear quadrupole resonance of an electronically excited state from high-resolution hole-burning spectroscopy. *Phys. Rev. B*, 67 :184103, 2003.
- [36] L. Rippe, B. Julsgaard, A. Walther, and S. Kröll. Laser stabilization using spectral hole burning. *Arxiv preprint quant-ph/0611056*, 2006.
- [37] R. M. Macfarlane. Photon-echo measurements on the trivalent thulium ion. *Opt. Lett.*, 18(22) :1958, 1993.
- [38] J. H. Shapiro. Architectures for long-distance quantum teleportation. *New J. Phys.*, 4(1) :47, 2002.
- [39] F. König, E. J. Mason, F. N. C. Wong, and M. A. Albota. Efficient and spectrally bright source of polarization-entangled photons. *Phys. Rev. A*, 71(3) :33805, 2005.
- [40] J. J. Longdell. *Quantum information processing in rare-earth-ion doped insulators*. PhD thesis, Laser Physics Centre, Australian National University, 2003.

BIBLIOGRAPHIE

- [41] R. M. Macfarlane. High-resolution laser spectroscopy of rare-earth doped insulators : a personal perspective. *J. Lumin.*, 100 :1, 2002.
- [42] R. W. Equall, Y. Sun, R. L. Cone, and R. M. Macfarlane. Ultraslow optical dephasing in $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$. *Phys. Rev. Lett.*, 72(14) :2179, 1994.
- [43] T. W. Mossberg. Time-domain frequency-selective optical data storage. *Opt. Lett.*, 7(2) :77, 1982.
- [44] G. Castro, D. Haarer, R. M. MacFarlane, and H. P. Trommsdorff. Frequency selective optical data storage system, Jul 18 1978. US Patent 4, 101, 976.
- [45] M. Mitsunaga, R. Yano, and N. Uesugi. Time- and frequency-domain hybrid optical memory : 1.6-kbit data storage in $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$. *Opt. Lett.*, 16 :1890, 1991.
- [46] T. Wang, H. Lin, and T. W. Mossberg. Experimental demonstration of temporal-waveform-controlled spatial routing of optical beams by spatial-spectral filtering. *Opt. Lett.*, 20(24) :2541, 1995.
- [47] T. L. Harris, Y. Sun, R. L. Cone, R. M. Macfarlane, and R. W. Equall. Demonstration of real-time address header decoding for optical data routing at 1536nm. *Opt. Lett.*, 23(8) :636, 1998.
- [48] L. Ménager, I. Lorgeré, J.-L. Le Gouët, D. Dolfi, and J.-P. Huignard. Demonstration of a radio-frequency spectrum analyzer based on spectral hole burning. *Opt. Lett.*, 26(16) :1245, 2001.
- [49] G. Gorju, V. Crozatier, I. Lorgeré, J.-L. Le Gouët, and F. Bretenaker. 10-GHz bandwidth RF spectral analyzer with MHz resolution based on spectral hole burning in $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$. *IEEE Photon. Tech. Lett.*, 17 :2385, 2005.
- [50] P. B. Sellin, N. M. Strickland, T. Böttger, J. L. Carlsten, and R. L. Cone. Laser stabilization at 1536 nm using regenerative spectral hole burning. *Phys. Rev. B*, 63 :155111, 2001.
- [51] G. J. Pryde, T. Böttger, R. L. Cone, and R. C. C. Ward. Semiconductor lasers stabilized to spectral holes in rare earth crystals to a part in 10^{13} and their application to devices and spectroscopy. *J. Lumin.*, 98(1-4) :309, 2002.
- [52] K. Ichimura. A simple frequency-domain quantum computer with ions in a crystal coupled to a cavity mode. *Opt. Commun.*, 196(1-6) :119, 2001.
- [53] M. S. Shahriar, P. R. Hemmer, S. Lloyd, P. S. Bhatia, and A. E. Craig. Solid-state quantum computing using spectral holes. *Phys. Rev. A*, 66(3) :32301, 2002.
- [54] N. Ohlsson, R. Krishna Mohan, and S. Kröll. Quantum computer hardware based on rare-earth-ion-doped inorganic crystals. *Opt. Commun.*, 201 :71, 2002.

- [55] J. J. Longdell and M. J. Sellars. Experimental demonstration of quantum-state tomography and qubit-qubit interactions for rare-earth-metal-ion-based solid-state qubits. *Phys. Rev. A*, 69(3) :032307, 2004.
- [56] J. B. Gruber, M. E. Hills, R. M. Macfarlane, C. A. Morrison, G. A. Turner, G. J. Quarles, G. J. Kintz, and L. Esterowitz. Spectra and energy levels of $\text{Tm}^{3+}:\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$. *Phys. Rev. B*, 40(14) :9464, 1989.
- [57] A. Messiah. *Mécanique Quantique (Dunod, Paris, 1960)*.
- [58] A. Abragam and B. Bleaney. *Résonance paramagnétique électronique des ions de transition*. Institut national des sciences et techniques nucléaires ; Presses universitaires de France, 1971.
- [59] G. Grynberg, A. Aspect, and C. Fabre. *Introduction aux lasers et à l'optique quantique*. Ellipses, 1997.
- [60] R. Orbach. Spin-Lattice Relaxation in Rare-Earth Salts. *Proc. R. Soc. London Ser. A*, 264(1319) :458, 1961.
- [61] G. M. Wang, R. W. Equall, R. L. Cone, M. J. M. Leask, K. W. Godfrey, and F. R. Wondre. Optical dephasing mechanisms in $\text{Tm}^{3+}:\text{Y}_2\text{Si}_2\text{O}_7$. *Opt. Lett.*, 21 :818, 1996.
- [62] W. R. Babbitt, A. Lezama, and T. W. Mossberg. Optical dephasing, hyperfine structure, and hyperfine relaxation associated with the 580.8-nm ${}^7F_0-{}^5D_0$ transition of europium in $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{O}_3$. *Phys. Rev. B*, 39(4) :1987, 1989.
- [63] R. M. Macfarlane, C. S. Yannoni, and R. M. Shelby. Optical line narrowing by nuclear spin decoupling in $\text{Pr}^{3+}:\text{LaF}_3$. *Opt. Commun.*, 32(1) :101, 1980.
- [64] A. Z. Genack, R. M. Macfarlane, and R. G. Brewer. Optical free-induction decay in $\text{LaF}_3:\text{Pr}^{3+}$. *Phys. Rev. Lett.*, 37(16) :1078, 1976.
- [65] Y. Sun, C. W. Thiel, R. L. Cone, R. W. Equall, and R. L. Hutcheson. Recent progress in developing new rare earth materials for hole burning and coherent transient applications. *J. Lumin.*, 98(1-4) :281, 2002.
- [66] E. Fraval, M. J. Sellars, and J. J. Longdell. Method of extending hyperfine coherence times in $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$. *Phys. Rev. Lett.*, 92 :077601, 2004.
- [67] M. Mitsunaga, N. Uesugi, and K. Sugiyama. Kilohertz-resolution pump-probe spectroscopy in $\text{Pr}^{3+}:\text{YAlO}_3$. *Opt. Lett.*, 18(15) :1256, 1993.
- [68] E. Fraval, M. J. Sellars, and J. J. Longdell. Dynamic decoherence control of a solid-state nuclear-quadrupole qubit. *Phys. Rev. Lett.*, 95 :030506, 2005.
- [69] J.-M. Melkonian, T.-H. My, F. Bretenaker, and C. Drag. High spectral purity and tunable operation of a continuous singly resonant optical parametric oscillator emitting in the red. *Opt. Lett.*, 32 :518, 2007.

BIBLIOGRAPHIE

- [70] R. Moncorgé, M. Velazquez, Ph. Goldner, O. Guillot-Noël, H. L. Xu, M. Nilsson, S. Kröll, E. Cavalli, and M. Bettinelli. Linear and non-linear spectroscopy of Ho³⁺-doped YVO₄ and LuVO₄. *J. Phys. : Condens. Matter*, 17 :6751, 2005.
- [71] G. K. Liu and R. L. Cone. Laser-induced instantaneous spectral diffusion in Tb³⁺ compounds as observed in photon-echo experiments. *Phys. Rev. B*, 41(10) :6193, 1990.
- [72] L. Dobrzycki, E. Bulska, D. A. Pawlak, Z. Frukacz, and K. Wozniak. Structure of YAG crystals doped/substituted with erbium and ytterbium. *Inorg. Chem*, 43(24) :7656, 2004.
- [73] V. Crozatier, F. de Seze, L. Haals, F. Bretenaker, I. Lorgeré, and J.-L. Le Gouët. Laser diode stabilisation for coherent driving of rare-earth ions. *Opt. Commun.*, 241 :203, 2004.
- [74] G. Armagan, A. M. Buoncristiani, and B. Di Bartolo. Excited state dynamics of thulium ions in yttrium aluminum garnets. *Opt. Mat.*, 1 :11, 1992.
- [75] T. T. Basiev, Y. V. Orlovskii, K. K. Pukhov, V. B. Sigachev, M. E. Doroshenko, and I. N. Vorob'ev. Multiphonon relaxation rates measurements and theoretical calculations in the frame of non-linear and non-Coulomb model of a rare-earth ion-ligand interaction. *J. Lumin.*, 68(5) :241, 1996.
- [76] L. Ménager. *Traitement optique de signaux radio-fréquence par holographie spatio-temporelle*. PhD thesis, Université Paris XI, Laboratoire Aimé Cotton, 2000.
- [77] R. M. Shelby, R. M. Macfarlane, and R. L. Shoemaker. Two-pulse photon echo electron-nuclear double resonance of YAlO₃ :Pr³⁺. *Phys. Rev. B*, 25(11) :6578, 1982.
- [78] R. W. Equall, R. L. Cone, and R. M. Macfarlane. Homogeneous broadening and hyperfine structure of optical transitions in Pr³⁺ :Y₂SiO₅. *Phys. Rev. B*, 52(6) :3963, 1995.
- [79] R. M. Macfarlane and R. M. Shelby. Sub-kilohertz optical linewidths of the ⁷F₀-⁵D₀ transition in Y₂O₃ :Eu³⁺. *Opt. Commun.*, 39 :169, 1981.
- [80] O. Guillot-Noël, Ph. Goldner, Y. Le Du, P. Loiseau, B. Julsgaard, L. Rippe, and S. Kröll. Hyperfine structure, optical dephasing, and spectral-hole lifetime of single-crystalline Pr³⁺ : La₂ (WO₄)₃. *Phys. Rev. B*, 75(20) :205110, 2007.
- [81] M. Nilsson, L. Rippe, S. Kröll, R. Klieber, and D. Suter. Hole-burning techniques for isolation and study of individual hyperfine transitions in inhomogeneously broadened solids demonstrated in Pr³⁺ :Y₂SiO₅. *Phys. Rev. B*, 70 :214116, 2004.
- [82] B. S. Ham, M. S. Shahriar, M. K. Kim, and P. R. Hemmer. Spin coherence excitation and rephasing with optically shelved atoms. *Phys. Rev. B*, 58(18) :R11825, 1998.

- [83] H. Goto and K. Ichimura. Population transfer via stimulated Raman adiabatic passage in a solid. *Phys. Rev. A*, 74(5) :53410, 2006.
- [84] K. Holliday, M. Croci, E. Vauthey, and U.P. Wild. Spectral hole burning and holography in an $\text{Y}_2\text{SiO}_5 : \text{Pr}^{3+}$ crystal. *Phys. Rev. B*, 47(22) :14741, 1993.
- [85] D. Curie. *Champ cristallin et luminescence : applications de la théorie des groupes à la luminescence cristalline*. Gauthier-Villars, 1968.
- [86] J. F. Dillon and L. R. Walker. Ferrimagnetic resonance in rare-earth doped yttrium iron garnet. II. Terbium substitution. *Phys. Rev.*, 124 :1401, 1961.
- [87] Y. Sun, G. M. Wang, R. L. Cone, R. W. Equall, and M. J. M. Leask. Symmetry considerations regarding light propagation and light polarization for coherent interactions with ions in crystals. *Phys. Rev. B*, 62 :15443, Dec 2000.
- [88] O. Guillot-Noël, Ph. Goldner, E. Antic-Fidancev, and J.-L. Le Gouët. Analysis of magnetic interactions in rare-earth-doped crystals for quantum manipulation. *Phys. Rev. B*, 71 :174409, 2005.
- [89] F. de Seze, A. Louchet, V. Crozatier, I. Lorgeré, F. Bretenaker, J.-L. Le Gouët, O. Guillot-Noël, and Ph. Goldner. Experimental tailoring of a three-level Λ system in Tm :YAG. *Phys. Rev. B*, 73 :085112, 2006.
- [90] R. W. P. Drever, J. L. Hall, F. V. Kowalski, J. Hough, G. M. Ford, A. J. Munley, and H. Ward. Laser phase and frequency stabilization using an optical resonator. *Applied Physics B : Lasers and Optics*, 31(2) :97, 1983.
- [91] E. L. Hahn. Spin echoes. *Phys. Rev.*, 80(4) :580, 1950.
- [92] V. Crozatier, V. Lavielle, F. Bretenaker, J.-L. Le Gouët, and I. Lorgeré. High-resolution radio frequency spectral analysis with photon echo chirp transform in an Er :YSO crystal. *IEEE J. Quantum Electron.*, 10 :1450, 2004.
- [93] F. de Seze. *Vers l'enregistrement d'un signal quantique dans des ions de terre rare insérés en matrice cristalline*. PhD thesis, Université Paris XI, Laboratoire Aimé Cotton, 2005.
- [94] M. Tian. Private communication, Sept 2006.
- [95] B. R. Reddy and L. E. Erickson. Nuclear-quadrupole-resonance study of the ground state of praseodymium in lanthanum trifluoride. *Phys. Rev. B*, 27(9) :5217, May 1983.
- [96] N. Ohlsson, M. Nilsson, S. Kröll, and R. Krishna Mohan. Long-time storage mechanism for Tm :YAG in a magnetic field. *Opt. Lett.*, 28 :450, 2003.
- [97] N. Ohlsson, M. Nilsson, and S. Kröll. Experimental investigation of delayed self-interference for single photons. *Phys. Rev. A*, 68 :63812, 2003.

BIBLIOGRAPHIE

- [98] G. K. Liu, J. Huang, R. L. Cone, and B. Jacquier. Spectral hole burning, Zeeman effect, and hyperfine structure for $\text{Tb}^{3+}:\text{LiYF}_4$. *Phys. Rev. B*, 38(16) :11061, 1988.
- [99] F. Könz, Y. Sun, C. W. Thiel, R. L. Cone, R. W. Equall, R. L. Hutcheson, and R. M. Macfarlane. Temperature and concentration dependence of optical dephasing, spectral-hole lifetime, and anisotropic absorption in $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$. *Phys. Rev. B*, 68(8) :85109, 2003.
- [100] A. Louchet, J. S. Habib, V. Crozatier, I. Lorgeré, F. Goldfarb, F. Bretenaker, J.-L. Le Gouët, O. Guillot-Noël, and Ph. Goldner. Branching ratio measurement of a Λ system in $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ under a magnetic field. *Phys. Rev. B*, 75(3) :035131, 2007.
- [101] A. Louchet, Y. Le Du, F. Bretenaker, T. Chanelière, F. Goldfarb, I. Lorgeré, J.-L. Le Gouët, O. Guillot-Noël, and Ph. Goldner. Optical excitation of nuclear spin coherence in $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$. *Phys. Rev. B*, 77 :195110, 2008.
- [102] D. Suter. *The Physics of Laser-Atom Interactions*. Cambridge University Press, 1997.
- [103] L. E. Erickson. The nuclear quadrupole interaction in $\text{Pr}^{3+}:\text{LaF}_3$ - An optical-RF double resonance measurement of the ground electronic state. *Opt. Commun.*, 21(1) :147, 1977.
- [104] R. M. Shelby, C. S. Yannoni, and R. M. Macfarlane. Optically detected coherent transients in nuclear hyperfine levels. *Phys. Rev. Lett.*, 41(25) :1739, 1978.
- [105] K. K. Sharma and L. E. Erickson. NMR measurement of the hyperfine constant of an excited state of an impurity ion in a solid. *Phys. Rev. Lett.*, 45(4) :294, 1980.
- [106] W. G. Breiland, C. B. Harris, and A. Pines. Optically detected electron spin echoes and free precession in molecular excited states. *Phys. Rev. Lett.*, 30(5) :158, 1973.
- [107] K. K. Sharma and L. E. Erickson. Optically detected nuclear magnetic resonance of $\text{LiYF}_4:\text{Eu}^{3+}$ in the ground electronic state 7F_0 . *J. Phys. C : Solid State Phys.*, 18 :2935, 1985.
- [108] G. K. Liu, R. Cao, J. V. Beitz, and J. Huang. Analysis of angularly dependent ODNMR spectra of $^{151}\text{Eu}^{3+}$ in LaF_3 . *Phys. Rev. B*, 54(1) :483, 1996.
- [109] T. Blasberg and D. Suter. Nuclear spin relaxation of Pr^{3+} in YAlO_3 . A temperature-dependent optical-rf double-resonance study. *Chem. Phys. Lett.*, 215(6) :668, 1993.
- [110] J. J. Longdell, M. J. Sellars, and N. B. Manson. Hyperfine interaction in ground and excited states of praseodymium-doped yttrium orthosilicate. *Phys. Rev. B*, 66(3) :035101, 2002.
- [111] J. Mlynek, N. C. Wong, R. G. DeVoe, E. S. Kintzer, and R. G. Brewer. Raman heterodyne detection of nuclear magnetic resonance. *Phys. Rev. Lett.*, 50(13) :993, 1983.

- [112] N. C. Wong, E. S. Kintzer, J. Mlynek, R. G. DeVoe, and R. G. Brewer. Raman heterodyne detection of nuclear magnetic resonance. *Phys. Rev. B*, 28(9) :4993, 1983.
- [113] J. A. Giordmaine and W. Kaiser. Light scattering by coherently driven lattice vibrations. *Phys. Rev.*, 144(2) :676, 1966.
- [114] L. E. Erickson. A low-magnetic-field Raman heterodyne study of the Van Vleck paramagnet $\text{YAlO}_3:\text{Eu}^{3+}$. *J. Phys. C : Solid State Phys.*, 20 :291, 1987.
- [115] N. B. Manson and A. J. Silversmith. RF hole-burning within inhomogeneously broadened Raman heterodyne NMR signals. *J. Phys. C : Solid State Phys.*, 20 :1507, 1987.
- [116] T. Blasberg and D. Suter. Determination of oscillator strengths in $\text{Pr}^{3+}:\text{YAlO}_3$ by Raman heterodyne and hole burning spectroscopy. *J. Lumin.*, 65 :199, 1995.
- [117] M. Matsushita and T. Kato. Nuclear quadrupole resonance of ^{139}La around Pr^{3+} doped in LaF_3 . Raman heterodyne detection using optical transition of Pr^{3+} ions. *Chem. Phys. Lett.*, 273(3-4) :291, 1997.
- [118] L. E. Erickson. Optically detected multipulse nuclear-quadrupole-resonance studies of trivalent praseodymium in zero and weak static magnetic fields. *Phys. Rev. B*, 39(10) :6342, 1989.
- [119] L. E. Erickson. Two-pulse and stimulated nuclear-quadrupole-resonance echoes in $\text{YAlO}_3:\text{Pr}^{3+}$. *Phys. Rev. B*, 43(16) :12723, 1991.
- [120] E. Fraval, M. J. Sellars, A. Morrison, and A. Ferris. Pr–Y interaction in $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$. *J. Lumin.*, 107 :347, 2004.
- [121] A. L. Alexander. *Investigation of quantum information storage in rare earth doped materials*. PhD thesis, Laser Physics Centre, Australian National University, 2007.
- [122] T. Blasberg and D. Suter. Determination of relative oscillator strengths by coherent Raman beats. *Opt. Commun.*, 120 :55, 1995.
- [123] S. R. Hartmann. Photon, spin, and Raman echoes. *IEEE J. Quantum Electron.*, 4 :802, 1968.
- [124] T. W. Mossberg, R. Kachru, S. R. Hartmann, and A. M. Flusberg. Echoes in gaseous media : A generalized theory of rephasing phenomena. *Phys. Rev. A*, 20(5) :1976, 1979.
- [125] Y. Fukuda, K. Yamada, and T. Hashi. Sublevel echoes induced by resonant light pulses : Quantum beat echoes. *Opt. Commun.*, 44(4) :297, 1983.
- [126] R. L. Shoemaker and R. G. Brewer. Two-photon superradiance. *Phys. Rev. Lett.*, 28(22) :1430, 1972.

BIBLIOGRAPHIE

- [127] R. M. Shelby and R. M. Macfarlane. Hyperfine spectroscopy and spin dynamics by optical and sublevel coherence. *J. Lumin.*, 31(32) :839, 1984.
- [128] R. G. Brewer and E. L. Hahn. Coherent Raman beats. *Phys. Rev. A*, 8 :464, 1973.
- [129] B. S. Ham, M. S. Shahriar, and P. R. Hemmer. Enhanced nondegenerate four-wave mixing owing to electromagnetically induced transparency in a spectral hole-burning crystal. *Opt. Lett.*, 22(15) :1138, 1997.
- [130] P. Hu, S. Geschwind, and T. M. Jedju. Spin-flip Raman echo in *n*-type CdS. *Phys. Rev. Lett.*, 37(20) :1357, 1976.
- [131] A. Louchet, Y. Le Du, T. Brouri, F. Bretenaker, T. Chanelière, F. Goldfarb, I. Lorgeré, and J.-L. Le Gouët. Optical investigation of nuclear spin coherence in Tm :YAG. *Solid State Sci.*, in press, doi :10.1016/j.solidstatesciences.2007.12.029, 2008.
- [132] T. Böttger, C. W. Thiel, Y. Sun, and R. L. Cone. Optical decoherence and spectral diffusion at 1.5 μm in $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ versus magnetic field, temperature, and Er^{3+} concentration. *Phys. Rev. B*, 73(7) :75101, 2006.
- [133] P. Hu and S. R. Hartmann. Theory of spectral diffusion decay using an uncorrelated-sudden-jump model. *Phys. Rev. B*, 9(1) :1, 1974.
- [134] E. Fraval. *Minimising the Decoherence of Rare Earth Ion Solid State Spin Qubits*. PhD thesis, Laser Physics Centre, Australian National University, 2005.
- [135] L. L. Wald, E.L. Hahn, and M. Lukac. Fluorine spin frozen core in $\text{Pr}^{3+}:\text{LaF}_3$ observed by cross-relaxation. *J. Opt. Soc. Am. B*, 9(5) :789, 1992.
- [136] S. C. Rand, A. Wokaun, R. G. DeVoe, and R. G. Brewer. Magic-angle line narrowing in optical spectroscopy. *Phys. Rev. Lett.*, 43(25) :1868, 1979.
- [137] N. V. Vitanov, T. Halfmann, B. W. Shore, and K. Bergmann. Laser-induced population transfer by adiabatic passage techniques. *Annu. Rev. Phys. Chem.*, 52 :763, 2001.
- [138] C. E. Hamilton, J. L. Kinsey, and R. W. Field. Stimulated emission pumping : New methods in spectroscopy and molecular dynamics. *Annu. Rev. Phys. Chem.*, 37(1) :493, 1986.
- [139] J. Oreg, F. T. Hioe, and J. H. Eberly. Adiabatic following in multilevel systems. *Phys. Rev. A*, 29(2) :690, 1984.
- [140] J. R. Kuklinski, U. Gaubatz, F. T. Hioe, and K. Bergmann. Adiabatic population transfer in a three-level system driven by delayed laser pulses. *Phys. Rev. A*, 40 :6741, 1989.

- [141] U. Gaubatz, P. Rudecki, S. Schieman, and K. Bergmann. Population transfer between molecular vibrational levels by stimulated Raman scattering with partially overlapping laser fields. A new concept and experimental results. *J. Chem. Phys.*, 92 :5363, 1990.
- [142] K. Bergmann, H. Theuer, and B. W. Shore. Coherent population transfer among quantum states of atoms and molecules. *Rev. Mod. Phys.*, 70(3) :1003, 1998.
- [143] M. P. Fewell, B. W. Shore, and K. Bergmann. Coherent population transfer among three states : Full algebraic solutions and the relevance of non adiabatic processes to transfer by delayed pulses. *Aust. J. Phys.*, 50(2) :281, 1997.
- [144] J. Martin, B. W. Shore, and K. Bergmann. Coherent population transfer in multilevel systems with magnetic sublevels. II. Algebraic analysis. *Phys. Rev. A*, 52(1) :583, 1995.
- [145] H. G. Rubahn, E. Konz, S. Schieman, and K. Bergmann. Alignment of electronic angular momentum by stimulated raman scattering with delayed pulses. *Z. Phys. D*, 22(1) :401, 1991.
- [146] S. Schieman, A. Kuhn, S. Steuerwald, and K. Bergmann. Efficient coherent population transfer in NO molecules using pulsed lasers. *Phys. Rev. Lett.*, 71(22) :3637, 1993.
- [147] A. Kuhn, S. Steuerwald, and K. Bergmann. Coherent population transfer in NO with pulsed lasers : the consequences of hyperfine structure, doppler broadening and electromagnetically induced absorption. *Eur. Phys. J. D*, 1(1) :57, 1998.
- [148] T. Halfmann and K. Bergmann. Coherent population transfer and dark resonances in SO₂. *J. Chem. Phys.*, 104(18) :7068, 1996.
- [149] W. Süptitz, B. C. Duncan, and P. L. Gould. Efficient 5D excitation of trapped Rb atoms using pulses of diode-laser light in the counterintuitive order. *J. Opt. Soc. Am. B*, 14(5) :1001, 1997.
- [150] N. V. Vitanov and S. Stenholm. Analytic properties and effective two-level problems in stimulated Raman adiabatic passage. *Phys. Rev. A*, 55(1) :648, Jan 1997.
- [151] A. L. Alexander, R. Lauro, A. Louchet, T. Chanelière, and J.-L. Le Gouët. Stimulated Raman adiabatic passage in Tm³⁺ :YAG. *Phys. Rev. B*, 78 :144407, 2008.
- [152] E. Kuznetsova, O. Kocharovskaya, P. Hemmer, and M.O. Scully. Atomic interference phenomena in solids with a long-lived spin coherence. *Phys. Rev. A*, 66 :63802, 2002.
- [153] T. Chanelière, J. Ruggiero, J.-L. Le Gouët, W. Tittel, J.-H. Mun, A. Jouini, A. Yoshikawa, G. Boulon, Y. Le Du, Ph. Goldner, F. Beaudoux, J. Vincent, E. Antic-Fidancev, and O. Guillot-Noël. Tm³⁺ :Y₂O₃ investigated for a quantum light storage application. *Phys. Rev. B*, 77(24) :245127, 2008.

BIBLIOGRAPHIE

- [154] G. Gorju, A. Louchet, D. Paboeuf, F. Bretenaker, F. Goldfarb, T. Chanelière, I. Lorange, J.-L. Le Gouët, O. Guillot-Noël, and Ph. Goldner. Stimulated optical pumping in a Tm^{3+} :YAG crystal. *J. Phys. : Condens. Matter*, 19(386226) :386226, 2007.
- [155] A. Amari and S. Kröll. Private communication. 2008.
- [156] R. Krishna Mohan, T. Chang, M. Tian, S. Bekker, A. Olson, C. Ostrander, A. Khal-laayoun, C. Dollinger, W. R. Babbitt, Z. Cole, R. R. Reibel, Y. Merkel, K. D. and-Sun, R. Cone, F. Schlottau, and K. H. Wagner. Ultra-wideband spectral analysis using S2 technology. *J. Lumin.*, 127(1) :116, 2007.