



HAL
open science

Ralentir le déphasage des états de superposition atomiques dans un cristal de Tm^{3+} : YAG

Robert-Christopher Tongning

► **To cite this version:**

Robert-Christopher Tongning. Ralentir le déphasage des états de superposition atomiques dans un cristal de Tm^{3+} : YAG. Autre [cond-mat.other]. Université Paris Sud - Paris XI, 2014. Français. NNT : 2014PA112035 . tel-01011160

HAL Id: tel-01011160

<https://theses.hal.science/tel-01011160>

Submitted on 23 Jun 2014

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.



Comprendre le monde,
construire l'avenir®



UNIVERSITÉ PARIS-SUD
ÉCOLE DOCTORALE ONDES ET MATIÈRE

THÈSE

présentée pour obtenir le grade de

DOCTEUR EN SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ PARIS-SUD

spécialité PHYSIQUE

par

ROBERT-CHRISTOPHER TONGNING

**Ralentir le déphasage des états de
superposition atomiques dans un cristal de
 $Tm^{3+}:YAG$**

Soutenue le 03 mars 2014 devant la commission d'examen composée de :

Président du Jury	Julien LAURAT	Professeur (LKB - Univ. Pierre et Marie Curie)
Rapporteur	Hervé VÉZIN	Directeur de recherches (LASIR - Univ. Lille 1)
Rapporteur	Stéphane GUÉRIN	Professeur (ICB - Univ. de Bourgogne)
Examineur	Fabrice BERT	Professeur (LPS - Univ. Paris Sud)
Directeur de thèse	Jean-Louis LE GOUËT	Directeur de recherches (LAC - Univ. Paris Sud)
Invitée	Maria Florencia PASCUAL-WINTER	Chargée de recherches (LFO - CAB Argentine)

Laboratoire Aimé Cotton - Campus scientifique d'Orsay

*A mon Père et à ma Mère,
A mes deux Sœurs et à mon Frère.*

Remerciements

Plus que des remerciements, je tiens surtout ici à mettre en avant les nombreuses personnes avec qui j'ai interagi tout au long de ces trois longues et riches années de doctorat, et qui ont contribué, même modestement à la réussite de ma thèse.

Mes premières pensées sont tout d'abord pour l'Équipe, et en particulier pour Maria Florencia Pascual-Winter. Arrivée en même temps que moi dans l'Équipe en tant que post-doct, elle a eu un rôle majeur sur le développement de nos recherches, tant sur un plan expérimental que sur un plan plus théorique. C'est ensemble que nous avons eu tous nos résultats, et je tiens à te remercier pour cela. Par ailleurs, ta rigueur, ta franchise, mais aussi ton sens de l'humour (peut-être typiquement argentin) sont quelques unes des tes nombreuses qualités humaines que j'ai appréciées et que j'apprécie toujours.

Jean-Louis Le Gouët a aussi grandement contribué à la réussite de ce doctorat (comme tout bon directeur de thèse qui se respecte!). Toujours soucieux de ces chers étudiants (toujours un poil plus protecteur avec la gente féminine, mais bon, je ne peux pas lui en vouloir!), il m'a fait confiance avec Thierry Chanelière pour mener à bien ce projet de thèse. Toujours enthousiaste dès qu'on lui apportait des données fraîches, il était par ailleurs souvent prompt à raconter des anecdotes forts intéressantes (mais quelques rares fois un peu, juste un peu, difficile à assimiler pendant la digestion post cesfo!). Je lui souhaite une dynamique retraite.

Continuons avec les deux autres permanents de l'Équipe. Le beau gosse, grand, sportif (un peu moins maintenant!) : j'ai nommé Thierry Chanelière, qui a été aussi mon encadrant de stage de Master 2. Très compétent, c'est aussi un ingénieux bricoleur de solution dans l'âme. Toujours présent pour améliorer la stabilité du laser, ou confectionner un petit circuit électronique! Puis c'est un gastronome de la quantité (comme moi), surtout lors des séminaires, sauf que lui est rapide pour tout faire disparaître!

Quant à Anne Louchet-Chauvet, je l'ai tellement embêtée avec mes questions sur son propre manuscrit de thèse qu'elle est partie à trois reprises en congé maternité! J'ai beaucoup apprécié ta disponibilité et les discussions de tout ordre que nous avons eues.

Les thésards de l'Équipe forment une entité particulière, la *fine équipe*! Je tiens ici à saluer les anciens membres que j'ai connus : Jérôme Ruggiero l'homme tranquille, j'espère que tu vas continuer à t'épanouir en Belgique. Romain Lauro l'homme réservé, mon prédécesseur, je n'ai pas arrêté cette fichu lumière, mais je sais comment faire pour qu'elle le reste. J'espère que tu auras rapidement ton permis! Vianney Damon l'homme bon-vivant, amateur de danses sensuelles, mais aussi libre-penseur sur l'état critique de nos sociétés d'aujourd'hui. Bon courage pour ton action sociale à Toulon. Matthieu Bonarota l'homme discret, aux compétences scientifiques remarquables trop dissimulées, sous-évaluées. Amateur de pizzas et de FIFA (je ne citerai pas un certain jeu pour ton bien...), on s'est malgré tout « bien fendu la gueule » (permettez-moi l'expression!) pendant plus de deux ans. Bonne continuation pour ton poste

dans l'Éducation Nationale, relève un peu le niveau de la nouvelle génération d'étudiants!

Passons maintenant à ceux qui me suivent : ceux-là même que j'ai inspirés par mon aura, ma prestance, mon charisme, etc. et qui me sont donc fortement redevables :). Héloïse Linget, la femme fatale! Je sais que tu vas grinchouiller, mais bon... Intelligente, exigeante avec elle-même, très impliquée dans tout ce qu'elle entreprend, que ce soit pour la manip, la rédaction d'articles, le cadeau du thésard fraîchement Docteur, ou encore la gestion du « goûter », on s'est, je trouve, magnifiquement bien entendu et enrichi mutuellement. Courage dans ces derniers mois de rédaction, on y arrive toujours! L'après-thèse se déroulera bien, ne doute pas pour cela.

Julian Dajczgewand, que dire de notre *guapo* Argentin? Amusant, rénovateur de la langue française, dragueur professionnel :), mais avant tout une personne humble, lucide, sur qui on peut compter, toujours prêt à te prêter main forte. Un véritable ami. Sois persévérant et combatif pour la suite de ta thèse.

Je veux également rendre hommage à Gautier Lagarde pour son esprit à la fois calme et déjanté, qui a effectué un stage de L3 avec nous, et au monsieur Nicolas Maring, un chic type! J'espère bientôt te rendre visite à Barcelone. Une pensée également aux chercheurs Sergey Moiseev et Randy Babbit, pour leurs conseils pertinents. Idem pour notre Australienne Rose Ahlefeldt, post-doc en poste actuellement, qui va beaucoup apporter pour la compréhension de nos systèmes physiques. Tu progresses vite dans l'apprentissage de la langue française, c'est une très bonne chose!

Pendant une thèse, on est amené à interagir avec de nombreuses personnes qui ont un lien plus ou moins direct (parfois pas du tout!) avec les recherches que l'on mène. J'ai une vive pensée en particulier pour différents services techniques du laboratoire.

Tout d'abord Sylvie Poumaley, la compatriote! (pas tout à fait mais bon, c'est quasi pareil!). Sa bonne humeur et sa simplicité font un bien fou au laboratoire. Le service électronique, avec Alain Jucha, Jean-Paul Cromières, et les trois mousquetaires amateurs de blagues en tout genre, à savoir Arnaud Recher, Ellie Golan et Joseph Maltese (qui remplace merveilleusement bien notre bon Haniffe Mouhamad parti s'exiler à Paris XIII!). Merci pour votre aide concernant le bruit parasite des câbles, ou encore les circuits électroniques. Le bureau d'études, avec Pascal Pariset et Bruno Vivian, toujours de bonne humeur, eux aussi toujours prêts à faire preuve d'humour. La « méca », avec Daniel Civiale, Henri Pezard, Lionel Marriaux et Guillaume Dolgotworoff, ces quatre footballeurs professionnels, qui vous usinent des pièces rapidement avec une précision magnifique... et qui se faisaient entre eux des barbecues, sans m'inviter!!! Le service administratif, avec Amanda Trepagny, Josiane Felgines, Sandra Nalepa et Magali Tutou. Ce sympathique quatuor de femmes au caractère bien trempé fait un travail efficace insuffisamment reconnu, le tout dans une ambiance quelque peu délicate... Le service informatique, avec Michèle Hoffman et Jérôme Bernier le Magnifique! (et une pensée pour Floréal Prats). La bibliothécaire Danielle Chaslard, aussi réservée qu'adorable. Courage aussi pour survivre dans... ton univers impitoyable tin...tin, tin..tin..tin.tin Daaallaaasss... Le service infrastructure, avec Hervé Michel l'homme à tout réparer, désormais seul (abandonné par son compère Alain!). Enfin notre magasinier Didier Bouly. Une personne très sympathique, toujours prête à rendre service. Puisse-tu te remettre progressivement de tes pépins qui te sont arrivés. Et puis Charly Guitton, qui a ponctuellement assuré ce poste de magasinier. Courage et persévérance pour la suite.

Je veux saluer également les autres thésards du laboratoire. Tout d'abord ceux avec qui j'ai partagé mon bureau, à savoir Thomas Lauprêtre (toujours disponible pour une discussion

physique, et bon joueur de basket!), Yoann Bruneau (on était souvent les derniers à partir du laboratoire avec Azer!), Rhida Horchani (le bulldozer au basket), Tarek Labidi (fait tout le temps des calculs!), et Ricardo Faoro (peace-cool).

Puis ceux du groupe de midi, avec l'expert en Aïkido Guillaume Mondet, le rôleur tranquille Mickaël Vandevraye, le bon niçois Demis Borsalino toujours posé, et Citlali Cabrera toujours souriante!

Et puis d'autres, comme Isam Manai, Azer Trimèche, Jesus Zegano, Mélanie Pedrazzani, Guyve Khalili, Xu Gang, David Rio, ou encore Aurore Masson. Une pensée pour ceux qui ont terminé avant moi, comme Oussama Mhibik, Anne Cournol, Vincent Carrat ou encore Paul Huillery. Je m'excuse par avance pour tout ceux que je ne cite pas explicitement, mais je ne vous oublie pas pour autant!

Je remercie chaleureusement Jesus Perez-Rios, à l'époque post-doc, et Xu Gang actuellement en thèse, pour toutes ces parties de basket du jeudi soir. J'espère que tout se passe bien pour vous deux.

Je salue l'ensemble des chercheurs et post-docs du laboratoire. Une mention spéciale pour certaines personnes : Nadia Bouloufa une personne authentique, sincère et toujours prête à aider. Daniel Comparat l'exemple-type du chercheur toujours débordé en train de courir partout! Merci pour avoir participer au basket du jeudi soir. L'incontournable Hans Lignier, vif et percutant, toujours en train de raconter quelque chose (sûrement son côté italien!). Medhi Hamamda, le fou! Déjanté, quelqu'un de direct et sincère, sérieux dans son boulot et toujours enclin lancer une vanne! Maurice Raoult, disponible lui aussi pour répondre à toute question. Nouari Kebaili, que j'ai eu comme enseignant en Master 1. Ce polyglotte a toujours le mot ou la phrase pour faire rire. Le trio de choc Pierre Billaud, Chloé Geller et Gaylord Tallec, qui sait magistralement concilier travail de qualité et détente! Cyril Drag, l'homme qui cherche en marchant dans les couloirs, regard songeur vers le bas, doigts sur le menton! Que ta fille continue à exceller à l'école et en natation! Enfin Christopher Blondel, merci pour m'avoir fait découvrir la voile avec le challenge nautique du CNRS!

Je remercie les membres du jury pour avoir pris le temps de lire avec attention mon manuscrit de thèse, ainsi que d'avoir écouté avec intérêt ma soutenance. Une mention spéciale pour Julien Laurat. Il m'a fait connaître le monde des mémoires quantiques dès la licence 3 lors d'un stage, et a toujours su m'apporter les bons conseils tout au long de mon parcours.

Je tiens à remercier tous mes amis présents lors de ma soutenance et/ou qui m'ont soutenu pendant ces trois années de thèse. Entre autre, je pense fortement à ceux du Yi Quan, ceux des Arts Déco, ceux de ma promo de Master 2, Romain Drouilly, Adeline Bourrel, Yacine Darmoul, Roman Schmeissner, Pu Jian, Silvia Cuenca, Sandrine Guigue . . .

Enfin, il reste la famille (et amis de la famille). Toujours présente, elle est pourtant celle que j'ai délaissée pour me consacrer à mes recherches. J'espère vous avoir apporté de la fierté avec l'accomplissement de ce Doctorat.

Table des matières

Remerciements	5
Introduction générale	13
1 L'ion Thulium en matrice cristalline YAG	15
1.1 Cristal YAG et symétrie locale des sites	15
1.2 Caractéristiques des ions de terres rares	16
1.2.1 Structure électronique	16
1.2.2 Symétrie par renversement du temps	16
1.3 Les niveaux d'énergie de l'ion thulium en matrice YAG	18
1.3.1 Ion libre, champ cristallin et niveau Stark	18
1.3.2 Champ magnétique externe et niveaux Zeeman	19
1.4 Structure en Λ dans $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$	22
1.4.1 Orientation des dipôles électriques	23
1.4.2 Effet Zeeman nucléaire exacerbé et système en Λ	25
1.4.3 Cas d'un champ additionnel orthogonal au champ statique	29
1.4.4 Dépendance angulaire du splitting et du terme de couplage	30
1.4.5 Rapport de branchement	30
1.4.6 Transitions optique et de spin du système en Λ	33
1.5 Conclusion	33
2 Remise en phase des cohérences de spin nucléaire	35
2.1 Différentes approches de la description de l'ion Tm^{3+}	35
2.1.1 L'ion Tm^{3+} isolé	36
2.1.2 L'ion Tm^{3+} couplé à un environnement	37
2.1.3 L'ensemble d'ions Tm^{3+}	38
2.1.4 Objectifs	39
2.2 Résonance magnétique nucléaire du noyau de Tm^{3+} dans le YAG	42
2.3 Echo de spins	43
2.4 Les passages adiabatiques rapides	46
2.4.1 Action d'un passage adiabatique sur le vecteur de Bloch	46
2.4.2 Rephasage des spins par double passage adiabatique	53
2.4.3 Interprétation géométrique de la séquence par double passage adiabatique	54
2.5 Détection de l'écho de spin	56
2.5.1 Exploiter le faisceau optique	56

2.5.2	Différentes configurations des ions Tm^{3+} actifs	56
2.5.3	Création d'une cohérence de spin	57
2.5.4	Demi-passage adiabatique retour	59
2.5.5	Conservation de la phase globale de l'aimantation transversale	61
2.6	Conclusion	61
3	Résultats expérimentaux sur le rephasage des spins nucléaires	63
3.1	Dispositif expérimental	63
3.2	Excitation radio-fréquence	67
3.2.1	La bobine	67
3.2.2	Principes du circuit résonnant avec adaptation d'impédance	69
3.2.3	Réalisation pratique : insertion d'une ligne de transmission dans le circuit résonnant	71
3.3	Excitation optique et résonance magnétique	78
3.3.1	Transitions optiques sous champ magnétique	78
3.3.2	Creusement de trou spectral	81
3.3.3	Oscillations de Rabi radio-fréquence	83
3.3.4	Passages et demi-passages adiabatiques	85
3.4	Rephasage des spins nucléaires par double passage adiabatique	90
3.4.1	Reconstruction de l'aimantation initiale	91
3.5	Relaxation de l'aimantation	97
3.5.1	Mesure du temps de relaxation de l'aimantation transversale	97
3.5.2	Phénomène de blocage de spin par transfert adiabatique dans le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$	98
3.6	Conclusion	101
4	Extension de la durée de vie de l'aimantation transversale	103
4.1	Relaxation de l'aimantation transversale	103
4.1.1	Décohérence et déphasage	103
4.1.2	L'ion Tm^{3+} et son environnement dans l'approche semi-classique	105
4.1.3	Écho de Hahn avec double passage adiabatique	106
4.1.4	Répétition de la séquence d'écho : découplage dynamique	107
4.2	Tentative de découplage dynamique à l'aide des passages adiabatiques	108
4.3	Minimisation de l'élargissement inhomogène dans le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$	109
4.3.1	Variation de Δ_g en fonction du champ statique \mathbf{B}_s	111
4.3.2	Premiers résultats	114
4.4	Impulsions π et séquence de Carr-Purcell-Meiboom-Gill	117
4.4.1	Modèle de relaxation	118
4.4.2	Expériences préliminaires de séquences CPMG	118
4.4.3	Extension de la durée de vie de l'aimantation transversale	120
4.5	Analyse	121
4.5.1	Pertinence du modèle de relaxation	121
4.5.2	Nature de la relaxation dans $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$	122
4.6	conclusion	123

5	Étude des cohérences optiques dans le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$	125
5.1	Déplacement Zeeman quadratique et ZEFOZ optique	126
5.1.1	Expression du splitting optique avec prise en compte du déplacement Zeeman quadratique	126
5.1.2	Calcul des points ZEFOZ	128
5.2	Démonstration expérimentale du ZEFOZ optique	129
5.2.1	ZEFOZ optique partiel pour les sites 3, 4, 5 et 6	133
5.3	Extension du temps de vie des cohérences optiques	134
5.3.1	Résultats expérimentaux	134
5.3.2	Analyse	137
	Conclusion	139
	Première annexe	141
	Seconde annexe	143

Introduction générale

Une mémoire consiste en un dispositif matériel capable d'enregistrer, de conserver et de restituer des données. On utilise les différentes valeurs prises par une grandeur physique de la matière (intensité d'une couleur, longueur d'un trait, énergie emmagasinée dans un condensateur, etc.) pour coder une donnée. Dans le cadre de la théorie de l'information, l'unité de base permettant de quantifier le nombre de donnée est le bit. L'interrupteur électrique, ou encore la diode en sont des exemples concrets de systèmes physiques classiques. Dans le cadre de l'information quantique, l'élément de base est le qubit, système quantique à deux niveaux. Le nombre infini de superpositions d'états réalisables permet une grande richesse de codage de l'information. On peut distinguer deux types de qubits. Les premiers sont immatériels, et sont généralement construits avec des photons. Ils jouent le rôle de vecteur de l'information, et on parle parfois de *qubit volants*. Les seconds sont matériels, portés par la matière : atomes, ions, molécules. Ils sont plus facilement localisables et se prêtent mieux à la construction d'une mémoire. Plus encore, les qubits peuvent être corrélés entre eux de manière non-classique : c'est ce que l'on nomme *intrication quantique*. Fragile, c'est bien souvent cette notion qui se cache derrière l'expression générique information quantique, et qu'on cherche à créer et préserver.

Une étape cruciale dans la manipulation de l'information quantique est celle du stockage. Se pose tout d'abord le choix du système matériel qui recevra l'information. Différents critères seront examinés, comme la durée pendant laquelle seront sauvegardées les propriétés quantiques enregistrées, mais aussi la capacité du système matériel à ne pas les modifier pendant la durée du stockage. Cette étape fait intervenir *a priori* des qubits de nature différente (qubits immatériels et matériels), ce qui pose ainsi la question du transfert des propriétés quantiques des photons vers le système : la qualité de l'interaction entre la lumière et la matière sera également un facteur clé. A travers ces propos, on peut remarquer le lien intime entre le support matériel (système) mémorisant les données et la manière de les encoder (protocole).

Lors du stockage, l'interaction entre la lumière et la matière met cette dernière dans une superposition d'état, entre un niveau fondamental et un niveau excité optique généralement. La première idée qui vient à l'esprit est donc d'utiliser les cohérences des transitions optiques, comme c'est le cas par exemple dans les protocoles de stockage basés sur les échos de photons [1]. Le principal inconvénient vient de l'émission spontanée qui dégrade de manière significative la fidélité de la mémoire et qui limite le rapport signal à bruit au mieux à 1 [2]. L'alternative consiste alors à exploiter les cohérences entre niveaux hyperfins, en général plus robustes. Cette méthode met souvent en jeu une structure en lambda Λ des niveaux d'énergie du système, deux niveaux hyperfins étant couplés optiquement à un troisième niveau. Deux voies sont alors possibles : enregistrer le signal dans une cohérence optique qui sera ensuite convertie en cohérence de transition hyperfine, ou bien réaliser un transfert direct vers la cohérence de transition hyperfine. C'est le choix du système physique qui déterminera la méthode à mettre

en œuvre, selon ses propriétés.

La cohérence entre deux niveaux d'énergie, peu importe sa nature (optique, hyperfine) est donc la propriété physique importante qu'on manipule. Il importe donc d'avoir un système matériel présentant une facilité à être mis dans une superposition d'état, mais aussi capable d'y rester suffisamment longtemps. Différents systèmes matériels ont été expérimentés pour la réalisation d'une mémoire pour la lumière, tels les vapeurs froides (nuages froids) et les vapeurs chaudes, ou encore les atomes uniques placés en cavité résonnante. Les cristaux dopés aux ions de terres rares possèdent plusieurs caractéristiques incitant à les considérer comme de sérieux candidats pour la réalisation d'une mémoire quantique. La principale vient des dopants : la plupart des ions de terres rares présentent de longues durées de vie des cohérences à basse température (inférieure à 4 K) [3]. De plus, ces dopants, optiquement actifs, sont immobiles. On s'affranchit donc des problèmes de diffusion rencontrés avec des vapeurs atomiques. Enfin l'interaction lumière-matière est aisée, contrairement aux systèmes uniques, du fait du grand nombre d'ions actifs. Notre groupe travaille depuis plusieurs années sur l'ion thulium inséré en matrice cristalline YAG. Cet ion a été choisi principalement pour sa longueur d'onde d'excitation à 793 nm, facilement accessible avec des diodes lasers relativement simple à stabiliser [4], contrairement à d'autres ions de terres rares comme le praséodyme ou encore l'euporium pour lesquels des lasers à colorant sont nécessaires.

La thèse s'articule autour de la manière de préserver aussi longtemps que possible les cohérences à l'intérieur de notre système. Le premier chapitre réalise une étude quantique générale de l'ion Tm^{3+} à l'intérieur du cristal YAG. Les deuxième, troisième et quatrième chapitres évoquent les différents mécanismes conduisant à la destruction des cohérences de spin nucléaire, ou plus exactement de l'aimantation nucléaire présente initialement dans le milieu, ainsi que les techniques expérimentales mises en œuvre pour s'en affranchir et les résultats obtenus. Le dernier chapitre se penche sur les cohérences optiques des ions Tm^{3+} . On montre comment exploiter les outils développés dans les chapitres précédents à bon escient pour prolonger également leurs durées de vie.

Chapitre 1

L'ion Thulium en matrice cristalline YAG

1.1 Cristal YAG et symétrie locale des sites

Le grenat d'yttrium et d'aluminium, couramment appelé YAG, est un solide cristallin synthétique très largement utilisé pour les applications lasers. Le cristal présente une structure cubique à corps centré, la maille conventionnelle comprenant 8 fois la formule élémentaire $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$, soit 160 atomes [5]. Les 96 atomes d'oxygène, dont la position dépend de trois paramètres structuraux [6], sont les sommets de polyèdres dit polyèdres de coordination. Leurs centres définissent les sites dans lesquels seront logés les autres atomes. Les 40 atomes d'aluminium se répartissent sur les 24 sites tétraédriques et 16 sites octaédriques de la maille. Les atomes d'yttrium, sont eux au centre de dodécaèdres à 8 sommets qui s'écartent plus ou moins fortement d'un disphénoïde adouci¹. La structure générale d'un grenat est représentée sur la figure 1.1.

La symétrie d'un site se réfère à la symétrie de l'environnement de l'atome. Elle est donnée en pratique par le groupe ponctuel de symétrie du polyèdre de coordination du site. Connaître cette symétrie locale permet de prédire certaines propriétés du champ cristallin [7] sur la configuration énergétique des atomes étudiés, mais aussi de connaître les règles de sélection. Lorsque le cristal YAG est dopé aux ions de terres rares, ces derniers occupent généralement les sites dodécaédriques de l'yttrium, de symétrie intermédiaire entre la symétrie orthorhombique et tétragonale dans les grenats [8, 6]. Cependant la substitution peut entraîner un réarrangement des atomes d'oxygène et modifier le polyèdre de coordination, le rapprochant ou bien l'éloignant plus encore du disphénoïde adouci de symétrie tétragonale. La symétrie de l'environnement du dopant s'étudie donc au cas par cas et peut être différente d'un terre rare à un autre.

1. dodécaèdre à 8 sommets dont les faces sont des triangles équilatéraux.

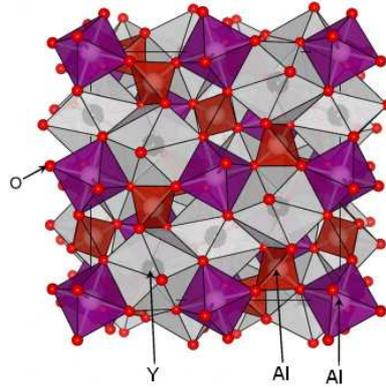


FIGURE 1.1 – Représentation de la structure du grenat d'yttrium (Y) et d'aluminium (Al) avec les différents polyèdres de coordination formés par les atomes d'oxygène (O).

1.2 Caractéristiques des ions de terres rares

1.2.1 Structure électronique

Les terres rares sont un groupe de métaux comprenant le scandium, l'yttrium et les quinze lanthanides (éléments de numéros atomiques compris entre 57 et 71, du lanthane au lutécium). Ils se trouvent principalement au degré d'oxydation +III qui sont à quelques exceptions près, leur seul état d'oxydation stable. Pour les lanthanides, les tri-cations ont alors une structure électronique de la forme :

$$(\text{cœur})^{46}5s^25p^64f^n, \text{ avec } n \text{ compris entre 0 et 14.} \quad (1.1)$$

Les derniers niveaux d'énergie sont donc occupés par les électrons de la sous-couche $4f$, caractérisée par une extension spatiale plus petite que celles des sous-couches $5s$ et $5p$ qui lui sont pourtant inférieures en énergie. Ces électrons des sous-couches périphériques $5s$ et $5p$ vont protéger les électrons $4f$ du champ électrique produit par les atomes de la matrice hôte. On peut considérer en effet que les électrons $5s$ et $5p$ écrantent le champ électrique environnant. Une autre explication possible est que la grande extension spatiale des sous-couches $5s$ et $5p$ maintiennent les ions ligands à une distance plus grande des électrons $4f$ ². L'un ou l'autre de ces mécanismes peut expliquer la finesse des raies spectrales provenant des transitions entre électrons $4f$, ces dernières ne subissant finalement pas ou peu d'élargissement par les fluctuations de ce champ perturbateur.

1.2.2 Symétrie par renversement du temps

En mécanique quantique, toute transformation laissant invariant le Hamiltonien du système étudié est associée à une symétrie, cette dernière conduisant à une dégénérescence d'une ou plusieurs valeurs propres du système. Parmi toutes ces transformations, l'opération de renversement du temps $\hat{\theta}$ correspond à un renversement du sens du mouvement : les vitesses, de

2. A comparer avec les électrons $3d$ des métaux de transitions, dont l'énergie du champ cristallin est en général élevé, supérieur au couplage spin-orbite et de même ordre de grandeur que celle de la répulsion coulombienne entre électrons $3d$ (voir chapitre 7 de [7]).

même que les moments cinétiques sont ainsi renversées. L'invariance par renversement du temps est lié à la micro-réversibilité. On trouvera une discussion intéressante dans la référence [9].

Pour une particule de spin $\frac{1}{2}$, on montre que l'opérateur $\hat{\theta}$ est antilinéaire, anti-unitaire et qu'il peut s'écrire :

$$\hat{\theta} = i\sigma_y \hat{K}_0 \quad (1.2)$$

où \hat{K}_0 est l'opérateur de conjugaison complexe qui associe à une fonction d'onde son complexe conjugué, et σ_y la matrice de Pauli associée à la composante y dans la représentation standard. On vérifie bien que $\hat{\theta}^2 = -1$. Pour un système de n particules de spin $\frac{1}{2}$, l'opérateur de renversement du temps est un simple produit des opérateurs associés à chaque particule :

$$\hat{\theta} = \prod_{p=1}^n \hat{\theta}_p \quad (1.3)$$

et on obtient donc

$$\hat{\theta}^2 = (-1)^n \quad (1.4)$$

qui dépend de la parité du nombre de particule n .

Considérons maintenant un ion de terre rare, et supposons que son Hamiltonien commute avec l'opérateur $\hat{\theta}$ (ce sera le cas lorsque le Hamiltonien contiendra les termes de l'ion libre, de la répulsion coulombienne, du couplage spin-orbite et du champ cristallin). Soit alors $|\psi\rangle$ état propre du Hamiltonien associé à l'énergie E . L'état $|\phi\rangle = \hat{\theta}|\psi\rangle$ est aussi état propre avec la même énergie. En exploitant l'anti-unitarité de $\hat{\theta}$, le produit scalaire $\langle\psi|\phi\rangle$ donne :

$$\langle\psi|\phi\rangle = \langle\psi|\hat{\theta}\psi\rangle = \langle\hat{\theta}\psi|\hat{\theta}^2\psi\rangle^* = \langle\hat{\theta}^2\psi|\hat{\theta}\psi\rangle = \langle\hat{\theta}^2\psi|\phi\rangle \quad (1.5)$$

Lorsque l'ion considéré a un nombre impair d'électrons, alors $\hat{\theta}^2 = -1$. Il en résulte que :

$$\langle\psi|\phi\rangle = -\langle\psi|\phi\rangle = 0 \quad (1.6)$$

Les états propres $|\psi\rangle$ et $|\phi\rangle$ sont orthogonaux, donc bien distincts. La valeur propre E est par conséquent *au moins* deux fois dégénérées. Cette dégénérescence, dite de Kramers, est caractéristique de tous les ions ayant un nombre impair d'électrons, et reste présente tant que l'opérateur renversement du temps commute avec le Hamiltonien. Ces ions sont désignés comme des *ions Kramers*, et l'état $|\phi\rangle = \hat{\theta}|\psi\rangle$ est appelé *conjugué de Kramers* de $|\psi\rangle$.

En revanche, lorsque l'ion possède un nombre pair d'électrons, $\hat{\theta}^2 = 1$ et on obtient simplement l'identité :

$$\langle\psi|\phi\rangle = \langle\psi|\phi\rangle \quad (1.7)$$

La symétrie par renversement du temps ne rajoute pas de dégénérescence supplémentaire. Ces ions ne présentant pas de dégénérescence de Kramers sont dits *non-Kramers*.

Le thulium ^{169}Tm est un atome appartenant au groupe des lanthanides, avec 69 électrons ; nombre qui se réduit à 66 une fois sous forme ionique Tm^{3+} . Son nombre pair d'électrons indique qu Tm^{3+} est non-Kramers. Les ions Tm^{3+} se substituent en général aux ions yttrium Y^{3+} une fois insérés en matrice cristalline YAG. Le rayon ionique de Tm^{3+} étant plus petit que celui de Y^{3+} [10], un probable réarrangement des atomes d'oxygène voisins conduit à une symétrie orthorhombique de l'environnement de Tm^{3+} comme le suggère la référence [11].

1.3 Les niveaux d'énergie de l'ion thulium en matrice YAG

Le Hamiltonien du système s'écrit :

$$\hat{H}_{tot} = \hat{H}_{IL} + \hat{H}_{CC} + [\hat{H}_{HF} + \hat{H}_{QE} + \hat{H}_{ZE} + \hat{H}_{ZN}] \quad (1.8)$$

Le premier terme correspondant à le Hamiltonien de l'ion libre est le point de départ de l'analyse. On incorpore ensuite le Hamiltonien du champ cristallin, puis les quatre termes décrivant respectivement l'interaction hyperfine, quadrupolaire électrique, Zeeman électronique et Zeeman nucléaire du Tm^{3+} .

1.3.1 Ion libre, champ cristallin et niveau Stark

La résolution exacte de l'équation de Schrödinger pour les états énergétiques d'un ion libre est quasiment impossible. L'approximation du champ central, qui suppose que les électrons périphériques se déplacent indépendamment les uns des autres dans un champ de symétrie sphérique, permet d'obtenir la configuration électronique, hautement dégénérée (91 fois), de Tm^{3+} . La répulsion coulombienne entre les électrons $4f$ permet une première levée de dégénérescence partielle conduisant à plusieurs termes spectroscopiques ^{2S+1}L où \hat{L} est le moment orbital total de l'électron et \hat{S} le spin électronique total. Chaque terme est dégénéré $(2S+1)(2L+1)$ fois. Le terme fondamental du Tm^{3+} est 3H , de dégénérescence 33.

Le couplage spin-orbite lève également partiellement la dégénérescence de la configuration électronique. Étant du même ordre de grandeur que la répulsion coulombienne pour les lanthanides, le traitement de l'interaction s'effectue dans le cadre de l'approximation de couplage intermédiaire. Elle éclate les termes spectroscopiques, donnant naissance à des niveaux spectroscopiques (ou multiplets) $^{2S+1}L_J$, $(2J+1)$ dégénérés, où $\hat{J} = \hat{L} + \hat{S}$ est le moment angulaire total. Ces multiplets sont séparés typiquement de plusieurs milliers de cm^{-1} . Ainsi, le couplage spin-orbite conduit pour Tm^{3+} , aux multiplets 3H_6 , 3H_5 et au fondamental 3H_6 , ce dernier étant 13 fois dégénéré.

Une fois dans la matrice YAG, les électrons $4f$ des ions Tm^{3+} subissent un champ électrostatique produit par les atomes du cristal, appelé champ cristallin, qu'on peut traiter comme une perturbation de l'ion libre. Le champ cristallin mélangera donc peu les différents niveaux spectroscopiques correspondant à différentes valeurs de J . Ainsi, le niveau fondamental 3H_6 de l'ion Tm^{3+} restera un état 3H_6 à plus de 99.5% en matrice cristalline YAG [12]. Cependant, le champ cristallin n'étant pas isotrope, la symétrie sphérique de l'ion libre est détruite. La dégénérescence des niveaux spectroscopiques peut ainsi être levée par effet Stark du champ cristallin. Le caractère partiel ou total de cette dégénérescence dépend alors de la symétrie locale du site occupé par l'ion Tm^{3+} dans le cristal, car le champ cristallin a la symétrie de l'environnement local de l'ion. Elle dépend également du caractère Kramers ou non-Kramers de Tm^{3+} .

On utilise généralement le modèle du champ cristallin pour prédire et retrouver les niveaux Stark expérimentaux [7]. Le tableau 1.1 présente le nombre de niveaux issu d'un multiplet $^{2S+1}L_J$ selon la classe de symétrie de l'environnement local de l'ion.

Comme énoncé plus haut, les ions Tm^{3+} se substituent aux ions Y^{3+} en matrice cristalline YAG, et ont une symétrie orthorhombique. Puisque Tm^{3+} est non-Kramers, la dégénérescence

des multiplets spectroscopiques peut donc être complètement levée par le champ cristallin. C'est effectivement ce qui est observé en pratique. Plus précisément, on retrouve avec une bonne précision les écarts énergétiques entre les différents niveaux Stark lorsqu'on choisit le groupe de symétrie D_2^3 pour les sites du Tm^{3+} [13, 12]. Par la suite, on considérera les sites des ions Tm^{3+} de symétrie D_2 .

Bien que les niveaux Stark soit non-dégénérés, ils ne correspondent pas à une valeur du nombre quantique M_J . L'origine vient du blocage du moment cinétique électronique total \mathbf{J} , qu'on démontrera dans la sous-section suivante. On peut néanmoins avoir une idée de l'expression de ces états propres en exploitant justement les conséquences de ce blocage. Ceci est abordé succinctement en annexe. Les niveaux Stark sont référencés par ordre croissant d'énergie comme suit : $^{2S+1}L_J(i)$, i valant 0 pour le plus bas et $2J + 1$ pour le plus élevé.

A l'intérieur d'un multiplet J , les niveaux Stark peuvent être divisés en deux catégories selon leurs durées de vie :

1. le niveau Stark de plus basse énergie. Ne pouvant se relaxer que par émission spontanée ou bien par processus multi-phonon, il a une relative longue durée de vie (plusieurs centaines de μs dans $^3H_4(0)$ [3]).
2. les autres niveaux. La relaxation par processus direct à un phonon est alors possible, raccourcissant drastiquement la durée de vie des niveaux bien en dessous de la microseconde. Par exemple, $^3H_6(1)$ a une durée de vie inférieure à 3 ns.

Les transitions optiques facilement accessibles par diode laser (700 – 800 nm) ont lieu entre le multiplet fondamental 3H_6 et le multiplet excité 3H_4 . Compte-tenu de ce qui précède, la transition considérée par la suite mettra en jeu le niveau de plus basse énergie de chaque multiplet, $^3H_6(0)$ (niveau fondamental électronique) et $^3H_4(0)$ (niveau excité électronique à 12604.3 cm^{-1}).

Jusqu'à maintenant, on ne s'est intéressé qu'aux électrons de l'ion Tm^{3+} . Regardons ce qu'il advient lorsque les interactions mettant en jeu le spin nucléaire sont prises en compte.

1.3.2 Champ magnétique externe et niveaux Zeeman

Le numéro atomique $A = 169$ du Thulium (100 neutrons et 69 protons) conduit à un noyau de spin $\hat{I} = \frac{1}{2}$. Les états propres, pouvant s'écrire désormais comme le produit d'un état électronique $^4|\psi\rangle$ et d'un état de spin nucléaire $|\chi\rangle$, présentent alors une dégénérescence de spin nucléaire d'ordre 2. Les quatre derniers termes du Hamiltonien total, décrivant un Hamiltonien

3. Groupe diédral d'ordre 2

J =	0	1	2	3	4	5	6	7	8
Cubique	1	1	2	3	4	5	6	6	7
Hexagonale	1	2	3	5	6	7	9	10	11
Tetragonale	1	2	4	5	7	8	10	11	13
Orthorombique et autres	1	3	5	7	9	11	13	15	17

TABLE 1.1 – Nombre de niveaux Stark obtenu par effet Stark selon la classe de symétrie du site, pour différentes valeurs de J

dit de spin

$$\hat{H}_{spin} = \hat{H}_{HF} + \hat{H}_{QE} + \hat{H}_{ZE} + \hat{H}_{ZN} \quad (1.9)$$

sont susceptibles de lever cette dégénérescence :

1. l'interaction hyperfine

$$\hat{H}_{HF} = A_J \hat{\mathbf{I}} \cdot \hat{\mathbf{J}} \quad (1.10)$$

où A_J représente la constante de couplage hyperfin, en $J^{-1}s^{-2}$ dans le système international SI et est donnée en annexe. Elle dépend du niveau Stark considéré. L'interaction hyperfine est de l'ordre de 0.01 cm^{-1} .

2. l'interaction quadrupolaire électrique

$$\hat{H}_{QE} = P \left[\hat{I}_{z'}^2 - \frac{I(I+1)}{3} + \frac{\eta}{3} (\hat{I}_{x'}^2 - \hat{I}_{y'}^2) \right] \quad (1.11)$$

où P est la constante de couplage quadrupolaire, η le paramètre d'asymétrie du gradient de champ électrique, et x', y', z' les axes principaux du tenseur du gradient de champ électrique. Cette interaction s'annule pour un spin nucléaire de $\frac{1}{2}$, ce qui est le cas de Tm^{3+} . Elle ne sera donc pas prise en compte par la suite.

3. l'interaction Zeeman électronique sous l'effet d'un champ magnétique externe \mathbf{B}

$$\hat{H}_{ZE} = -\frac{g_J \mu_B}{\hbar} \hat{\mathbf{J}} \cdot \mathbf{B} \quad (1.12)$$

avec g_J le facteur de Landé associé au multiplet J , μ_B le magnéton de Bohr et \hbar la constante de Planck réduite.

4. l'interaction Zeeman nucléaire

$$\hat{H}_{ZN} = -\gamma_n \hat{\mathbf{I}} \cdot \mathbf{B} \quad (1.13)$$

où γ_n le facteur gyromagnétique du noyau.

Les termes de \hat{H}_{spin} étant faibles devant le Hamiltonien du champ cristallin (rapport de l'ordre de 10^4), ils peuvent être traités par la théorie des perturbations. Au premier ordre, la correction est donnée par la valeur moyenne de chaque terme. Il s'avère cependant que pour un ion non-Kramers, la valeur moyenne dans un état *non-dégénéré* $|\psi\rangle$ du moment cinétique total est nulle. En effet, $\hat{\mathbf{J}}$ étant impair par renversement du temps, on a $\hat{\theta} \hat{\mathbf{J}} \hat{\theta}^{-1} = -\hat{\mathbf{J}}$. Alors

$$\langle \hat{\mathbf{J}} \rangle = \langle \psi | \hat{\mathbf{J}} | \psi \rangle = \langle \psi | \hat{\mathbf{J}} \hat{\theta}^{-1} \hat{\theta} | \psi \rangle = \langle \psi | \hat{\mathbf{J}} \hat{\theta}^{-1} | \phi \rangle = -\langle \psi | \hat{\theta}^{-1} \hat{\mathbf{J}} | \phi \rangle = -\langle \phi | \hat{\mathbf{J}} | \phi \rangle = -\langle \hat{\mathbf{J}} \rangle \quad (1.14)$$

puisque que pour un ion non-Kramers, l'état non-dégénéré $|\psi\rangle$ coïncide avec son conjugué de Kramers $|\phi\rangle$. La relation ci-dessus conduit bien à :

$$\langle \hat{\mathbf{J}} \rangle = 0 \quad (1.15)$$

Comme démontré plus haut, tous les niveaux Stark de l'ion Tm^{3+} sont non-dégénérés⁵, en particulier les états ${}^3H_6(0)$ et ${}^3H_4(0)$. Ainsi, ce blocage du moment cinétique total, ou encore

4. L'état électronique correspondant ici à un niveau Stark non-dégénéré.

quenching provoque l'annulation au premier ordre de l'interaction hyperfine et Zeeman électronique. La correction au second ordre pour ces deux interactions est alors nécessaire pour décrire leurs effets. Le Hamiltonien de spin s'écrit alors dans ce cas :

$$\hat{H}_{spin} = -A_J^2 \hat{\mathbf{I}} \cdot \Lambda \cdot \hat{\mathbf{I}} - \left(\frac{2g_J \mu_B A_J}{\hbar} \mathbf{B} \cdot \Lambda \cdot \hat{\mathbf{I}} - \hat{H}_{Zn} \right) - g_J^2 \mu_B^2 \mathbf{B} \cdot \Lambda \cdot \mathbf{B} \quad (1.16)$$

où Λ est un tenseur d'ordre 2 défini par

$$\Lambda_{\alpha\beta} = \sum_{n \neq 0} \frac{\langle 0 | \hat{J}_\alpha | n \rangle \langle n | \hat{J}_\beta | 0 \rangle}{E_n - E_0} \quad (1.17)$$

avec E_0 l'énergie du niveau de plus basse énergie du multiplet électronique (ici ${}^3H_6(0)$ ou ${}^3H_4(0)$) et E_n l'énergie d'un autre niveau appartenant au même multiplet.

Le premier terme $A_J^2 \hat{\mathbf{I}} \cdot \Lambda \cdot \hat{\mathbf{I}}$ correspond à l'interaction hyperfine au second ordre de perturbation. Appelé également terme d'interaction pseudo-quadrupolaire, il peut se réécrire :

$$A_J^2 \hat{\mathbf{I}} \cdot \Lambda \cdot \hat{\mathbf{I}} = D \left(\hat{I}_z^2 - \frac{I(I+1)}{3} \right) + E(\hat{I}_x^2 - \hat{I}_y^2) \quad (1.18)$$

avec

$$D = A_J^2 \left(\frac{\Lambda_{xx} + \Lambda_{yy} - \Lambda_{zz}}{3} \right), \quad E = \frac{A_J^2}{2} (\Lambda_{yy} - \Lambda_{xx}) \quad (1.19)$$

Ce terme s'annulant pour toute valeur de $I < 1$ comme le terme quadrupolaire électrique, l'ion Tm^{3+} est donc dépourvu de structure hyperfine au premier et au second ordre de perturbation.

Le deuxième terme $\frac{2g_J \mu_B A_J}{\hbar} \mathbf{B} \cdot \Lambda \cdot \hat{\mathbf{I}}$ représente le couplage au deuxième ordre entre l'interaction hyperfine et l'interaction Zeeman électronique, en général bien plus important que l'interaction Zeeman nucléaire. Associés ensemble, ils forment l'interaction dite *Zeeman nucléaire exacerbée*. Le Hamiltonien correspondant peut se mettre alors sous la forme plus simple :

$$\hat{H}_{Zne} = -\mathbf{B} \cdot \bar{\gamma} \cdot \hat{\mathbf{I}} \quad (1.20)$$

où $\bar{\gamma}$ est le tenseur gyromagnétique de l'ion Tm^{3+} défini par l'expression :

$$\bar{\gamma} = \gamma_n \mathbb{1} + \frac{2g_J \mu_B A_J}{\hbar} \Lambda \quad (1.21)$$

Cette interaction permet de séparer les deux états de spin nucléaire d'un état propre du système. Les niveaux d'énergie obtenus en appliquant un champ magnétique, dont l'état propre non-dégénéré est le produit tensoriel d'un état Stark électronique et d'un état de spin nucléaire, seront dénommés par la suite *niveaux Zeeman*, en référence à l'interaction de type Zeeman responsable de leurs non-dégénérescence.

Le troisième terme $g_J^2 \mu_B^2 \mathbf{B} \cdot \Lambda \cdot \mathbf{B}$ correspond à l'interaction Zeeman électronique au second ordre, également nommée *déplacement Zeeman électronique quadratique*. Ce terme produit un simple déplacement des niveaux Zeeman de Tm^{3+} . Cependant, l'interaction dépendant de $\hat{\mathbf{J}}$ à travers le facteur de Landé g_J et le tenseur Λ , deux niveaux Zeeman issus de niveaux Stark

5. En fait, une levée de dégénérescence totale par effet Stark du champ cristallin n'est pas nécessaire. Il suffit que les deux niveaux d'énergie de la transition optique soient non-dégénérés, ici ${}^3H_6(0)$ et ${}^3H_4(0)$.

différents subiront un déplacement énergétique différent. Nous verrons ultérieurement les opportunités offertes par cette interaction.

Le diagramme d'énergie de $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ a été complètement identifié. La figure 1.2 schématise les diverses contributions à la levée de dégénérescence de chaque interaction. Comme on vient de le voir, l'application d'un champ magnétique externe est nécessaire pour avoir des niveaux de spin distincts, préalable à la création contrôlée d'une cohérence de spin. Nous allons voir maintenant comment exploiter ces niveaux afin d'obtenir effectivement un système en Λ , en déterminant les transitions optiques permises et en décrivant précisément la manière dont se manifeste cet effet Zeeman exacerbé sur les ions Tm^{3+} .

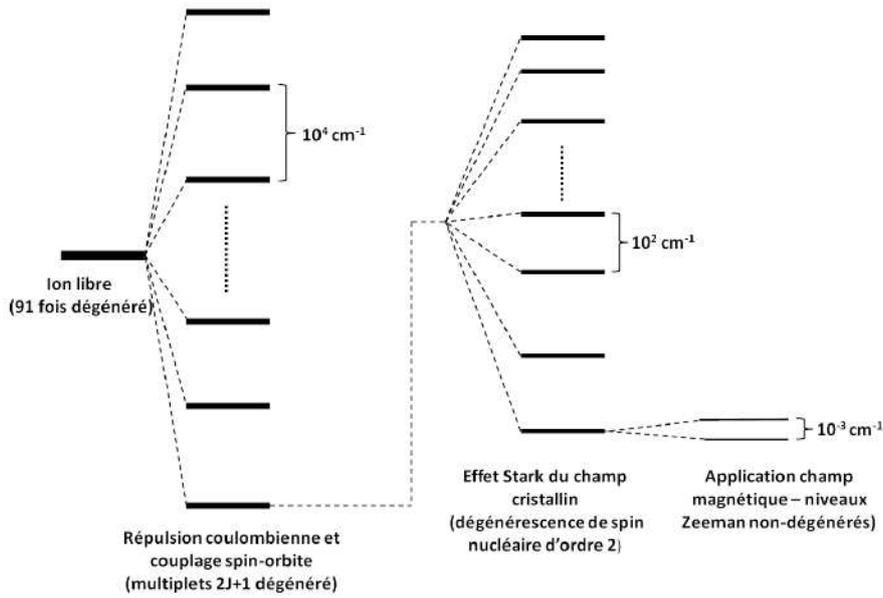


FIGURE 1.2 – Levée de dégénérescence successive des niveaux d'énergie du Tm^{3+}

1.4 Structure en Λ dans $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$

Le système en Λ peut se réaliser en couplant optiquement les deux niveaux Zeeman de ${}^3H_6(0)$ à l'un des deux niveaux Zeeman de ${}^3H_4(0)$. Il devient alors primordial de connaître les règles de sélection des différentes transitions optiques du système en Λ . Une transition entre un état fondamental $|\phi_f\rangle$ et un état excité $|\phi_e\rangle$ (qu'on suppose normés) est permise si l'élément de matrice du Hamiltonien de transition entre ces deux états est non nul. Dans l'approximation dipolaire électrique, le Hamiltonien s'écrit :

$$\hat{W}_{DE} = \hat{\mu} \cdot \mathbf{E} \quad (1.22)$$

où $\hat{\mu} = e\hat{\mathbf{R}}$ est l'opérateur moment dipolaire électrique avec $-e$ la charge de l'électron, \mathbf{E} le champ lumineux incident et $\hat{\mathbf{R}}$, l'opérateur position. La règle de sélection s'écrit alors :

$$\langle \phi_e | \hat{W}_{DE} | \phi_f \rangle \neq 0 \quad (1.23)$$

En réécrivant $|\phi_i\rangle$ (où $i = e, f$) comme un produit d'un état électronique $|\psi_i\rangle$ et d'un état de spin nucléaire $|\chi_i\rangle$, $|\phi_i\rangle = |\psi_i\rangle|\chi_i\rangle$, et en explicitant l'expression de \hat{W}_{DE} , l'amplitude de probabilité s'écrit :

$$\langle \phi_e | \hat{W}_{DE} | \phi_f \rangle = \langle \psi_e | \hat{W}_{DE} | \psi_f \rangle \langle \chi_e | \chi_f \rangle = \mathbf{E} \cdot \langle \psi_e | \hat{\boldsymbol{\mu}} | \psi_f \rangle \langle \chi_e | \chi_f \rangle \quad (1.24)$$

Le champ \mathbf{E} étant non nul, la règle de sélection devient alors :

$$\langle \psi_e | \hat{\boldsymbol{\mu}} | \psi_f \rangle \langle \chi_e | \chi_f \rangle \neq 0 \quad (1.25)$$

Intéressons nous tout d'abord au premier facteur.

1.4.1 Orientation des dipôles électriques

Sites orientationnellement inéquivalents

Un site de substitution de Tm^{3+} possède la symétrie D_2 , D_2 étant le groupe ponctuel de symétrie diédral d'ordre 2. Il est constitué de quatre éléments : l'identité E et trois axes de symétrie d'ordre 2, $C_2(z)$, $C_2(y)$ et $C_2(x)$ ⁶. Ces trois axes, perpendiculaires deux à deux, forment le repère local $R_{loc} = \{x, y, z\}$ d'un site du Tm^{3+} . Ce groupe possède quatre représentations irréductibles A , B_1 , B_2 et B_3 . Les caractères associés à chaque représentation décrit la manière dont se comporte cette dernière vis à vis des opérations de symétrie du groupe. L'ensemble est synthétisé dans une table de caractères. Celle du groupe D_2 est représentée dans le tableau 1.2.

D_2	E	$C_2(z)$	$C_2(y)$	$C_2(x)$	
A	1	1	1	1	
B_1	1	1	-1	-1	μ_z
B_2	1	-1	1	-1	μ_y
B_3	1	-1	-1	1	μ_x

TABLE 1.2 – Table des caractères du groupe de symétrie D_2 . Chaque caractère décrit la manière dont se transforme une représentation sous une opération de symétrie.

Les états électroniques de l'élément de matrice $\langle \psi_e | \hat{\boldsymbol{\mu}} | \psi_f \rangle$ sont des états Stark du système. Plus précisément ici, $|\psi_f\rangle$ s'identifie à l'état propre de ${}^3H_6(0)$ et $|\psi_e\rangle$ à celui de ${}^3H_4(0)$. Ces états Stark sont également états propres de toutes les opérations de symétrie du groupe D_2 ⁷. Par ailleurs, le Hamiltonien dipolaire électrique doit rester invariant par ces mêmes opérations. En s'appuyant sur la théorie des groupes et de ses représentations, on peut déterminer les règles de sélection de la transition dipolaire électrique sous la symétrie D_2 . Le résultat fondamental appliqué à notre situation est le suivant : *l'élément de matrice $\langle \psi_e | \vec{\mu} | \psi_f \rangle$ s'annule si la représentation irréductible de $|\psi_e\rangle$ (${}^3H_4(0)$) n'est pas incluse dans le produit direct, noté Γ' , des représentations de l'opérateur $\hat{\boldsymbol{\mu}}$ et de $|\psi_f\rangle$ (${}^3H_6(0)$)*. Les représentations de ${}^3H_6(0)$ et ${}^3H_4(0)$ dans le groupe D_2 , déterminées expérimentalement dans la référence [12], sont respectivement B_2 et A . Les représentations des composantes de $\hat{\boldsymbol{\mu}}$, $\hat{\mu}_x$, $\hat{\mu}_y$ et $\hat{\mu}_z$ sont indiquées dans le tableau 1.2.

6. Une rotation d'angle π du système autour d'un tel axe laisse le système inchangé.

7. Par construction dans le modèle du champ cristallin.

Le produit direct Γ' peut se décomposer en une somme directe de représentations irréductibles du groupe :

$$\Gamma' \simeq m_A A \oplus m_{B_1} B_1 \oplus m_{B_2} B_2 \oplus m_{B_3} B_3$$

où l'écriture générique $m_V V$ signifie $m_V V = V \oplus \dots \oplus V$ (m_V fois). Comme Γ' doit contenir la représentation A pour que l'élément de matrice soit différent de zéro, le coefficient m_A doit être non nul. On montre que l'expression de ce coefficient est fonction des caractères des différentes représentations mises en jeu, et s'écrit ici :

$$m_A = \frac{1}{4} \sum_g \chi^{\Gamma_\mu}(g) \chi^{B_2}(g) \overline{\chi^A(g)}$$

où l'écriture générique $\chi^V(g)$ désigne le caractère associé à l'élément de groupe g de la représentation V , Γ_μ décrivant la représentation d'une des composantes du moment dipolaire électrique $\vec{\mu}$. Le calcul pour chaque composante de $\hat{\mu}$ donne :

$$\text{pour } \hat{\mu}_x : m_A = 1 * 1 * 1 + (-1) * (-1) * 1 + (-1) * 1 * 1 + 1 * (-1) * 1 = 0 \quad (1.26)$$

$$\text{pour } \hat{\mu}_y : m_A = 1 * 1 * 1 + (-1) * (-1) * 1 + 1 * 1 * 1 + (-1) * (-1) * 1 = 4 \quad (1.27)$$

$$\text{pour } \hat{\mu}_z : m_A = 1 * 1 * 1 + 1 * (-1) * 1 + (-1) * 1 * 1 + (-1) * (-1) * 1 = 0 \quad (1.28)$$

D'après les calculs, seule la composante selon y du moment dipolaire électrique $\vec{\mu}$ donne un élément de matrice différent de zéro : $\hat{\mu}$ est donc aligné selon la direction y du repère local, soit l'axe $C_2(y)$. La règle de sélection est donc la suivante : *le champ lumineux \mathbf{E} devra avoir une composante non nulle selon y dans le repère local d'un site du Tm^{3+} pour exciter ce dernier.*

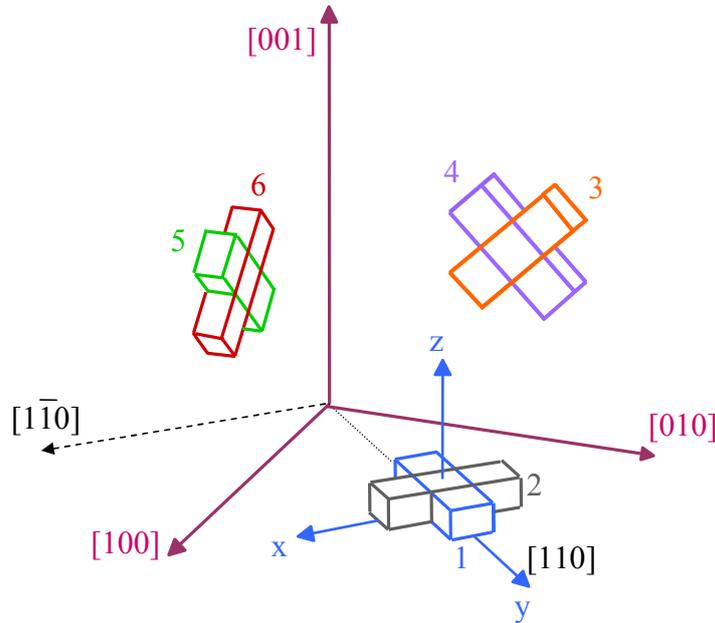


FIGURE 1.3 – Orientation des six sites de l'yttrium dans le YAG. Chaque parallélépipède symbolise la symétrie D_2 du champ cristallin. Les axes x , y et z représentés ici sont les axes locaux du site 1. L'orientation du dipôle de transition de chaque site est représentée par la plus grande dimension du parallélépipède. Le faisceau excitateur se propage selon la direction $[1\bar{1}0]$.

L'orientation du dipôle par rapport aux axes cristallins de la maille a été déterminée pour un site particulier dans les références [14, 15], ainsi que les deux autres axes définissant le repère local. Ce site est appelé site 1. A partir de ce dernier, on peut retrouver tous les autres sites de la maille cristalline, ainsi que l'orientation de leurs dipôles, en appliquant les opérations de symétrie globale du cristal. Le calcul montre que les sites, bien que cristallographiquement équivalents, sont *orientationnellement* inéquivalents. Six orientations sont possibles pour le moment dipolaire électrique, correspondant à six groupes de sites différents. Ces derniers sont représentés sur la figure 1.3 par des prismes orthorhombiques symbolisant la symétrie D_2 du champ cristallin. Les axes locaux $\{x, y, z\}$ du site 1 sont orientés respectivement selon les directions $[1\bar{1}0]$, $[110]$ et $[001]$. Le repère local R_{loc} des autres sites se déduit par les opérations de symétrie du cristal. Par ailleurs, le champ lumineux exciteur se propage dans nos expériences suivant la direction $[1\bar{1}0]$.

Multiplicité des pulsations de Rabi

L'existence de ces six sites a une conséquence lorsque les ions sont excités par un faisceau optique. En effet, l'intensité de l'interaction est généralement déterminée par une pulsation de Rabi :

$$\Omega = \frac{\boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E}}{\hbar} \quad (1.29)$$

où \mathbf{E} est le champ électrique et $\boldsymbol{\mu}$ le moment dipolaire de la transition du site qui, on le rappelle, est selon l'axe y du repère local associé. Ce dernier peut former un angle différent avec chacun des sites, ce qui conduit à des pulsations de Rabi différentes, jusqu'à six. Pour les expériences, il est commode de travailler avec une pulsation de Rabi commune pour un plus grand nombre de site. Cela simplifie par exemple le travail d'analyse des mesures optiques.

La direction de propagation du champ lumineux dans le cristal étant selon $[1\bar{1}0]$, la polarisation du champ sera contenu dans le plan orthogonal à $[1\bar{1}0]$. Il existe alors deux orientations du champ pour lesquels les ions sont excités avec la même pulsation de Rabi :

- polarisation selon $[111]$: les ions des sites 2, 4 et 6 ne sont pas excités car leur moment dipolaire est perpendiculaire au champ. Les ions 1, 3 et 5 ont une pulsation de Rabi commune et la projection du vecteur unitaire du champ électrique sur l'axe y vaut $\sqrt{2/3}$.
- polarisation selon $[001]$: cette fois-ci, les ions des sites 1 et 2 ne sont pas excités. Le champ électrique fait un angle de $\pi/4$ avec les dipôles des sites 3,4,5 et 6 ; ce qui donne un produit scalaire des vecteurs unitaires de $\sqrt{1/2}$.

1.4.2 Effet Zeeman nucléaire exacerbé et système en Λ

Comme montré plus haut, l'application d'un champ magnétique externe \mathbf{B} permet de lever la dégénérescence de spin nucléaire des deux niveaux Stark ${}^3H_6(0)$ et ${}^3H_4(0)$. Cependant, pour obtenir un architecture des niveaux Zeeman en Λ exploitable, il faut que les transitions optiques des deux branches du Λ soient autorisées. Le deuxième facteur de la règle de sélection (Eq. 1.25) interdisant une transition entre deux niveaux de spin nucléaire différent, un simple effet Zeeman nucléaire n'est pas suffisant pour créer un système en Λ , comme illustré sur la figure 1.4. Le caractère anisotrope de l'interaction Zeeman nucléaire exacerbée crée des niveaux Zeeman dans une superposition d'état de spin nucléaire $+1/2$ et $-1/2$, cette superposition étant différente

selon qu'on considère ${}^3H_6(0)$ ou ${}^3H_4(0)$. Les transitions deviennent alors permises. Démontrons le par le calcul.

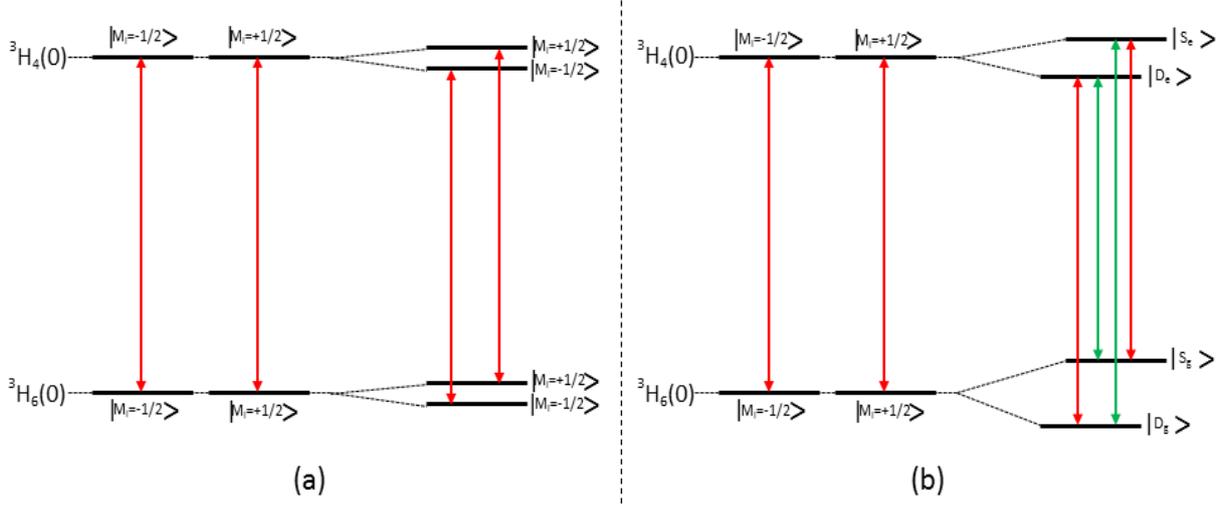


FIGURE 1.4 – Ensemble de deux systèmes à deux niveaux dans $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ sous champ magnétique. (a) Interaction Zeeman nucléaire simple. (b) Interaction Zeeman nucléaire exacerbé. Les états $|S_{g,e}\rangle$ et $|D_{g,e}\rangle$ sont des mélanges d'états de spin nucléaire, S pour somme, D pour différence; les indices g et e pour ground et excited. Les transitions optiques autorisées sont représentées par les flèches. En rouge, celles initialement permises. En vert, celles devenues permises.

Dans le référentiel du laboratoire, on définit l'orientation de \mathbf{B}_s dans le repère cristallin d'axes $\mathbf{X}_c = [001]$, $\mathbf{Y}_c = [010]$ et $\mathbf{Z}_c = [001]$, par deux angles Θ et Φ illustrés sur la figure 1.5 :

$$\mathbf{B}_s = \begin{bmatrix} B_{X_c} \\ B_{Y_c} \\ B_{Z_c} \end{bmatrix} = B_s \begin{bmatrix} \sin \Theta \cos \Phi \\ \sin \Theta \sin \Phi \\ \cos \Theta \end{bmatrix} \quad (1.30)$$

où $B_s = |\mathbf{B}_s|$ est l'intensité du champ magnétique. Pour la diagonalisation du Hamiltonien, il est commode de se placer dans le repère local lié à un site. En effet, le tenseur gyromagnétique $\bar{\gamma}$ s'exprime très simplement dans son système d'axes principaux. Il s'avère que sous la symétrie locale D_2 , les axes principaux du tenseur gyromagnétique $\bar{\gamma}$ se confondent avec les trois axes C_2 du repère local R_{loc} du site [16] : $\bar{\gamma}$ exprimé dans ce repère est donc diagonal d'éléments γ_x , γ_y et γ_z . L'écriture de \hat{H}_{Zne} de l'expression (1.20) se simplifie comme suit :

$$\hat{H}_{Zne} = -\hbar \left[\gamma_x B_x(\Theta, \Phi) \hat{I}_x + \gamma_y B_y(\Theta, \Phi) \hat{I}_y + \gamma_z B_z(\Theta, \Phi) \hat{I}_z \right] \quad (1.31)$$

γ_i étant les éléments diagonaux du tenseur gyromagnétique $\bar{\gamma}$ défini dans l'expression (1.21) :

$$\gamma_i = \gamma_n + \frac{2g_J \mu_B A_J \Lambda_{ii}}{\hbar}, \quad i = x, y, z \quad (1.32)$$

et où les éléments B_x , B_y et B_z sont les coordonnées du champ externe \mathbf{B}_s dans le repère local d'un site. Les sites étant orientationnellement inéquivalents, l'expression de \mathbf{B}_s est différente

d'un repère à l'autre, comme on peut le voir ci-dessous.

$$\mathbf{B}_{sit1} = B_s \begin{bmatrix} \frac{\sqrt{2}}{2} \sin \Theta [\cos \Phi - \sin \Phi] \\ \frac{\sqrt{2}}{2} \sin \Theta [\cos \Phi + \sin \Phi] \\ \cos \Theta \end{bmatrix} \quad \mathbf{B}_{sit2} = B_s \begin{bmatrix} \frac{\sqrt{2}}{2} \sin \Theta [\cos \Phi + \sin \Phi] \\ \frac{\sqrt{2}}{2} \sin \Theta [-\cos \Phi + \sin \Phi] \\ \cos \Theta \end{bmatrix} \quad (1.33)$$

$$\mathbf{B}_{sit3} = B_s \begin{bmatrix} \frac{\sqrt{2}}{2} [\sin \Theta \sin \Phi - \cos \Theta] \\ \frac{\sqrt{2}}{2} [\sin \Theta \sin \Phi + \cos \Theta] \\ \sin \Theta \cos \Phi \end{bmatrix} \quad \mathbf{B}_{sit4} = B_s \begin{bmatrix} \frac{\sqrt{2}}{2} [\sin \Theta \sin \Phi + \cos \Theta] \\ \frac{\sqrt{2}}{2} [-\sin \Theta \sin \Phi + \cos \Theta] \\ \sin \Theta \cos \Phi \end{bmatrix} \quad (1.34)$$

$$\mathbf{B}_{sit5} = B_s \begin{bmatrix} \frac{\sqrt{2}}{2} [\cos \Theta - \sin \Theta \cos \Phi] \\ \frac{\sqrt{2}}{2} [\cos \Theta + \sin \Theta \cos \Phi] \\ \sin \Theta \sin \Phi \end{bmatrix} \quad \mathbf{B}_{sit6} = B_s \begin{bmatrix} \frac{\sqrt{2}}{2} [\cos \Theta + \sin \Theta \cos \Phi] \\ \frac{\sqrt{2}}{2} [-\cos \Theta + \sin \Theta \cos \Phi] \\ \sin \Theta \sin \Phi \end{bmatrix} \quad (1.35)$$

Dans la base propre $\{|+\rangle, |-\rangle\}$ de l'opérateur \hat{I}_z , les opérateurs \hat{I}_x , \hat{I}_y et \hat{I}_z s'écrivent avec les matrices de Pauli σ_α :

$$\hat{I}_x = \frac{\hbar}{2} \hat{\sigma}_x = \frac{\hbar}{2} \begin{bmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{bmatrix}, \quad \hat{I}_y = \frac{\hbar}{2} \hat{\sigma}_y = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{bmatrix}, \quad \hat{I}_z = \frac{\hbar}{2} \hat{\sigma}_z = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{bmatrix} \quad (1.36)$$

Pour un ion Tm^{3+} , le Hamiltonien Zeeman nucléaire exacerbé s'exprime alors :

$$\hat{H}_{Zne} = -\frac{\hbar}{2} \begin{bmatrix} \gamma_z B_z & \gamma_x B_x - \mathcal{J} \gamma_y B_y \\ \gamma_x B_x + \mathcal{J} \gamma_y B_y & -\gamma_z B_z \end{bmatrix} \quad (1.37)$$

Le calcul des valeurs propres du Hamiltonien donne :

$$E_+ = +\frac{\hbar}{2} \sqrt{\gamma_x^2 B_x^2 + \gamma_y^2 B_y^2 + \gamma_z^2 B_z^2} \quad E_- = -\frac{\hbar}{2} \sqrt{\gamma_x^2 B_x^2 + \gamma_y^2 B_y^2 + \gamma_z^2 B_z^2} \quad (1.38)$$

On note $\Delta(\Theta, \Phi) = (E_+(\Theta, \Phi) - E_-(\Theta, \Phi))/\hbar$, l'écartement en fréquence (splitting), qui correspond à la pulsation de transition entre les deux niveaux d'énergie E_+ et E_- . En introduisant le champ magnétique effectif suivant :

$$\mathbf{B}_{eff} = \frac{\Delta}{\gamma_n} \frac{1}{\Delta} \begin{bmatrix} \gamma_x B_x \\ \gamma_y B_y \\ \gamma_z B_z \end{bmatrix} = \frac{\Delta}{\gamma_n} \mathbf{b}_{eff} = \frac{\Delta}{\gamma_n} \begin{bmatrix} m \\ n \\ l \end{bmatrix} \quad (1.39)$$

où \mathbf{b}_{eff} est le vecteur unitaire dirigeant \mathbf{B}_{eff} . Le Hamiltonien Zeeman nucléaire exacerbé prend la forme simple de l'effet Zeeman nucléaire :

$$H_{Zne} = -\hbar \gamma_n \mathbf{B}_{eff} \cdot \hat{\mathbf{I}} = -\hat{\boldsymbol{\mu}}_N \cdot \mathbf{B}_{eff} \quad (1.40)$$

où $\hat{\boldsymbol{\mu}}_N$ est le moment magnétique nucléaire de l'ion Tm^{3+} considéré. Tout se passe comme si l'ion Tm^{3+} interagissait avec ce champ effectif. Ce dernier dépend de la classe du site sur lequel se trouve l'ion Tm^{3+} , à travers les coordonnées de \mathbf{B}_s . Par ailleurs, les éléments diagonaux du tenseur gyromagnétique dépendent du moment cinétique électronique \mathbf{J} à travers le facteur de Landé g_J , la constante de couplage hyperfin A_J et le tenseur Λ (expression (1.21)). Ainsi, pour une même classe de site, le champ effectif sera différent pour le fondamental ${}^3H_6(0)$ et l'excité ${}^3H_4(0)$, de même que les énergies propres. On distingue ainsi :

$$\Delta_g = \frac{E_{g,+} - E_{g,-}}{\hbar} = \sqrt{\gamma_{g,x}^2 B_x^2 + \gamma_{g,y}^2 B_y^2 + \gamma_{g,z}^2 B_z^2} \quad \mathbf{B}_{eff,g} = \frac{\Delta_g}{\gamma_n} \mathbf{b}_{eff,g} \quad (1.41)$$

$$\Delta_e = \frac{E_{e,+} - E_{e,-}}{\hbar} = \sqrt{\gamma_{e,x}^2 B_x^2 + \gamma_{e,y}^2 B_y^2 + \gamma_{e,z}^2 B_z^2} \quad \mathbf{B}_{eff,e} = \frac{\Delta_e}{\gamma_n} \mathbf{b}_{eff,e} \quad (1.42)$$

où l'indice g (pour *ground*) fait référence à la valeur dans le fondamental et l'indice e (pour *excited*), à la valeur dans l'excité. On obtient au final le jeu de valeurs et vecteurs propres :

$$E_1 = -\frac{\hbar\Delta_g}{2} \quad |1\rangle = \frac{1}{\sqrt{2(1-l_g)}} \begin{bmatrix} m_g - jn_g \\ 1 - l_g \end{bmatrix} \quad (1.43)$$

$$E_2 = +\frac{\hbar\Delta_g}{2} \quad |2\rangle = \frac{1}{\sqrt{2(1+l_g)}} \begin{bmatrix} m_g - jn_g \\ -1 - l_g \end{bmatrix} \quad (1.44)$$

$$E_3 = -\frac{\hbar\Delta_e}{2} \quad |3\rangle = \frac{1}{\sqrt{2(1-l_e)}} \begin{bmatrix} m_e - jn_e \\ 1 - l_e \end{bmatrix} \quad (1.45)$$

$$E_4 = +\frac{\hbar\Delta_e}{2} \quad |4\rangle = \frac{1}{\sqrt{2(1+l_e)}} \begin{bmatrix} m_e - jn_e \\ -1 - l_e \end{bmatrix} \quad (1.46)$$

Les deux premiers états propres étant issus du niveau électronique fondamental ${}^3H_6(0)$, les deux derniers du niveau électronique excité ${}^3H_4(0)$. L'anisotropie du tenseur gyromagnétique permet d'obtenir des niveaux Zeeman s'écrivant comme mélange des états propres $\{|+\rangle, |-\rangle\}$: les produits scalaires $\langle 3|1\rangle$, $\langle 3|2\rangle$, $\langle 4|1\rangle$ et $\langle 4|2\rangle$ sont clairement non nuls, ce qui prouve qu'on peut bel et bien construire un architecture en Λ de niveaux Zeeman.

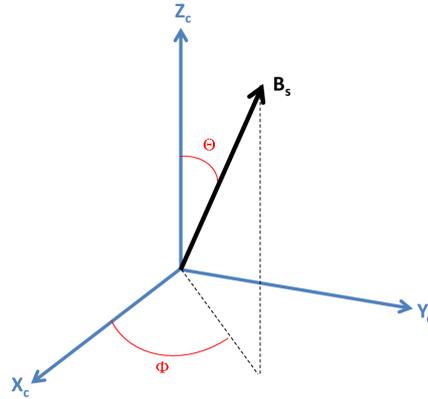


FIGURE 1.5 – Définition de l'orientation du champ magnétique statique dans le repère cristallin.

Repères liés au cristal, au site et au champ effectif

Nous avons défini plus haut différents repères et il est important de bien les distinguer.

- Le repère cristallin qu'on identifie au repère du laboratoire, dans lequel on décrit l'orientation des champs magnétiques extérieurs que l'expérimentateur applique au système. Par exemple le champ statique \mathbf{B}_s
- Puis pour chaque site occupé par un ion Tm^{3+} , on peut associer un repère local correspondant aux axes propres du tenseurs gyromagnétique. On exprime dans ce repère le champ magnétique effectif vu par l'ion Tm^{3+} du site considéré.

- Enfin, le repère lié au champ magnétique effectif \mathcal{R}_{eff} , d'axe \mathbf{u}_X , \mathbf{u}_Y et \mathbf{u}_Z . C'est un repère dont l'axe \mathbf{u}_Z est selon \mathbf{B}_{eff} , soit selon l'axe de quantification où le Hamiltonien \hat{H}_{Zne} est diagonal. Comme on le verra au deuxième chapitre, il représente l'axe autour duquel précesse le moment magnétique nucléaire défini dans l'expression (1.40), de l'ion Tm^{3+} du site en question.

L'orientation d'un repère lié au champ effectif dans le repère cristallin est donnée par l'orientation du champ effectif. On remarque immédiatement que cette l'orientation de ces repères peut être drastiquement distincte selon la classe de site étudiée. Par ailleurs, à l'intérieur même d'une classe de site, les repères peuvent être orientés différemment. En effet, la position des ions voisins autour de l'ion Tm^{3+} n'est pas rigoureusement la même d'un site à l'autre, ce qui engendre des valeurs de γ_x , γ_y , γ_z différentes. Ces différences conduisent à champ effectif légèrement différent. Tout se passe comme si ces ions subissaient un champ magnétique statique *inhomogène*. Nous détaillerons au chapitre suivant les conséquences de ce phénomène.

1.4.3 Cas d'un champ additionnel orthogonal au champ statique

On utilisera par la suite un champ magnétique radio-fréquence à résonance avec les spins nucléaires, perpendiculaire au champ statique \mathbf{B}_s . On se propose ici d'étudier par le calcul l'influence d'un tel champ dans le repère lié au champ effectif.

On considère un champ \mathbf{B}_\perp perpendiculaire à \mathbf{B}_s , que l'on prend selon \mathbf{X}_c . Dans le repère local attaché au site étudié, on note ses coordonnées : $\mathbf{B}_{\perp x}$, $\mathbf{B}_{\perp y}$ et $\mathbf{B}_{\perp z}$. Le Hamiltonien (1.31) devient alors :

$$\hat{H} = \hat{H}_{Zne} + \hat{H}_{int} \quad (1.47)$$

$$= -\hbar \left[\gamma_x B_x(\Theta, \Phi) \hat{I}_x + \gamma_y B_y(\Theta, \Phi) \hat{I}_y + \gamma_z B_z(\Theta, \Phi) \hat{I}_z \right] - \hbar \left[\gamma_x B_{\perp x} \hat{I}_x + \gamma_y B_{\perp y} \hat{I}_y + \gamma_z B_{\perp z} \hat{I}_z \right] \quad (1.48)$$

De même que dans l'expression (1.39), on introduit le champ effectif :

$$\mathbf{B}_{\perp eff} = \frac{\Delta_\perp}{\gamma_n} \frac{1}{\Delta_\perp} \begin{bmatrix} \gamma_x B_{\perp x} \\ \gamma_y B_{\perp y} \\ \gamma_z B_{\perp z} \end{bmatrix} = \frac{\Delta_\perp}{\gamma_n} \mathbf{b}_{\perp eff} = \frac{\Delta_\perp}{\gamma_n} \begin{bmatrix} m_\perp \\ n_\perp \\ l_\perp \end{bmatrix} \quad (1.49)$$

où $\Delta_\perp = \sqrt{\gamma_x^2 B_{\perp x}^2 + \gamma_y^2 B_{\perp y}^2 + \gamma_z^2 B_{\perp z}^2}$. On a alors :

$$\hat{H} = -\hbar \Delta \mathbf{b}_{eff} \cdot \hat{\mathbf{I}} - \hbar \Delta_\perp \mathbf{b}_{\perp eff} \cdot \hat{\mathbf{I}} \quad (1.50)$$

Le deux états qui nous intéresseront par la suite sont les deux niveaux Zeeman du fondamental exprimés dans l'expression (1.46) ainsi que les diverses superpositions de ces deux états. Dans la base propre de \hat{H}_{Zne} , le Hamiltonien \hat{H} s'écrit :

$$\hat{H} = \frac{\hbar}{2} \begin{bmatrix} \Delta_g + \mathbf{b}_{eff} \cdot \mathbf{b}_{\perp eff} & \Delta_\perp \frac{m_\perp(m_l - j_n) + n_\perp(n_l + j_m) - l_\perp(m^2 + n^2)}{\sqrt{m^2 + n^2}} \\ \Delta_\perp \frac{m_\perp(m_l + j_n) + n_\perp(n_l - j_m) - l_\perp(m^2 + n^2)}{\sqrt{m^2 + n^2}} & -\Delta_g - \mathbf{b}_{eff} \cdot \mathbf{b}_{\perp eff} \end{bmatrix} \quad (1.51)$$

Les termes non-diagonaux du Hamiltonien représentent le couplage entre les deux niveaux Zeeman E_2 et E_1 . Ils ont la dimension d'une pulsation. On peut montrer (voir Annexe) que le terme $\langle 2|\hat{H}|1 \rangle$ se simplifie :

$$\langle 2|\hat{H}|1 \rangle = C = |C| e^{j\phi_C} = \Delta_\perp \sqrt{1 - (\mathbf{b}_{eff} \cdot \mathbf{b}_{\perp eff})^2} e^{j\phi_C} \quad (1.52)$$

Le module du terme C correspond à la pulsation de Rabi que l'on verra plus en détail au prochain chapitre. On note que le couplage est maximal lorsque que le produit scalaire entre les champs \mathbf{b}_{eff} et $\mathbf{b}_{\perp eff}$ est nul. Lorsque ce n'est pas le cas, tout se passe comme si le champ statique conduisant à la levée de dégénérescence des niveaux Zeeman était modifié, du fait de l'anisotropie magnétique. Les termes diagonaux additionnels proportionnels à Δ_{\perp} seront donc à prendre en compte, à moins qu'on ne montre qu'ils sont négligeables devant Δ .

	État fondamental 3H_6	État excité 3^H_4
γ_y	$403 \pm 3\text{MHz/T}$	82 ± 3
γ_x/γ_y	< 0.05	0.21 ± 0.01
γ_z/γ_y	≤ 0.066	0.042 ± 0.01
$\sqrt{2\gamma_x^2 + \gamma_z^2}/\gamma_y$	0.066 ± 0.001	0.30 ± 0.01

TABLE 1.3 – Valeurs expérimentales des composantes du tenseur gyromagnétique dans le repère local R_{loc} mesurées par Anne Louchet

1.4.4 Dépendance angulaire du splitting et du terme de couplage

Au cours de sa thèse [17], Anne Louchet a effectué plusieurs mesures, résumées dans le tableau 1.3, afin de déterminer les éléments diagonaux γ_x , γ_y , γ_z du tenseur gyromagnétique. Malheureusement, seule une borne supérieure a été déterminé pour le rapport γ_x/γ_y . Cependant, une mesure du rapport de branchement du système en Λ permet de déduire indirectement le rapport $\gamma_x/\gamma_y = 0.0453$. On peut alors déterminer l'évolution du facteur gyromagnétique en fonction de l'orientation du champ magnétique. Sur les figures 1.6 et 1.7, les courbes ont été tracées pour un angle $\Phi = 45^\circ$. Pour cet angle, d'une part les ions des sites 3 et 5, ainsi que ceux des sites 4 et 6 se comportent constamment de la même manière sous un champ magnétique. Ils sont dit magnétiquement équivalents. D'autre part, les sites $\{3, 5\}$ et $\{4, 6\}$ ont un comportement symétrique par rapport à l'angle Θ .

Le module du terme de couplage déterminé plus haut dépend également de l'angle Θ , à travers l'expression du champ magnétique statique effectif unitaire \mathbf{b}_{eff} . On trace sur la figure 1.8, la fréquence de Rabi pour les différents sites, en fonction de l'orientation Θ , pour un angle $\Phi = 45^\circ$.

1.4.5 Rapport de branchement

L'efficacité d'un système à trois niveaux en Λ est caractérisée par le rapport de branchement R entre les probabilités de transition par un champ exciteur selon les deux branches du Λ . Le signal optique à enregistrer exploitera nécessairement une des deux transitions optiques de l'architecture en Λ . Par ailleurs, les protocoles de mémoire pour la lumière exploite l'autre transition, par exemple pour le contrôle du stockage ou encore pour l'étape de lecture. Les probabilités de transition doivent donc être suffisamment significatives. On définit le rapport de branchement de telle manière que le système idéal soit celui qui maximise le rapport de

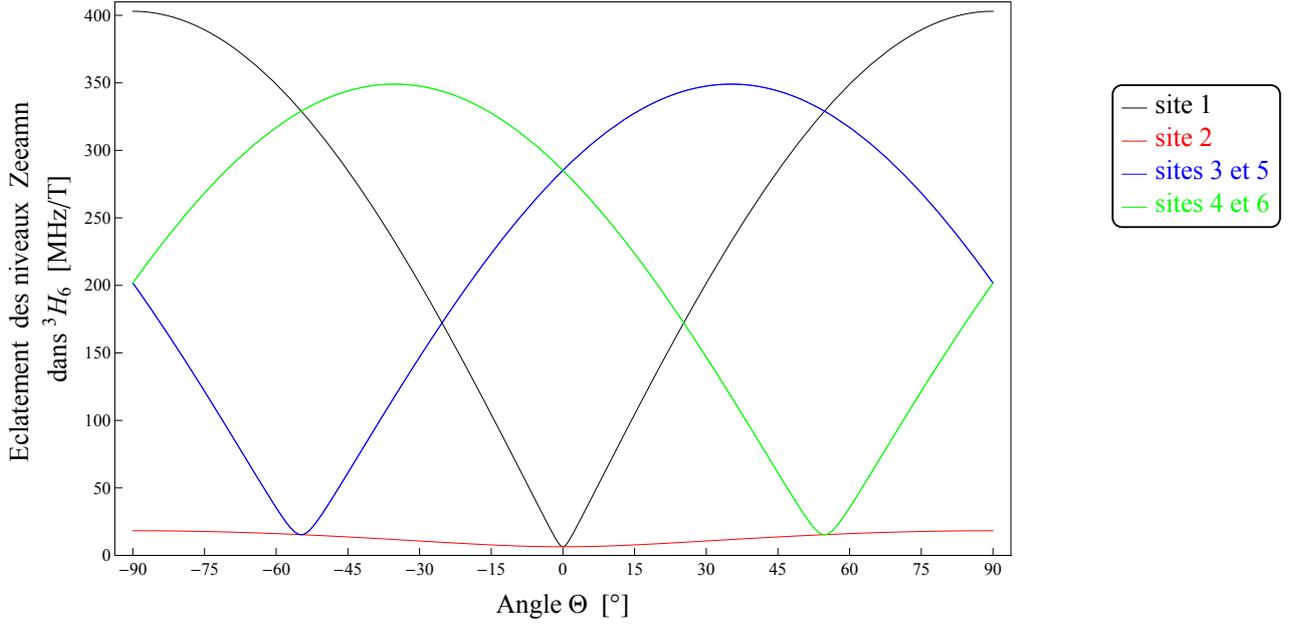


FIGURE 1.6 – Éclatement des niveaux Zeeman dans $^3H_6(0)$ pour un champ statique de 1 T, en fonction de l'angle Θ entre ce dernier et l'axe [001], pour un angle $\Phi = 45^\circ$. Courbes déterminées avec les valeurs expérimentales du tableau 1.3, avec $\gamma_x/\gamma_y = 0.0453$.

branchement. La valeur maximum de R sera donc l'unité, et correspondra à une probabilité de transition identique sur les deux branches du Λ . Si le système en Λ est construit sur les états $|1\rangle$, $|2\rangle$ et $|3\rangle$, schématisé en rouge sur la figure 1.10 on a, en reprenant les notations de l'expression (1.24) :

$$R_{123} = \frac{|\langle \phi_{e,3} | \hat{W}_{DE} | \phi_{f,2} \rangle|^2}{|\langle \phi_{e,3} | \hat{W}_{DE} | \phi_{f,1} \rangle|^2} = \frac{|\langle \psi_e | \hat{W}_{DE} | \psi_f \rangle \langle \chi_3 | \chi_2 \rangle|^2}{|\langle \psi_e | \hat{W}_{DE} | \psi_f \rangle \langle \chi_3 | \chi_1 \rangle|^2} = \frac{|\langle 3 | 2 \rangle|^2}{|\langle 3 | 1 \rangle|^2} \quad (1.53)$$

puisque les parties électroniques sont les mêmes pour les kets $|1\rangle$ et $|2\rangle$. Ainsi le rapport de branchement ne dépend que des parties nucléaires. Par ailleurs, les probabilités des transitions $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ et $|2\rangle \rightarrow |4\rangle$ sont identiques, de même que celles des transitions $|1\rangle \rightarrow |4\rangle$ et $|2\rangle \rightarrow |3\rangle$. En utilisant les expressions (1.46), on peut déterminer l'expression du rapport de branchement R_{123} pour chaque classe de site. On montre que :

$$R_{123} = \frac{\|\mathbf{b}_{eff,e} \times \mathbf{b}_{eff,g}\|}{(1 + \mathbf{b}_{eff,e} \cdot \mathbf{b}_{eff,g})^2} \quad (1.54)$$

Ils sont tracés sur la figure 1.9 pour $\Phi = 45^\circ$ en fonction de l'angle Θ .

La valeur maximale de $R = 0.130 \pm 0.015$ a été mesurée dans [18], correspondant à un angle $\Theta = -49.4^\circ$. Cette valeur a été mesurée pour les ions des sites 3 et 5. Les ions des sites 4 et 6 jouant un rôle symétrique, l'angle $\Theta = 49.4^\circ$ est aussi un maximum pour ceux-ci. Cette valeur est faible ; la transition croisée $|2\rangle \rightarrow |3\rangle$ initialement interdite n'est rendu que faiblement permise par l'effet Zeeman nucléaire exacerbé.

Pour toute application mettant en œuvre un protocole de stockage exploitant une conversion des cohérences optiques en cohérences de spin nucléaire dans un système en Λ , la configuration

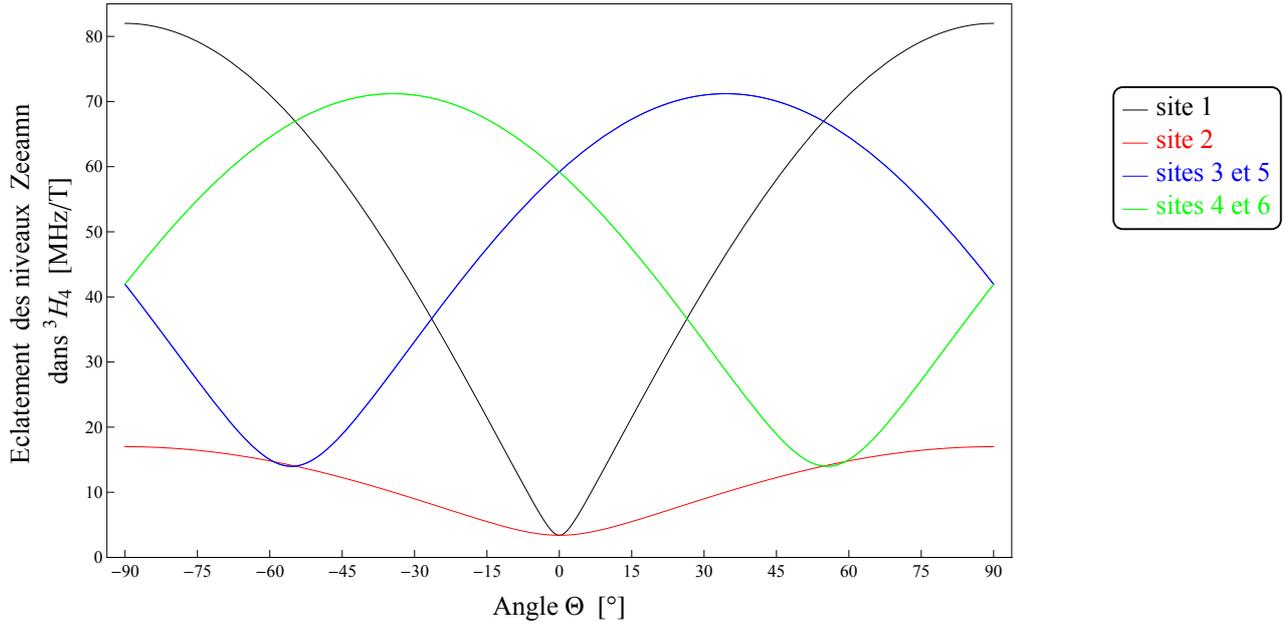


FIGURE 1.7 – Eclatement des niveaux Zeeman dans ${}^3H_4(0)$ pour un champ statique de 1 T, en fonction de l'angle Θ entre ce dernier et l'axe $[001]$, pour un angle $\Phi = 45^\circ$. Courbes déterminées avec les valeurs expérimentales du tableau 1.3, avec $\gamma_x/\gamma_y = 0.0453$.

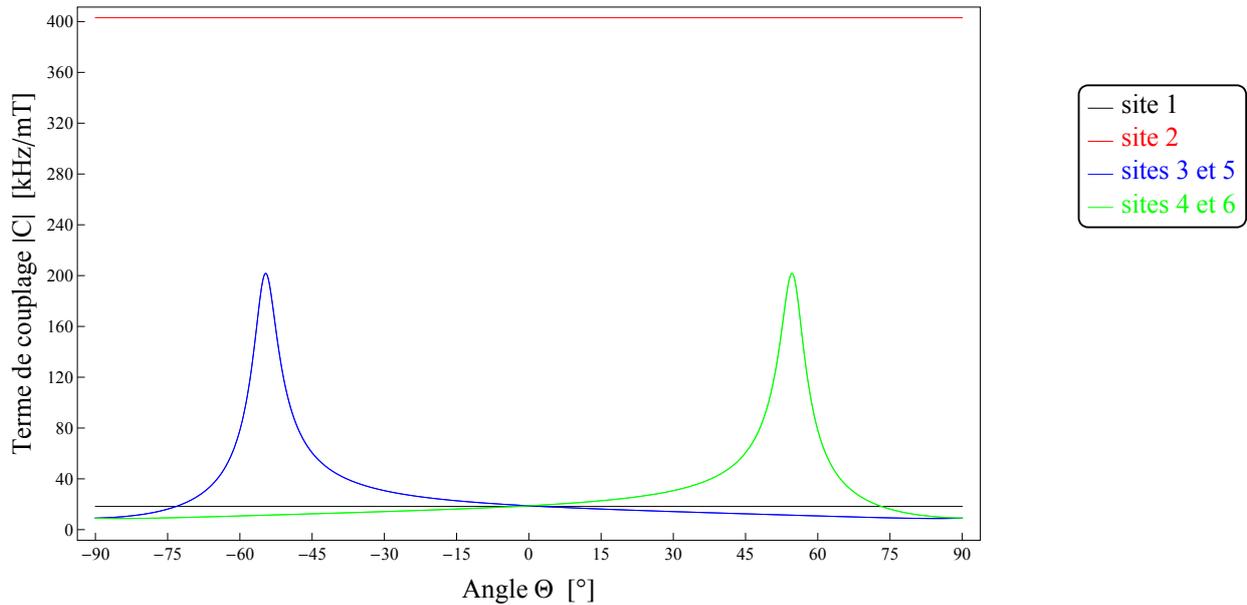


FIGURE 1.8 – Module du terme de couplage en présence d'un champ perpendiculaire au champ statique, en fonction de l'angle Θ , pour $\Phi = 45^\circ$. On a utilisé les valeurs expérimentales du tableau 1.3. Là encore, les courbes diffèrent selon la classe de site.

angulaire du cristal se devra d'être :

$$\Theta = \pm 49.4^\circ \qquad \Phi = 45^\circ \qquad (1.55)$$

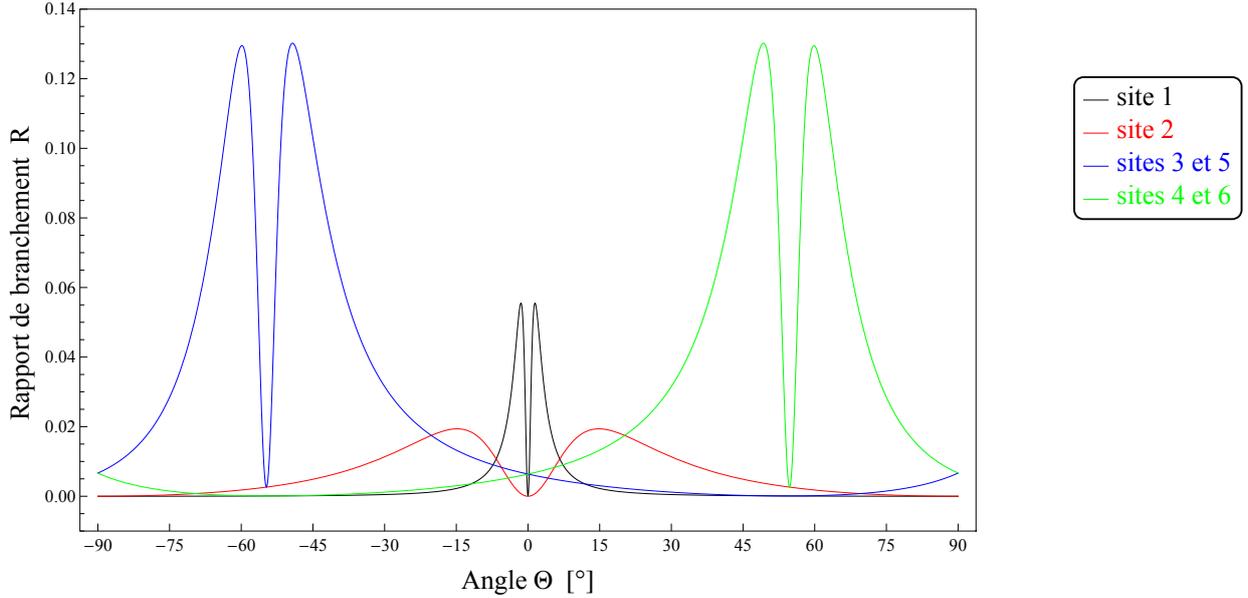


FIGURE 1.9 – Rapports de branchement pour les différentes classes de site, en fonction de l’angle Θ et pour un angle $\Phi = 45^\circ$. Courbes déterminées avec les valeurs expérimentales du tableau 1.3, avec $\gamma_x/\gamma_y = 0.0453$.

1.4.6 Transitions optique et de spin du système en Λ

La relative faible valeur du rapport de branchement incite à distinguer qualitativement les deux transitions $|1\rangle\text{--}|3\rangle$ et $|2\rangle\text{--}|3\rangle$: la première, directe, sera dite *forte*, la seconde, croisée, sera dite *faible*. Le niveau excité d’énergie E_3 de la transition forte se situe à 12604.32 cm^{-1} . Celui-ci a une durée de vie d’environ $800\ \mu\text{s}$ [19]. Bien qu’il puisse relaxer radiativement vers le niveau fondamental 3H_6 , le niveau excité d’énergie E_3 se désexcite préférentiellement vers le niveau 3F_4 par émission multiphonon, en passant par le niveau 3H_5 de courte durée de vie [20]. Le niveau métastable 3F_4 se désexcite radiativement vers le niveau fondamental 3H_6 . En pratique, on considérera les niveaux 3H_5 et 3F_4 comme un même niveau relais, de durée de vie d’environ 10 ms. La durée de vie des cohérences est de l’ordre de la centaine de μs [21].

La transition entre les niveaux d’énergie propres E_1 et E_2 , dite de spin, est ajustable par intensité du champ externe statique \mathbf{B}_s . Elle est typiquement dans nos expériences de l’ordre de la dizaine de mégahertz.

1.5 Conclusion

Au cours de ce chapitre, nous avons illustré la manière dont on pouvait construire un système en Λ des niveaux d’énergie d’un ion Tm^{3+} inséré dans un cristal YAG. La répulsion coulombienne, le couplage spin-orbite et le champ cristallin lèvent complètement la dégénérescence électronique des niveaux d’énergie de l’ion libre. L’application d’un champ magnétique externe permet de lever la dégénérescence nucléaire de chaque niveau électronique Stark, donnant naissance à deux niveaux Zeeman.

L’anisotropie du tenseur gyromagnétique $\bar{\gamma}$, ainsi que sa dépendance en $|\hat{\mathbf{J}}|$ rendent possible la construction d’un système en Λ . Nous avons explicité un tel système basé sur les deux

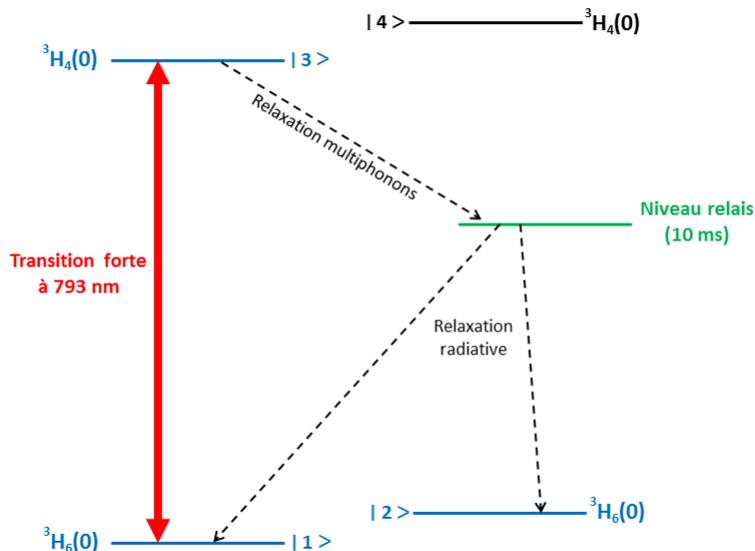


FIGURE 1.10 – Les niveaux d’énergie principaux de l’ion Tm^{3+} . Le système en Λ est basé sur les trois niveaux Zeeman en bleu. L’écart entre les deux niveaux Zeeman du fondamental est de l’ordre de 15 MHz dans nos expériences. On a indiqué par les flèches en pointillé, les mécanismes principaux de relaxation.

niveaux Zeeman issus du niveau Stark du fondamental ${}^3H_6(0)$, et sur un des deux niveaux Zeeman issus du niveau Stark excité ${}^3H_4(0)$. Le rapport de branchement de ce système en Λ dépend de l’orientation du champ magnétique statique par rapport au cristal, mais également des sites de substitution considérés. En effet, nous avons montré que ces derniers étaient orientationnellement inéquivalents, conduisant à grouper les sites par classe au nombre de six.

L’orientation particulière ($\Theta = -49.4^\circ, \Phi = 45^\circ$) du champ statique par rapport aux axes cristallins permet d’optimiser le rapport de branchement R pour les ions des sites 3 et 5, et de nous rapprocher au mieux des conditions requises des protocoles de stockage de l’information. C’est dans cette configuration particulière que nous nous plaçons.

Nous allons aborder au chapitres suivants, la manière dont est stockée l’information sur le signal dans les ions Tm^{3+} , et les techniques mises en œuvre pour la préserver le plus longtemps possible.

Chapitre 2

Remise en phase des cohérences de spin nucléaire

2.1 Différentes approches de la description de l'ion Tm^{3+}

La description quantique d'un Tm^{3+} inséré en matrice cristalline montre l'importance d'une grandeur physique quantique : l'observable spin nucléaire \hat{I} . L'ion Tm^{3+} sous un champ magnétique peut se trouver dans trois types d'états différents (normés) du spin nucléaire :

- un des deux états propres du Hamiltonien H_{Zne} : $|\psi\rangle = \alpha_0 |2\rangle$ ou $|\psi\rangle = \alpha_0 |1\rangle$, α_0 étant un nombre complexe de module unité. Sous réserve qu'aucune perturbation ne survienne, le système reste indéfiniment dans cet état.
- une superposition incohérente d'états propres, décrivant un mélange statistique des états propres $|2\rangle$ et $|1\rangle$. Cette superposition incohérente s'écrit via un opérateur d'état ρ d'expression

$$\rho = \begin{bmatrix} a_0 & 0 \\ 0 & b_0 \end{bmatrix} \quad (2.1)$$

où a_0 et b_0 , réels, sont les poids des états $|2\rangle$ et $|1\rangle$ respectivement, et satisfaisant la relation $a_0 + b_0 = 1$.

- une superposition cohérente d'états propres d'expression générale

$$|\psi\rangle = \alpha_0 |2\rangle + \beta_0 |1\rangle = e^{i\phi_{\alpha_0}} \left(|\alpha_0| |2\rangle + e^{i(\phi_{\beta_0} - \phi_{\alpha_0})} |\beta_0| |1\rangle \right) \quad (2.2)$$

Lorsque l'ion Tm^{3+} est isolé, alors la représentation de Schrödinger est strictement équivalente à celle de la matrice densité, et on peut alors écrire l'opérateur d'état

$$\rho = \begin{bmatrix} |\alpha_0|^2 & |\alpha_0| |\beta_0| e^{i(\phi_{\alpha_0} - \phi_{\beta_0})} \\ |\alpha_0| |\beta_0| e^{-i(\phi_{\alpha_0} - \phi_{\beta_0})} & |\beta_0|^2 \end{bmatrix} \quad (2.3)$$

les coefficients complexes α_0 et β_0 représentant les amplitudes de probabilités des états $|1\rangle$ et $|2\rangle$ respectivement, et vérifiant $|\alpha_0|^2 + |\beta_0|^2 = 1$. Il existe une *relation de phase* entre les deux états, qui correspond au terme de phase relative $e^{i(\phi_{\beta_0} - \phi_{\alpha_0})}$ entre $|1\rangle$ et $|2\rangle$.

Le dernier type d'état est digne d'intérêt dans la mesure où il représente un qubit de la matière, donc apte à recevoir l'information provenant d'un qubit de la lumière. Nous allons adopter une description plus complète de ces états de superposition à travers l'opérateur d'état.

2.1.1 L'ion Tm^{3+} isolé

L'opérateur d'état ou opérateur densité du système s'écrit :

$$\hat{\rho} = |\psi\rangle\langle\psi| = \begin{bmatrix} \rho_{22} & \rho_{21} \\ \rho_{12} & \rho_{11} \end{bmatrix} \quad (2.4)$$

Les éléments diagonaux ρ_{11} et ρ_{22} décrivent la probabilité d'être dans l'état $|1\rangle$ et $|2\rangle$ respectivement, ou encore les populations des niveaux Zeeman E_1 et E_2 . Les éléments non-diagonaux ρ_{12} et ρ_{21} décrivent la cohérence entre les états propres $|1\rangle$ et $|2\rangle$. Cette cohérence de spin ou Zeeman (pour reprendre la terminologie du premier chapitre) indique si l'ion Tm^{3+} est dans une superposition d'états Zeeman et de quelle manière cette superposition est construite.

Le comportement dans le temps d'un spin nucléaire soumis à un champ magnétique est donné par l'équation d'évolution (équation de Liouville-Von Neumann) :

$$i\hbar \frac{d}{dt} \hat{\rho}(t) = [H_{Zne}, \rho(t)] \quad (2.5)$$

En utilisant les propriétés des matrices de Pauli, on peut réécrire l'équation d'évolution sous la forme (voir détails dans l'annexe 2) :

$$\hbar \frac{d}{dt} \mathbf{b}(t) = \mathbf{c} \times \mathbf{b} \Leftrightarrow \frac{d}{dt} (\hbar \mathbf{b}(t)) = \gamma_n \mathbf{B}_{eff} \times (\hbar \mathbf{b}(t)) \quad (2.6)$$

où \mathbf{b} est le vecteur de Bloch défini par :

$$\mathbf{b} = \begin{bmatrix} 2\Re(\rho_{21}) \\ -2\Im(\rho_{21}) \\ \rho_{22} - \rho_{11} \end{bmatrix} \quad (2.7)$$

et \mathbf{c} un vecteur de composantes :

$$\mathbf{c} = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ \hbar\gamma_n B_{eff} \end{bmatrix} \quad (2.8)$$

On retrouve l'équation de précession d'un moment magnétique classique autour du champ magnétique, ici B_{eff} (voir figure 2.1). Ainsi, à tout spin nucléaire d'un ion Tm^{3+} est associé un moment magnétique nucléaire $\boldsymbol{\mu}$ proportionnel au vecteur de Bloch ; ce dernier décrivant la valeur moyenne de l'observable $\hat{\mathbf{I}}$ (spin nucléaire) :

$$\boldsymbol{\mu} = \hbar\gamma_n \mathbf{b} = \hbar\gamma_n \text{Tr}(\rho \hat{\mathbf{I}}) \quad (2.9)$$

Cette grandeur physique permet la jonction entre la description quantique de la matière requise pour les ions Tm^{3+} , et la description classique des divers champs électromagnétiques mais aussi des grandeurs physiques accessibles à l'expérience. L'information sur la cohérence de spin se trouve ainsi dans la composante transversale $\boldsymbol{\mu}_\perp$ du moment magnétique nucléaire, celle donc orthogonale au champ effectif \mathbf{B}_{eff} .

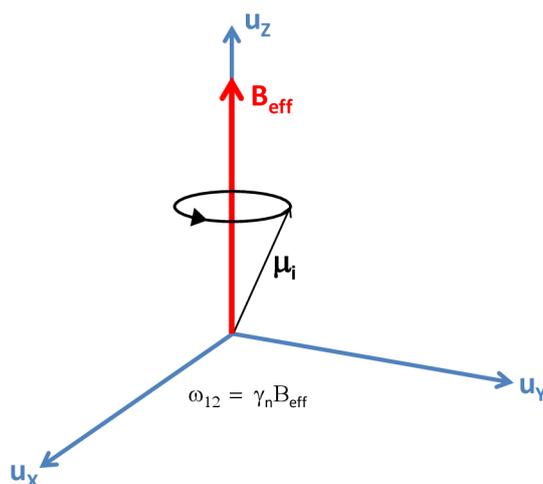


FIGURE 2.1 – Précession du moment magnétique nucléaire associé à l'ion Tm^{3+} autour du champ magnétique B_{eff} .

2.1.2 L'ion Tm^{3+} couplé à un environnement

Dans notre système, l'ion Tm^{3+} peut interagir avec les phonons (processus d'Orbach, processus Raman), mais aussi avec ses proches voisins, principalement les ions Al^{3+} . L'ion Tm^{3+} ne peut plus alors être considéré comme isolé. L'équation de Schrödinger étant valable pour un système isolé, l'opérateur d'état $\hat{\rho}$ de ce dernier décrit alors l'ensemble ion Tm^{3+} + environnement. Pour obtenir l'évolution de l'ion Tm^{3+} seul, il faut effectuer la valeur moyenne de $\hat{\rho}$ sur les degrés de liberté de l'environnement.

On a donc deux situations bien distinctes. Lorsque l'ion Tm^{3+} est isolé, l'opérateur d'état est construit à partir du vecteur d'état de l'ion. Au contraire, lorsque l'ion Tm^{3+} est couplé à un environnement, l'opérateur d'état est issu de la réduction de l'opérateur densité de l'ensemble ion + environnement, en effectuant la trace partielle. La principale conséquence de cette réduction est l'apparition d'une relaxation, caractérisée par un temps T_2 pour les cohérences de spins nucléaires, et un temps T_1 pour les populations des niveaux d'énergie.

Les interactions avec l'environnement affectent la transition de spin nucléaire. La fréquence de transition n'est plus rigoureusement définie, elle l'est à la largeur homogène Γ_h près. Cette dernière est intimement liée au temps de relaxation des cohérences de spins nucléaires via la relation :

$$\Gamma_h = \frac{1}{\pi T_2} \quad (2.10)$$

qui s'exprime sous cette forme en Hz. Pour des températures inférieures à 2 K, les processus liés aux vibrations du réseau sont négligeables : l'élargissement homogène est donc principalement dû aux interactions ion-ion. La décroissance de la cohérence de spin nucléaire se révélera sur la composante transversale du moment magnétique nucléaire, qui deviendra négligeable après un temps de l'ordre de quelques T_2 .

Une cohérence entre deux niveaux d'énergie ne peut exister que si la population de ces derniers est non-nulle. Ainsi, la durée de vie d'une cohérence de spin est ultimement limitée

par T_1 , qui est également la durée de vie du niveau excité de la transition Zeeman. On a :

$$T_2 \leq 2T_1 \quad (2.11)$$

2.1.3 L'ensemble d'ions Tm^{3+}

Définition de l'aimantation

Le signal optique sera enregistré sur un grand nombre N d'ion Tm^{3+} , ce dernier étant de l'ordre de 10^{11} dans notre système. Le dopage du cristal YAG en ion Tm^{3+} étant très faible (un ion Tm^{3+} substitué pour mille ions Y^{3+}), les ions Tm^{3+} sont considérés comme indépendants les uns des autres. On néglige donc les interactions entre eux, la description de l'ensemble \mathcal{M} de spins nucléaires en est ainsi facilitée. Lorsqu'on considère un ensemble, on ne peut pas mesurer le moment magnétique nucléaire individuellement. la seule grandeur physique macroscopique accessible à l'expérience est le moment magnétique total, qu'on appelle aimantation nucléaire \mathbf{A} . L'aimantation nucléaire \mathbf{A} du système s'exprime à tout instant t comme la somme des moments magnétiques nucléaires individuels $\boldsymbol{\mu}$:

$$\mathbf{A}(t) = \sum_i^N \boldsymbol{\mu}_i(t) \quad (2.12)$$

Cette aimantation nucléaire totale n'est qu'autre que la somme des aimantations nucléaires produites par chaque classe de site : les moments magnétiques nucléaires individuels de chaque ion Tm^{3+} d'un site 1 donnera une aimantation nucléaire, idem pour les moments magnétiques des sites 2, 3, 4, 5 et 6.

C'est cette aimantation nucléaire propre à un classe un site à laquelle on s'intéressera par la suite. A l'intérieur du repère lié au champ magnétique effectif d'un site, on peut décomposer l'aimantation nucléaire en deux partie :

- l'aimantation nucléaire longitudinale, notée \mathbf{A}_{\parallel} , parallèle au champ magnétique effectif
- l'aimantation nucléaire transversale, notée \mathbf{A}_{\perp} , perpendiculaire au champ magnétique effectif

Équilibre thermique

A l'équilibre thermique, l'aimantation nucléaire est donc la somme des moments magnétiques nucléaires eux-même à l'équilibre, donc alignés selon leurs champs magnétiques effectifs \mathbf{B}_{eff} . Dans ce cas, l'aimantation nucléaire est alignée également selon le champ magnétique effectif du site en question. A l'équilibre, elle se décrit uniquement grâce aux populations N_1 et N_2 , qui correspondent aux moyennes des populations, respectivement des niveaux E_1 et E_2 des matrices densités des ions Tm^{3+} . La statistique de Boltzmann donne le rapport de ces populations à l'équilibre à la température T . A 2 K et pour un splitting $\Delta_g = 15$ MHz, on a

$$\frac{\rho_{22}}{\rho_{11}} = \exp\left(-\frac{h\Delta_g}{k_B T}\right) \approx 0.9996 \quad (2.13)$$

où k_B est la constante de Boltzmann et h la constante de Plank. Les deux niveaux d'énergie sont quasiment également peuplés, l'aimantation nucléaire \mathbf{A}_{\parallel} est donc quasiment nulle à l'équilibre.

Par la suite, on considérera l'aimantation nucléaire nulle dans le cristal à l'équilibre thermique, et les niveaux d'énergie E_1 et E_2 également peuplés.

Aimantation nucléaire dans le cristal et relaxation

Avec ce qu'il vient d'être dit, la présence d'une aimantation nucléaire indique une situation hors-équilibre du système. L'aimantation nucléaire se compose dans le cas général, de la composante longitudinale et transversale. Lorsqu'on laisse le système évoluer librement, l'aimantation nucléaire tend vers son état à l'équilibre.

Une composante longitudinale de l'aimantation nucléaire non nulle signifie que le rapport de population N_1/N_2 n'est plus égal à l'unité. La relaxation de cette composante qui rétablit la valeur d'équilibre de cette dernière s'effectue sur une échelle de temps T_1 . Ce processus autorise un échange d'énergie du système, c'est à dire les ions Tm^{3+} actifs, avec l'extérieur.

Une composante transversale de l'aimantation transversale non nulle signifie simultanément que :

- une partie des spins nucléaires des ions Tm^{3+} (d'une même classe de site) sont individuellement dans une superposition d'état.
- les moments magnétiques nucléaires dont la composante transversale est non nulle s'ajoutent de manière constructive.

L'aimantation transversale est animée d'un même mouvement de précession que les moments magnétiques nucléaires autour du champ magnétique effectif. La relaxation de l'aimantation transversale qui ramène son module à zéro, s'effectue en un temps T_2 . A l'issue de ce processus qui se réalise sans transfert d'énergie vers l'extérieur, l'ensemble de spins nucléaires peut se décrire à nouveau uniquement avec les populations N_1 et N_2 .

On montrera expérimentalement par la suite que $T_2 < T_1$, comme c'est le cas dans les cristaux dopés aux ions de terres rares [15].

2.1.4 Objectifs

Éléments contenant l'information stockée dans un ensemble de spins nucléaires

Comme mentionné dans l'introduction, l'état quantique d'un photon, ou plus généralement d'un signal optique, est *distribué* ou encore réparti sur l'ensemble des spins nucléaires. On a ainsi besoin de tout le monde pour reformer et récupérer ainsi l'état du photon lors de la lecture. Une fois l'enregistrement effectué, chaque moment magnétique a une orientation initiale et un module initial bien précis à l'intérieur de son repère lié au champ effectif \mathcal{R}_{eff} . Plus précisément, lorsque les moments magnétiques nucléaires ont une composante longitudinale nulle, alors leur module est donné à partir de (2.9) par :

$$|\boldsymbol{\mu}| = 2\hbar\gamma_n |\rho_{21}| \quad (2.14)$$

tandis que leur orientation dans le plan horizontal (plan orthogonal au champ magnétique effectif) est donnée par la phase de ρ_{12} (2.7). On peut alors remarquer que l'information contenue dans l'ensemble d'ion se situe à deux niveaux :

- au niveau d'un moment magnétique individuel, chacun ayant un module $|\rho_{21}|$ particulier.
- au niveau de l'ensemble, les orientations initiales de chaque moment magnétique définissant des *relations de phase initiales* bien précises entre chaque moment magnétique, conditionnant également l'aimantation.

La phase initiale de chaque moment magnétique individuel est également une donnée importante puisqu'elle est le résultat de l'interaction entre la lumière et l'ion Tm^{3+} . Celle-ci est définie

à l'intérieur du repère \mathcal{R}_{eff} de chaque moment magnétique nucléaire. Dans cette thèse, on considère que c'est l'angle que fait ce dernier avec l'axe \mathbf{u}_X du repère lié au champ effectif en question. On peut alors définir un déphasage relatif initial entre les différents moments magnétiques nucléaires.

Élargissement inhomogène de la transition de spin nucléaire

On prépare le système de telle manière que l'enregistrement crée une composante transversale initiale pour chaque moment magnétique nucléaire appartenant à une même classe de site, orienté selon \mathbf{u}_X . Lorsqu'ils évoluent librement, ces moments magnétiques nucléaires précessent autour de leur champ effectif à leur pulsation de Larmor $\omega_{12} = \gamma_n |\mathbf{B}_{eff}|$. Il s'avère cependant, qu'à l'intérieur d'une même classe de site, la pulsation de Larmor diffère d'un ion à l'autre, car leurs champs effectifs ne sont pas rigoureusement identiques. En effet, la réalité du cristal entraîne un positionnement différent des ions voisins d'un site à l'autre, modifiant ainsi différemment les valeurs des éléments diagonaux du tenseur gyromagnétique. Par ailleurs, le champ magnétique statique \mathbf{B}_s peut présenter quelques inhomogénéités spatiales tant en module qu'en orientation, altérant *in fine* la pulsation de Larmor. Ce phénomène porte le nom d'élargissement inhomogène de la transition Zeeman de l'ensemble de spins nucléaires.

Les moments magnétiques nucléaires ne vont donc pas précesser à la même vitesse angulaire dans leurs repères respectifs \mathcal{R}_{eff} : après un certain temps d'évolution, les relations de phases ne seront plus celles initiales. L'aimantation nucléaire résultante tendra vers zéro, bien que les moments magnétiques nucléaires individuels soient encore présents, du fait que ces derniers s'ajoutent de manière destructive.

Comme on vient de le voir, les champs magnétiques effectifs perçus par chaque ion Tm^{3+} d'une même classe de site ne sont pas orientés de la même manière. Les plans horizontaux des repères \mathcal{R}_{eff} ne sont pas donc pas superposés et présentent une certaine dispersion angulaire. L'aimantation nucléaire transversale n'est alors pas une simple somme des composantes transversales des moments magnétiques nucléaires.

En toute rigueur, l'aimantation ne précesse pas autour de \mathbf{B}_{eff} . On peut cependant considérer qu'à l'équilibre, l'aimantation est alignée selon un champ magnétique résultant. On définit alors à partir de ce dernier les composantes longitudinales et transversales de l'aimantation, et donc les mécanismes de relaxation évoqués dans la sous-section précédente. Le déphasage entre deux spins nucléaires s'interprète alors comme ceci : lorsque le spin M, initialement selon \mathbf{u}_X de son repère, a réalisé une précession complète dans son \mathcal{R}_{eff} après un temps t , le spin N initialement selon \mathbf{u}_X de son repère n'a pas encore fini la sienne ou bien en a déjà commencé une autre après le même temps t .

A partir de la mesure expérimentales de l'élargissement inhomogène Δ_{inh} ainsi que de l'expression du splitting Δ_g , on peut déterminer la dispersion angulaire des champs effectifs par rapport à la moyenne de l'ensemble des champ effectif. Notre estimation donne une valeur inférieure à 0.2° .

On peut partir du principe que cette dispersion angulaire est suffisamment faible, et considérer qualitativement alors un même repère effectif pour tous les ions Tm^{3+} appartenant à un même site. Dans ce cas, on reste en accord avec le développement effectué à la sous-section précédente pour l'aimantation nucléaire **A**.

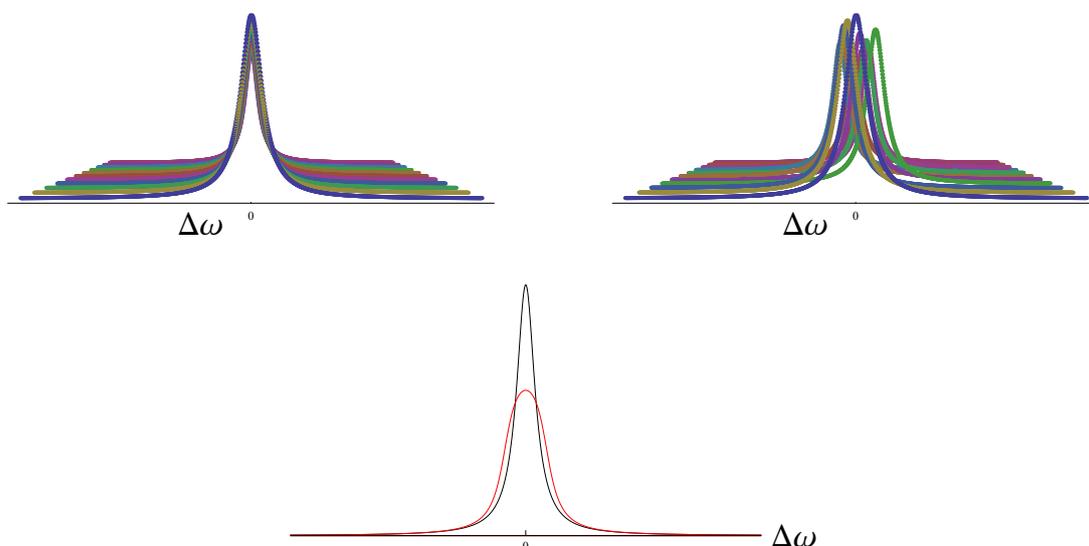


FIGURE 2.2 – Largeur de la transition Zeeman de l'ensemble d'ions. A gauche, cas où tous les ions ont la même transition de spin. A droite, le cas réel où la fréquence de Larmor diffère d'un ion à l'autre. Au milieu, la courbe rouge représente la transition inhomogènement élargie, comparée à la courbe en noire simplement homogènement élargie représentant la situation idéale.

Les fréquences de transitions des spins constituant l'ensemble \mathcal{M} sont en réalité réparties sur un large intervalle. Ainsi, l'ensemble d'ions Tm^{3+} voit sa raie de transition inhomogènement élargie, comme illustré sur la figure 2.2. Cette largeur inhomogène Δ_{inh} est corrélée à une échelle de temps $1/\Delta_{\text{inh}}$ traduisant le temps de déphasage des spins nucléaires. Pour l'orientation du champ \mathbf{B}_s optimisant le rapport de branchement, Δ_{inh} est de l'ordre de 500 kHz, ce qui conduit à un temps $1/\Delta_{\text{inh}}$ très court, de l'ordre de quelques microsecondes. Ce mécanisme accélère la réduction de l'aimantation nucléaire transversale, et est donc un inconvénient dont il faut se débarrasser, avant d'aller plus loin.

S'affranchir efficacement de l'élargissement inhomogène

Le problème posé par l'élargissement inhomogène a déjà été résolu par Anne Louchet. Plus concrètement, elle a démontré expérimentalement lors de sa thèse [22] comment convertir une cohérence optique en cohérence de spin et s'affranchir de cet élargissement inhomogène de la transition $|1\rangle-|2\rangle$, en utilisant la technique des échos Raman [23] dans le même système que le nôtre. Cependant, la manipulation des ions exclusivement par impulsions optiques en excitant simultanément les transitions $|1\rangle-|3\rangle$ et $|2\rangle-|3\rangle$ n'est pas satisfaisante dans le cadre de la réalisation d'une mémoire car l'efficacité du processus est fortement limitée par l'émission spontanée et par le fait que seule une partie des ions actifs est réellement utilisée. Dans ce chapitre, on montrera désormais comment optimiser ce processus, principalement en veillant à récupérer l'intégralité de l'aimantation initiale des ions actifs. Cette optimisation passera par l'application de champs radio-fréquences, permettant une excitation directe de la transition $|1\rangle-|2\rangle$ des ions, cette dernière étant de l'ordre de la dizaine de mégahertz dans notre système.

2.2 Résonance magnétique nucléaire du noyau de Tm^{3+} dans le YAG

La manipulation du spin nucléaire d'un ion peut se réaliser en exploitant la résonance magnétique nucléaire (RMN) du noyau de l'ion Tm^{3+} . Le phénomène de résonance magnétique nucléaire a été découvert par Isidore Isaac Rabi en 1938 [24, 25]. Felix Bloch [26, 27] et Edward Mills Purcell [28] ont jeté les bases de la technique de détection du magnétisme nucléaire par induction magnétique en 1946. Le principe de base peut se décrire par la physique classique.

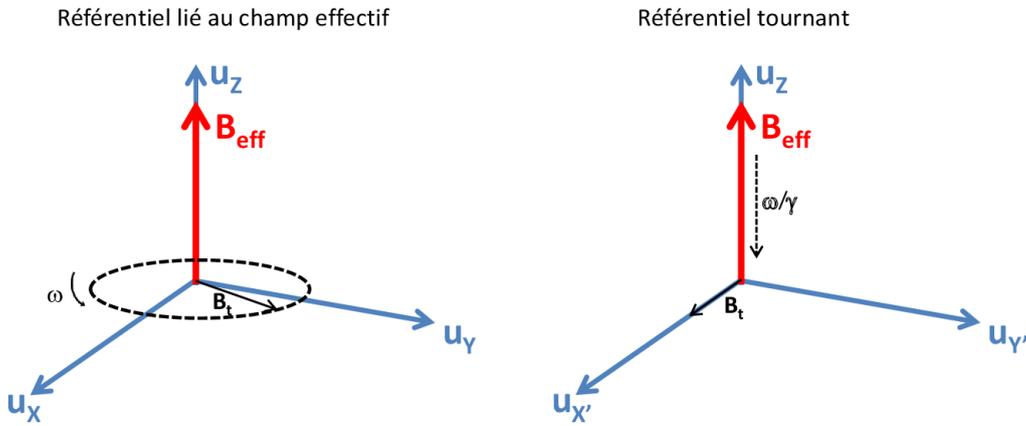


FIGURE 2.3 – Représentation des différents champs magnétiques dans le référentiel du laboratoire et le référentiel tournant.

La situation de départ est celle d'un moment magnétique nucléaire μ soumis à un champ magnétique \mathbf{B}_{eff} aligné selon l'axe \mathbf{u}_z du repère \mathcal{R}_{eff} . Ce moment magnétique effectue une précession autour de \mathbf{B}_{eff} à la pulsation $\omega_{12} = \gamma_n |\mathbf{B}_{eff}|$. On applique alors un champ magnétique tournant \mathbf{B}_t à la pulsation ω dans le plan orthogonal à \mathbf{B}_{eff} . Le champ total qui s'exerce sur μ est $\mathbf{B}_{eff} + \mathbf{B}_t$. Dans le référentiel tournant à la vitesse angulaire ω (figure 2.3), dont l'axe $\mathbf{u}_{x'}$ est dirigé selon \mathbf{B}_t , le moment magnétique nucléaire μ subit alors le champ magnétique \mathbf{B}_e fixe d'expression :

$$\mathbf{B}_e = \left(|\mathbf{B}_{eff}| - \frac{\omega}{\gamma_n} \right) \mathbf{u}_z + |\mathbf{B}_t| \mathbf{u}_{x'} \quad (2.15)$$

Ainsi, dans le référentiel tournant, en posant $\Omega = \gamma_n B_t$, le moment magnétique nucléaire précesse à la vitesse angulaire $a = \gamma_n |\mathbf{B}_e| = \sqrt{(\omega_{12} - \omega)^2 + \Omega^2}$ autour de \mathbf{B}_e , ce dernier faisant un angle β avec le champs statique \mathbf{B}_{eff} donné par :

$$\tan \beta = \frac{\Omega}{\omega_{12} - \omega} \quad \cos \beta = \frac{\omega_{12} - \omega}{a} \quad \sin \beta = \frac{\Omega}{a} \quad (2.16)$$

Le mouvement de μ est obtenu en composant ce mouvement de précession avec la rotation du référentiel tournant par rapport au référentiel \mathcal{R}_{eff} , d'angle ωt . Lorsque le moment magnétique nucléaire est initialement aligné selon \mathbf{B}_{eff} , l'angle α entre les deux vecteurs sera donné à l'instant t par :

$$\cos \alpha = 1 - 2 \sin^2 \beta \sin^2\left(\frac{1}{2}at\right) \quad (2.17)$$

L'expression (2.16) montre que l'angle β peut prendre un grand nombre de valeurs, et notamment atteindre la valeur de $\pi/2$ même si $B_t \ll B_s$. Dans un pareil cas, l'angle β prend des valeurs appréciables uniquement lorsque ω_{12} est égal à (ou voisin de) ω : c'est un phénomène de résonance. Le champ magnétique tournant est alors susceptible de faire tourner le moment magnétique d'un angle quelconque qui dépend at (Eq. 2.17).

A résonance, on a $\sin \beta = 1$ et $a = \Omega$ nommée pulsation de Rabi. Deux situations particulières sont dignes d'intérêt pour nos expériences :

- le produit $at = \Omega t$ vaut $\pi/2$: le moment magnétique initialement selon \mathbf{B}_{eff} est après t dans le plan horizontal, orthogonal à \mathbf{B}_{eff} .
- le produit $at = \Omega t$ vaut π : le moment magnétique initialement selon \mathbf{B}_{eff} est après t selon $-\mathbf{B}_{eff}$.

Dans les deux situations, on peut voir le produit Ωt comme l'aire d'une impulsion magnétique carrée d'amplitude Ω et de durée t . Regardons dès à présent comment la résonance magnétique nucléaire est mise en œuvre pour contrôler les ions Tm^{3+} dans le YAG.

2.3 Echo de spins

Comme mentionné plus haut, le déphasage inhomogène des spins nucléaires résultant de leur précession à des vitesses angulaires différentes conduit à annuler l'aimantation transversale de l'ensemble d'ions. Ce déphasage inhomogène est déterministe, c'est-à-dire qu'à tout instant il est possible de définir la position des spins nucléaires et donc à tout instant les différences de phase entre chacun d'entre eux. Erwin Hahn a montré en 1950 comment remettre les spins nucléaires en phase, et donc récupérer l'aimantation transversale initiale ; en appliquant un séquence dite d'écho de spins ou encore écho de Hahn [29].

Le principe est le suivant : les moments magnétiques nucléaires initialement alignés dans le plan perpendiculaire au champ magnétique effectif évoluent librement en précessant à leur propre pulsation de Larmor ω_{12} . A tout instant t , la phase accumulée par chaque moment magnétique nucléaire μ est donnée par le produit $\omega_{12}t$. L'idée consiste à modifier cette phase accumulée en appliquant un champ radio-fréquence à résonance avec les moments magnétiques nucléaires, pour que ces derniers retrouvent leur configuration d'origine après un certain temps d'évolution libre. Nous allons illustrer le principe d'écho de spins à l'aide d'impulsions carrées.

Une impulsion radio-fréquence vue par un ion Tm^{3+} est caractérisée par deux paramètres : la durée τ_p de l'impulsion correspondant au temps pendant lequel l'ion interagit avec le champ radio-fréquence ; et la pulsation de Rabi $\Omega(t) = \gamma_n B_o(t)$ décrivant l'intensité de l'interaction ; et où $B_o(t)$ est en réalité le module du champ oscillant effectif perçu par un ion Tm^{3+} du fait de l'anisotropie du tenseur gyromagnétique de l'ion Tm^{3+} (voir premier chapitre).

L'aire d'une impulsion se définit de manière générale par :

$$\mathcal{A}_p = \int_{t_c - \frac{\tau_p}{2}}^{t_c + \frac{\tau_p}{2}} \Omega(t) dt \quad (2.18)$$

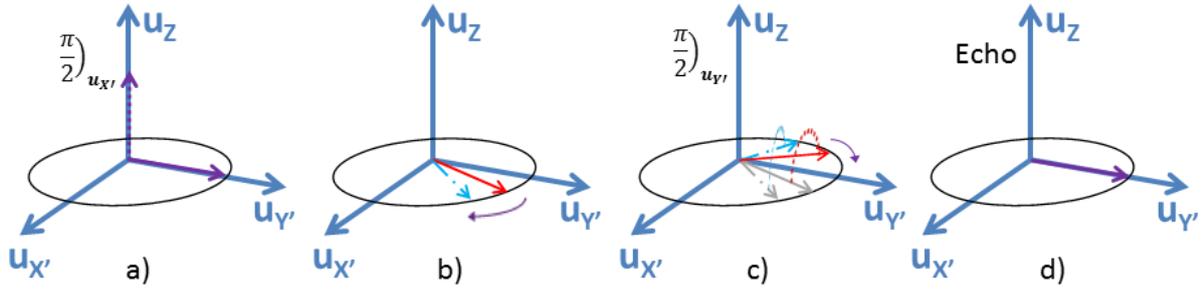


FIGURE 2.4 – Séquence d'écho de spins. a) création d'une aimantation transversale. b) précession libre à des pulsations différentes pendant τ : le moment magnétique bleu prend de l'avance sur le rouge. c) application d'une impulsion d'aire π : le moment magnétique bleu qui est maintenant en retard par rapport au rouge. d) précession libre pendant τ : le moment magnétique bleu a compensé son retard sur le rouge, ils sont maintenant refocalisés et l'aimantation transversale récupérée.

où t_c est le centre de l'impulsion. Dans le cas d'impulsion carrée, $\Omega(t)$ est constant, et on retrouve une expression déjà rencontrée plus haut :

$$\mathcal{A}_p = \Omega\tau_p \quad (2.19)$$

On note ici que la pulsation de Rabi Ω n'est autre que la largeur spectrale de l'impulsion carrée. On réalise alors la séquence suivante illustrée sur la figure 2.4 :

1. Application d'une impulsion d'aire $\pi/2$ selon $\mathbf{u}_{X'}$, à résonance avec le moment magnétique $\boldsymbol{\mu}$ initialement selon \mathbf{B}_{eff} : $\boldsymbol{\mu}$ tourne autour de \mathbf{B}_o d'un angle $\pi/2$, et se retrouve à la fin de l'impulsion selon $\mathbf{u}_{Y'}$.
2. Évolution libre de $\boldsymbol{\mu}$ pendant un temps τ_1 : $\boldsymbol{\mu}$ précesse autour de \mathbf{B}_{eff} à sa pulsation ω_{12} . La phase accumulée à l'issue de cette évolution libre est $\alpha_1 = \omega_{12}\tau_1 = \widehat{(\mathbf{u}_{Y'}, \boldsymbol{\mu})}$.
3. Application d'une impulsion π selon $\mathbf{u}_{Y'}$ à résonance avec $\boldsymbol{\mu}$: $\boldsymbol{\mu}$ tourne autour de \mathbf{B}_o d'un angle π , et se retrouve à la fin de l'impulsion toujours dans le plan horizontal P_h . Cette rotation dans l'espace $3D$ correspond à une réflexion du plan P_h par rapport à l'axe $\mathbf{u}_{Y'}$. A l'issue de cette impulsion, tout se passe comme si $\boldsymbol{\mu}$ avait accumulé une phase de $2\pi - 2\alpha_1$.
4. Évolution libre de $\boldsymbol{\mu}$ pendant un temps τ_2 : $\boldsymbol{\mu}$ précesse autour de \mathbf{B}_{eff} à sa pulsation ω_{12} . La phase accumulée au cours de cette évolution est $\alpha_2 = \omega_{12}\tau_2$.

La phase totale accumulée dans le plan P_h est alors :

$$\alpha_1 + 2\pi - 2\alpha_1 + \alpha_2 = 2\pi + \alpha_2 - \alpha_1 = \omega_{12}(\tau_2 - \tau_1)[2\pi] \quad (2.20)$$

Le moment magnétique nucléaire retrouvera sa position d'origine si la durée de la seconde évolution libre équivaut la durée de la première, c'est-à-dire si on a $\tau_2 = \tau_1$. Les moments magnétiques nucléaires sont alors refocalisés dans le plan P_h , et l'aimantation transversale initiale est ainsi récupérée à l'issue de la séquence.

La séquence décrite plus haut est valable uniquement lorsque l'impulsion carrée est à résonance avec le moment magnétique. Hors résonance, la fréquence angulaire de précession pendant

l'interaction avec la champ radio-fréquence n'est plus donnée par la pulsation de Rabi Ω mais par la pulsation de Rabi *généralisée* :

$$\Omega_g = \sqrt{\Omega^2 + (\omega_{12} - \omega)^2} \quad (2.21)$$

L'angle parcouru à l'issue de l'impulsion devient alors strictement supérieur à π :

$$\mathcal{A}_g = \pi \sqrt{1 + \left(\frac{\omega_{12} - \omega}{\Omega}\right)^2} \quad (2.22)$$

Pour qu'un moment magnétique hors résonance voie la même impulsion qu'un moment magnétique à résonance, il faut que :

$$\mathcal{A}_g \approx \pi \quad (2.23)$$

soit que

$$(\omega_{12} - \omega)^2 \ll \Omega^2 \quad (2.24)$$

Les moments magnétiques les plus éloignés de la résonance sont ceux vérifiant

$$\omega_{12} - \omega = \frac{\Delta_{\text{inh}}}{2} \quad (2.25)$$

Il en résulte que la condition requise pour que les moments magnétiques voient la même impulsion carrée s'écrit :

$$\left(\frac{\Delta_{\text{inh}}}{2\Omega}\right)^2 \ll 1 \quad (2.26)$$

La relation ci-dessus stipule que la pulsation de Rabi, autrement dit, la largeur spectrale de l'impulsion carrée, doit couvrir largement l'élargissement inhomogène. Cette condition est facilement réalisée dans d'autres ions de terres rares tels que le praséodyme. En effet, le faible élargissement inhomogène de l'ordre de 15 – 30 kHz [30, 31], permet d'utiliser des impulsions larges de plusieurs Δ_{inh} , et d'une durée de plusieurs dizaines de μs . Dans ces conditions, les impulsions π peuvent se révéler efficaces. La situation est cependant autrement différente dans notre système. L'ensemble d'ion Tm^{3+} a un élargissement inhomogène de l'ordre de 500 kHz pour la configuration angulaire $\theta = 48^\circ$ du champ statique \mathbf{B}_s . En pratique, il nous est difficile d'obtenir des fréquences de Rabi au-delà de 300 kHz. Le champ radio-fréquence produit par une bobine est proportionnel au courant la traversant. Ce dernier est amplifié à l'aide d'un circuit résonant RLC ; son facteur de qualité doit donc être grand pour maximiser le gain. Cependant, le facteur de qualité étant inversement proportionnel à la largeur de la résonance, du circuit, il faut l'optimiser tout en s'assurant de couvrir suffisamment l'élargissement inhomogène. Par ailleurs, l'amplificateur radio-fréquence dont nous disposons ne permet pas d'atteindre les valeurs de Ω requises.

Ne pouvant pas produire des impulsions π de durée suffisamment courte pour exciter toute la largeur inhomogène de manière uniforme, on recherche une alternative peu coûteuse en énergie permettant de réaliser la séquence d'écho de spins, et surtout robuste, c'est-à-dire insensible au désaccord $\omega_{12} - \omega$.

2.4 Les passages adiabatiques rapides

Le passage adiabatique rapide (PAR) est une technique basée sur le théorème adiabatique [32]. Un système dans un état propre instantané de son Hamiltonien dépendant du temps à l'instant t évoluera en restant dans cet état propre si la variation temporelle du Hamiltonien est suffisamment lente. Ce théorème expose un concept très intuitif, celui qu'un système peut s'adapter aux modifications de son environnement si ces dernières sont graduelles. Dans le cas de la RMN et la situation présente, lorsque que le champ $\mathbf{B}_{eff} + \mathbf{B}_o$ varie suffisamment lentement dans le référentiel tournant, la projection du moment magnétique $\boldsymbol{\mu}$ sur ce champ est une constante du mouvement : ainsi, $\boldsymbol{\mu}$ *suit* le champ effectif. Nous allons maintenant décrire plus en détail l'action d'un passage adiabatique rapide sur un ion Tm^{3+} . On se placera pour cette étude dans la sphère de Bloch.

2.4.1 Action d'un passage adiabatique sur le vecteur de Bloch

Équations dans la sphère de Bloch

On peut également adopter une description quantique de la résonance magnétique nucléaire : lorsque qu'un champ tournant est appliqué, l'ion Tm^{3+} est en interaction Zeeman avec un champ magnétique dépendant du temps. Nous avons montré plus haut que l'état quantique d'un ion Tm^{3+} pouvait se décrire par le vecteur de Bloch \mathbf{b} (Eq. 2.7), précessant autour d'un vecteur de contrôle \mathbf{c} (Eq. 2.8). On se propose ici d'établir rapidement les expressions importantes dans la sphère de Bloch représentée sur la figure 2.5, qui correspond ici au repère \mathcal{R}_{eff} (un vecteur de Bloch est de norme inférieure ou égale à l'unité).

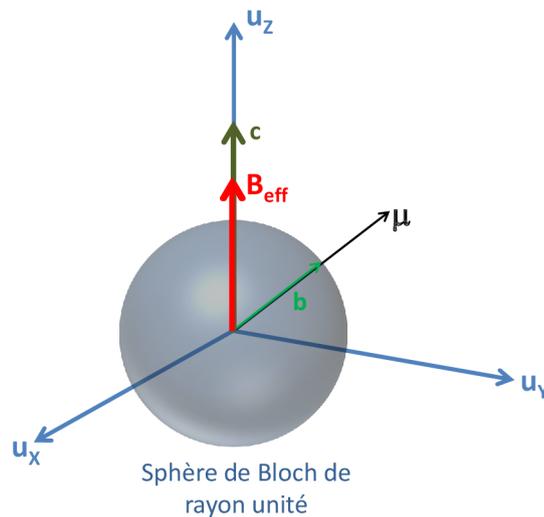


FIGURE 2.5 – Sphère de Bloch, avec le vecteur de contrôle \mathbf{c} et le vecteur de Bloch \mathbf{b} de norme unité.

En pratique, on n'utilise pas un champ tournant, mais un champ oscillant à la pulsation ω selon \mathbf{u}_x , et de phase ϕ pouvant dépendre du temps. Il s'exprime :

$$\mathbf{B}_o(t) = 2B_0 \cos(\omega t + \phi(t))\mathbf{u}_x \quad (2.27)$$

L'équation d'évolution du vecteur de Bloch est donnée, comme dans l'expression (2.6), par :

$$\dot{\mathbf{b}}(t) = \mathbf{c}(t) \times \mathbf{b}(t) \quad (2.28)$$

avec un vecteur de contrôle s'exprimant dans le référentiel \mathcal{R}_{eff} :

$$[\mathbf{c}]_{\mathcal{R}} = \begin{bmatrix} 2\Omega(t) \cos(\omega t + \phi(t)) \\ 0 \\ \omega_{12} \end{bmatrix} \quad (2.29)$$

où $\omega_{12} = \Delta_g$ (voir expression (1.42)). La fréquence de Rabi $\Omega(t)$ est donnée par :

$$\Omega(t) = \gamma_n B_0(t) \quad (2.30)$$

Comme plus haut, on se place dans le référentiel tournant \mathcal{R}' de repère R' défini par les vecteurs $\{\mathbf{u}_{X'}, \mathbf{u}_{Y'}, \mathbf{u}_{Z'} = \mathbf{u}_Z\}$. Il tourne à la fréquence angulaire $\omega + \dot{\phi}(t)$. L'expression du vecteur de Bloch dans \mathcal{R}' s'obtient par la relation :

$$[\mathbf{b}(t)]_{\mathcal{R}'} = P'(t)[\mathbf{b}(t)]_{\mathcal{R}} \quad (2.31)$$

où la matrice $P'(t)$

$$P'(t) = \begin{bmatrix} \cos(\omega t + \phi(t)) & \sin(\omega t + \phi(t)) & 0 \\ -\sin(\omega t + \phi(t)) & \cos(\omega t + \phi(t)) & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (2.32)$$

est la matrice réalisant le passage entre \mathcal{R}_{eff} et \mathcal{R}' . Le vecteur de contrôle s'exprime désormais dans le référentiel \mathcal{R}' :

$$[\mathbf{c}(t)]_{\mathcal{R}'} = \begin{bmatrix} \Omega(t)[1 + \cos(2(\omega t + \phi(t)))] \\ -\Omega(t) \sin(2(\omega t + \phi(t))) \\ \omega_{12} \end{bmatrix} \quad (2.33)$$

L'expression complexe du vecteur de contrôle provient du champ qui est oscillant et non pas tournant. On peut voir le champ oscillant $B_o(t)$ comme la somme de deux champs d'amplitude fixe tournants l'un à ω , l'autre à $-\omega$ (figure 2.6). Alors, dans le référentiel tournant à ω , l'un des champ (ω) est fixe tandis que l'autre ($-\omega$) tourne à la fréquence -2ω .

Lorsque ω est proche de la pulsation de Larmor ω_{12} de l'ion, la composante à $-\omega$ se trouve alors à une distance de pulsation de l'ordre de 2ω de la pulsation de Larmor. Dans la situation où $B_o \ll B_s$, les effets de cette composante consistent en un déplacement de la fréquence de résonance de l'ordre de $B_o^2/16B_s^2$ [33] et l'apparition d'autres fréquences de résonance [34, 35]. Compte-tenu des amplitudes mises en jeu dans nos expériences, ces effets seront négligés par la suite. On peut alors supprimer les termes oscillants à $2\omega t$ dans l'expression du vecteur de contrôle, ce qui constitue l'approximation de l'onde tournante :

$$[\mathbf{c}(t)]_{\mathcal{R}'} = \begin{bmatrix} \Omega(t) \\ 0 \\ \omega_{12} \end{bmatrix} \quad (2.34)$$

On peut alors déterminer le comportement du vecteur de Bloch $[\mathbf{b}(t)]_{\mathcal{R}'}$:

$$[\dot{\mathbf{b}}(t)]_{\mathcal{R}'} = [\dot{\mathbf{b}}(t)]_{\mathcal{R}} - (\omega + \dot{\phi}(t))\mathbf{u}_{Z'} \times [\mathbf{b}(t)]_{\mathcal{R}'} \quad (2.35)$$

$$= [\mathbf{c}(t)]_{\mathcal{R}'} \times [\mathbf{b}(t)]_{\mathcal{R}'} - (\omega + \dot{\phi}(t))\mathbf{u}_{Z'} \times [\mathbf{b}(t)]_{\mathcal{R}'} \quad (2.36)$$

$$= [\mathbf{c}'(t)]_{\mathcal{R}'} \times [\mathbf{b}(t)]_{\mathcal{R}'} \quad (2.37)$$

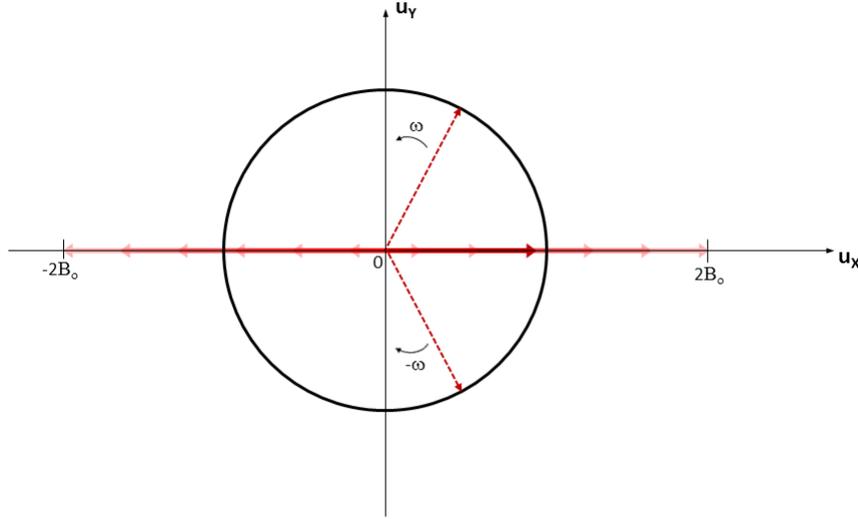


FIGURE 2.6 – Illustration de la décomposition du champ oscillant en deux champs tournants. Le champ oscillant, selon \mathbf{u}_X , est représenté par les larges flèches rouges semi-transparentes. La flèche pleine se décompose en deux flèches tiretées dont les extrémités décrivent un cercle de rayon B_o .

On retrouve la forme simple de l'équation de Schrödinger dans le référentiel \mathcal{R}' avec cette fois-ci, un vecteur de contrôle défini par :

$$[\mathbf{c}'(t)]_{\mathcal{R}'} = \begin{bmatrix} \Omega(t) \\ 0 \\ \delta_\omega - \dot{\phi}(t) \end{bmatrix} \quad (2.38)$$

où $\delta_\omega = \omega_{12} - \omega$ représente le désaccord en fréquence angulaire du champ avec la transition du système à deux niveaux. Le vecteur de Bloch précesse donc autour de \mathbf{c}' à la vitesse angulaire $(\Omega(t)^2 + (\delta_\omega - \dot{\phi}(t))^2)^{\frac{1}{2}}$.

Critère d'adiabaticité

On se propose cette fois-ci d'utiliser une impulsion radio-fréquence de durée τ_p dont la pulsation est balayée sur une grande plage de part et d'autre de ω_{12} . Ce balayage est décrit par la fonction $\phi(t)$ dans l'expression du champ radio-fréquence. Idéalement, la plage de balayage s'étend de $-\infty$ à $+\infty$ et la pulsation de Rabi est bornée :

$$\delta_\omega - \dot{\phi}(\pm \frac{\tau_p}{2}) = \mp \infty, \quad |\Omega(t)| < k \quad (2.39)$$

où k est une constante réelle. Le vecteur de contrôle \mathbf{c}' , aligné selon $+\mathbf{u}_Z$ au début de l'impulsion, se retrouvera alors selon $-\mathbf{u}_Z$ à la fin de l'impulsion. On se place maintenant dans le référentiel instantané \mathcal{R}'' , où le vecteur $\mathbf{u}_{Z''}$ est à tout instant selon \mathbf{c}' . La matrice réalisant un tel changement de référentiel est donnée par :

$$P''(t) = \begin{bmatrix} \cos \theta(t) & 0 & -\sin \theta(t) \\ 0 & 1 & 0 \\ \sin \theta(t) & 0 & \cos \theta(t) \end{bmatrix} \quad (2.40)$$

et permet d'avoir l'expression du vecteur de Bloch dans \mathcal{R}'' en fonction de celle dans \mathcal{R}' :

$$[\mathbf{b}(t)]_{\mathcal{R}''} = P''(t)[\mathbf{b}(t)]_{\mathcal{R}'} \quad (2.41)$$

L'angle $\theta(t)$ est défini par :

$$\cos \theta(t) = \frac{\delta_\omega - \dot{\phi}(t)}{\sqrt{\Omega(t)^2 + (\delta_\omega - \dot{\phi}(t))^2}}, \quad \sin \theta(t) = \frac{\Omega(t)}{\sqrt{\Omega(t)^2 + (\delta_\omega - \dot{\phi}(t))^2}} \quad (2.42)$$

Dans le référentiel \mathcal{R}'' , le vecteur de contrôle \mathbf{c}' s'écrit :

$$[\mathbf{c}']_{\mathcal{R}''} = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ \sqrt{\Omega(t)^2 + (\delta_\omega - \dot{\phi}(t))^2} \end{bmatrix} = \sqrt{\Omega(t)^2 + (\delta_\omega - \dot{\phi}(t))^2} \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{bmatrix} \quad (2.43)$$

La direction du vecteur de contrôle reste toujours identique dans le référentiel instantané. La dynamique du vecteur de Bloch est dorénavant déterminée par la relation :

$$[\dot{\mathbf{b}}(t)]_{\mathcal{R}''} = [\dot{\mathbf{b}}(t)]_{\mathcal{R}'} - \dot{\theta}(t) \mathbf{u}_{\mathcal{Y}''} \times [\mathbf{b}(t)]_{\mathcal{R}''} \quad (2.44)$$

$$= ([\mathbf{c}'(t)]_{\mathcal{R}''} - \dot{\theta}(t) \mathbf{u}_{\mathcal{Y}''}) \times [\mathbf{b}(t)]_{\mathcal{R}''} \quad (2.45)$$

avec

$$\dot{\theta}(t) = \frac{(\delta_\omega - \dot{\phi}(t))\dot{\Omega}(t) + \ddot{\phi}(t)\Omega(t)}{\Omega(t)^2 + (\delta_\omega - \dot{\phi}(t))^2} \quad (2.46)$$

Le mouvement du vecteur de Bloch se simplifie lorsque la précession autour du vecteur de contrôle $[\mathbf{c}'(t)]_{\mathcal{R}''}$ s'effectue beaucoup plus rapidement que celle autour de $\mathbf{u}_{\mathcal{Y}''}$. La dynamique de $\mathbf{b}(t)$ se réduit alors à :

$$\dot{\mathbf{b}}(t)_{\mathcal{R}''} = [\mathbf{c}'(t)]_{\mathcal{R}''} \times [\mathbf{b}(t)]_{\mathcal{R}''} \quad (2.47)$$

simple précession autour d'un vecteur de direction fixe : la largeur de la projection de $[\mathbf{b}(t)]_{\mathcal{R}''}$ sur $\mathbf{u}_{\mathcal{Z}''}$ est constante.

La condition pour avoir un tel mouvement constitue le critère d'adiabaticité¹, et s'écrit avec les notations de la représentation de la sphère de Bloch :

$$\frac{\dot{\theta}(t)}{|\mathbf{c}'|} < 1 \quad (2.48)$$

Dans le cas particulier d'une pulsation de Rabi constante et d'un balayage linéaire de constante r de la pulsation de l'impulsion, de formule :

$$\phi(t) = \frac{1}{2}rt^2 \quad (2.49)$$

la critère d'adiabaticité devient, à tout instant t :

$$\frac{r\Omega}{(\Omega^2 + (\delta_\omega - rt)^2)^{\frac{3}{2}}} < 1 \quad (2.50)$$

Le situation la plus sévère se produit pour $t = 0$:

$$\frac{\Omega^2}{r} > 1 \quad (2.51)$$

1. Discussion plus détaillée dans l'Annexe 2

Passage adiabatique

Regardons maintenant l'effet d'une impulsion balayée en fréquence sous l'approximation adiabatique, nommée à juste titre *passage adiabatique*. On détermine tout d'abord dans le référentiel \mathcal{R}'' , l'opérateur d'évolution U entre les instants t_2 et t_1 :

$$U(t_2, t_1) = \begin{bmatrix} \cos \chi(t_2, t_1, \delta_\omega) & -\sin \chi(t_2, t_1, \delta_\omega) & 0 \\ \sin \chi(t_2, t_1, \delta_\omega) & \cos \chi(t_2, t_1, \delta_\omega) & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (2.52)$$

La quantité $\chi(t_2, t_1, \delta_\omega)$ représente l'angle total parcouru par le vecteur de Bloch lors de la précession entre les instants t_1 et t_2 , pour un désaccord donnée δ_ω :

$$\chi(t_2, t_1, \delta_\omega) = \int_{t_1}^{t_2} \sqrt{\Omega(t)^2 + (\delta_\omega - \dot{\phi}(t))^2} dt \quad (2.53)$$

La position du vecteur de Bloch à l'instant t_2 dans le référentiel \mathcal{R}'' après un temps d'interaction $t_2 - t_1$ est alors donnée par l'expression :

$$[\mathbf{b}(t_2)]_{\mathcal{R}''} = U(t_2, t_1)[\mathbf{b}(t_1)]_{\mathcal{R}''} \quad (2.54)$$

la matrice U décrivant l'action d'un passage adiabatique de durée τ_p dans le référentiel \mathcal{R}'' . L'effet d'un passage adiabatique rapide dans le référentiel initial \mathcal{R}_{eff} est donnée par :

$$M_{PAR} = [P'(\tau_p/2)]^{-1} [P''(\tau_p/2)]^{-1} U(\tau_p/2, -\tau_p/2) P''(-\tau_p/2) P'(-\tau_p/2) \quad (2.55)$$

Il suffit de connaître les expressions des matrices aux temps initiaux et finals. Le cas idéal d'un passage adiabatique décrit par les relations (2.39) sera considéré atteint si le vecteur de contrôle est quasiment aligné à l'axe \mathbf{u}_z initialement et finalement ; ce qui signifie :

$$\left| \frac{\Omega(\pm\tau_p/2)}{\delta_\omega - \dot{\phi}(\pm\tau_p/2)} \right| \ll 1 \quad (2.56)$$

Alors, les expressions de (2.42) se simplifient et donnent les matrices de passage suivantes :

$$P''(-\frac{\tau_p}{2}) = \mathbb{1} \quad P''(\frac{\tau_p}{2}) = \begin{bmatrix} -1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & -1 \end{bmatrix} = P''(\frac{\tau_p}{2})^{-1} \quad (2.57)$$

$$P'(-\frac{\tau_p}{2}) = \begin{bmatrix} \cos k_- & \sin k_- & 0 \\ -\sin k_- & \cos k_- & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \quad P'(\frac{\tau_p}{2})^{-1} = \begin{bmatrix} \cos k_+ & -\sin k_+ & 0 \\ \sin k_+ & \cos k_+ & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (2.58)$$

avec

$$k_\pm = \pm \frac{\omega\tau_p}{2} + \phi\left(\pm \frac{\tau_p}{2}\right) \quad (2.59)$$

La matrice M_{PAR} décrivant un passage adiabatique s'explicite alors :

$$M_{PAR} = \begin{bmatrix} -\cos(\chi(\delta_\omega) - k_+ - k_-) & \sin(\chi(\delta_\omega) - k_+ - k_-) & 0 \\ \sin(\chi(\delta_\omega) - k_+ - k_-) & \cos(\chi(\delta_\omega) - k_+ - k_-) & 0 \\ 0 & 0 & -1 \end{bmatrix} \quad (2.60)$$

Interprétation de l'action d'un PAR sur le vecteur de Bloch

Les valeurs propres et leur vecteur propre respectif de cette matrice sont :

$$\lambda_1 = -1 \qquad \lambda_2 = -1 \qquad \lambda_3 = 1 \qquad (2.61)$$

$$\mathbf{a}_1 = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{bmatrix} \qquad \mathbf{a}_2(\delta_\omega) = \begin{bmatrix} \cos(\sigma(\delta_\omega)) \\ \sin(\sigma(\delta_\omega)) \\ 0 \end{bmatrix} \qquad \mathbf{a}_3(\delta_\omega) = \begin{bmatrix} \cos(\sigma(\delta_\omega) + \frac{\pi}{2}) \\ \sin(\sigma(\delta_\omega) + \frac{\pi}{2}) \\ 0 \end{bmatrix} \qquad (2.62)$$

avec

$$\sigma(\delta_\omega) = \frac{1}{2} \left[-\chi(\delta_\omega) + \phi\left(-\frac{\tau_p}{2}\right) + \phi\left(\frac{\tau_p}{2}\right) \right] \qquad (2.63)$$

qui représente l'angle entre \mathbf{a}_2 et \mathbf{u}_X . La matrice diagonale obtenue

$$\begin{bmatrix} -1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & -1 \end{bmatrix} \qquad (2.64)$$

correspond à une matrice de rotation d'angle π dans le référentiel \mathcal{R}_{eff} : l'effet d'un passage adiabatique sur le vecteur de Bloch est équivalent à une rotation de π autour d'un axe contenu dans le plan équatorial de la sphère de Bloch.

Lorsque un vecteur de Bloch est initialement aligné selon $-\mathbf{u}_Z$, il sera à l'issue du PAR selon \mathbf{u}_Z , indépendamment du désaccord de fréquence, comme le montre la valeur propre du vecteur \mathbf{a}_3 . Autrement dit, à l'issue d'un PAR, n'importe quel ion Tm^{3+} actif initialement dans l'état Zeeman $|1\rangle$ sera dans l'état Zeeman $|2\rangle$: le PAR est donc capable de réaliser un transfert de population.

Il est important de noter les considérations suivantes sur l'axe autour duquel se fait la rotation :

- cet axe de rotation dépend de la phase temporelle du PAR, à travers les phases initiales et finales $\phi(\pm\tau_p/2)$, et du type de balayage de la fréquence de l'impulsion donné par $\dot{\phi}(t)$.
- cet axe de rotation dépend du profil temporel de $\Omega(t)$. Il sera différent selon qu'on utilise une impulsion carrée, ou une sécante hyperbolique par exemple.
- cet axe de rotation dépend de la transition Zeeman de l'ion à travers le désaccord δ_ω .

Chaque classe de fréquence aura son propre axe de rotation dans le plan équatorial.

Le dernier point notamment stipule donc que la trajectoire du vecteur de Bloch dans la sphère de Bloch est fonction du désaccord en fréquence : deux spins nucléaires de fréquence de transition différente n'emprunteront pas le même chemin.

Basculement du vecteur de Bloch pendant un PAR

Étudions plus en détail ce qu'il se passe concrètement pour un vecteur de Bloch lors d'un passage adiabatique. Pour simplifier l'analyse, on considère la pulsation de Rabi constante au cours du PAR. Le balayage de la fréquence de l'impulsion est linéaire, et s'effectue sur une plage de fréquence Δ_0 pendant un temps τ_p , entre les instants $t = -\tau_p/2$ et $t = \tau_p/2$. On a donc :

$$\Omega(t) = \Omega \qquad \phi(t) = \frac{1}{2}rt^2 \qquad (2.65)$$

où $r = \Delta_0/\tau_p$ est le taux de balayage.

L'action d'un PAR dans le référentiel \mathcal{R} entre les instants $\tau_p/2$ et t est décrit par la matrice (en s'inspirant de (2.55)) :

$$M(t) = [P'(t)]^{-1}[P''(t)]^{-1}U(t, -\tau_p/2)P''(-\tau_p/2)P'(-\tau_p/2) \quad (2.66)$$

Elle s'exprime :

$$M(t) = \begin{bmatrix} \cos k \cos \theta \cos a - \sin k \sin a & \cos k \cos \theta \sin a - \sin k \cos a & \cos k \sin \theta \\ \sin k \cos \theta \cos a + \cos k \sin a & -\sin k \cos \theta \sin a + \cos k \cos a & \sin k \sin \theta \\ -\sin \theta \cos a & \sin \theta \sin a & \cos \theta \end{bmatrix} \quad (2.67)$$

où

$$k = \omega t + \phi(t) \quad a = \chi(t, -\tau_p/2, \delta_\omega) + \omega \frac{\tau_p}{2} - \frac{1}{8} r \tau_p^2 \quad \theta = \theta(t) \quad (2.68)$$

Regardons l'état du vecteur de Bloch initialement selon $-\mathbf{u}_Z$, à l'instant t du PAR :

$$\mathbf{b}(t) = -M(t) \cdot \mathbf{u}_Z = - \begin{bmatrix} \cos k \sin \theta \\ \sin k \sin \theta \\ \cos \theta \end{bmatrix} \quad (2.69)$$

qui se développe avec, (2.68) et (2.42) :

$$\mathbf{b}(t) = - \frac{1}{\sqrt{1 + \left(\frac{\delta_\omega - rt}{\Omega}\right)^2}} \begin{bmatrix} \cos \left(\omega t + \frac{1}{2} r t^2\right) \\ \sin \left(\omega t + \frac{1}{2} r t^2\right) \\ \frac{\delta_\omega - rt}{\Omega} \end{bmatrix} \quad (2.70)$$

Les deux premières composantes de ce vecteur renseignent sur la phase (dans le plan horizontal de la sphère de Bloch). Elles nous rappellent que le vecteur de Bloch précesse rapidement autour du vecteur de contrôle tout en le suivant. La dernière composante permet de *décrire* le basculement. En effet, si cette dernière est voisine de -1 , on sait alors que le vecteur de Bloch est encore pratiquement selon $-\mathbf{u}_Z$. Deux points importants sont à relever :

- Lors du basculement, le vecteur de Bloch verra sa composante longitudinale s'annuler avant de remonter à l'unité. Regardons le module de cette composante longitudinale. On a :

$$\left| \frac{1}{\sqrt{1 + \left(\frac{\Omega}{\delta_\omega - rt}\right)^2}} \right| \quad (2.71)$$

Cette expression prend varie essentiellement sur une plage temporelle du PAR telle que :

$$\delta_\omega - rt \approx \Omega \Leftrightarrow \delta_\omega - \frac{\Delta_0}{\tau_p} t \approx \Omega \quad (2.72)$$

On peut distinguer deux durées. Celle du PAR, donnée par τ_p , qui correspond au temps que met le balayage pour parcourir toute la plage Δ_0 , très grande devant Ω et Δ_{inh} ; et celle du basculement effectif du vecteur de Bloch, qu'on peut définir comme le temps que met ce dernier pour passer clairement d'une orientation proche de $-\mathbf{u}_Z$ à une orientation proche de \mathbf{u}_Z . Cette durée est nommée dans la littérature *temps effectif* du basculement et à pour expression :

$$T_{eff} = \pi \frac{\Omega}{r} \quad (2.73)$$

- Prenons le moment lors du PAR où le vecteur de Bloch est complètement dans le plan horizontal : il est alors à mi-parcours du basculement. Cet instant particulier est donné par la relation

$$\delta_\omega - rt = 0 \quad (2.74)$$

Cet instant est donc différent d'un spin nucléaire à l'autre suivant que leur fréquence respective soit différente. Les spins nucléaires ne basculent donc pas au même moment au cours du passage adiabatique. Ils commencent à basculer au contraire successivement, l'un après l'autre.

2.4.2 Rephasage des spins par double passage adiabatique

Le passage adiabatique a été utilisé très tôt pour le transfert de population entre deux niveaux d'énergie [36]. Le rephasage des spins est rendu possible via l'application de deux passages adiabatiques rapides sur le système [37]. La séquence utilisée dans cette thèse se constitue comme suit :

- spins alignés dans le plan équatorial à l'instant (t_0)
- évolution libre pendant un temps τ_1
- premier passage adiabatique rapide *PAR A* de durée τ_A
- évolution libre pendant un temps τ_2
- second passage adiabatique rapide *PAR B* de durée τ_B
- évolution libre pendant un temps τ_3 , à l'issue duquel on regarde l'aimantation

On utilise le formalisme matriciel décrit dans les sections précédentes. Dans le référentiel \mathcal{R}_{eff} , la matrice décrivant l'évolution libre est donnée par :

$$F(\tau) = \begin{bmatrix} \cos(\omega_{12}\tau) & -\sin(\omega_{12}\tau) & 0 \\ \sin(\omega_{12}\tau) & \cos(\omega_{12}\tau) & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (2.75)$$

La condition (2.56) est supposée remplie pour les deux passages adiabatiques. Chaque *PAR J* où $J = A, B$ s'écrit alors dans le référentiel \mathcal{R} :

$$M_{PAR J} = [P'_J(\tau_J/2)]^{-1} [P''(\tau_J/2)]^{-1} U_J(\tau_J/2, -\tau_J/2) P''(-\tau_J/2) P'_J(-\tau_J/2) \quad (2.76)$$

L'indice J sur les matrices U , P' et P'^{-1} indiquant qu'il faut les calculer avec les paramètres χ , ω et ϕ du passage adiabatique J , notés par la suite χ_J , ω_J et ϕ_J .

La matrice associée à la séquence complète est donc :

$$L = F(\tau_3) M_{PAR B} F(\tau_2) M_{PAR A} F(\tau_1) \quad (2.77)$$

En effectuant tous les calculs (détaillés en annexe), la matrice devient :

$$L = \begin{bmatrix} \cos(\alpha(\omega_{12})) & -\sin(\alpha(\omega_{12})) & 0 \\ \sin(\alpha(\omega_{12})) & \cos(\alpha(\omega_{12})) & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (2.78)$$

où

$$\begin{aligned} \alpha(\omega_{12}) = & \omega_{12}(\tau_1 - \tau_2 + \tau_3) - \chi_B(\omega_{12} - \omega_B) + \chi_A(\omega_{12} - \omega_A) \\ & + \phi_B(-\frac{\tau_B}{2}) + \phi_B(\frac{\tau_B}{2}) - \phi_A(-\frac{\tau_A}{2}) - \phi_A(\frac{\tau_A}{2}) \end{aligned} \quad (2.79)$$

La matrice L décrit une rotation anti-horaire autour de l'axe \mathbf{u}_Z . L'angle α de la rotation dépend des paramètres des passages adiabatiques, mais surtout de la fréquence angulaire de transition des spins. Pour s'affranchir de l'élargissement inhomogène, l'angle α doit être le même pour toutes les classes de fréquence angulaire ; il est donc nécessaire de supprimer cette dépendance en ω_{12} . C'est réalisable lorsque :

$$\begin{cases} \tau_3 = \tau_2 - \tau_1 \\ \chi_A(\omega_{12} - \omega_A) = \chi_B(\omega_{12} - \omega_B), \forall \omega_{12} \in \Delta_{\text{inh}} \end{cases} \quad (2.80)$$

Pour peu que τ_2 soit supérieur ou égal à τ_1 , la première condition est susceptible d'être satisfaite. Elle est facilement réalisable en pratique, et indique le moment où l'aimantation sera reconstruite dans le plan équatorial. Une manière simple de respecter la seconde condition est de prendre pour les deux passages adiabatiques, le même profil temporel de la pulsation de Rabi $\Omega(t)$ et de la phase $\phi(t)$.

L'angle α donne alors l'orientation finale, ou encore la phase finale de l'aimantation transversale à l'issue de la séquence. Le contrôle de cette phase finale est très important. En RMN, elle donne la direction dans laquelle l'écho sera émis. Lorsque (Eq. 2.80) est remplie, l'angle α devient :

$$\alpha = \phi_B(-\tau_B/2) + \phi_B(\tau_B/2) - \phi_A(-\tau_A/2) - \phi_A(\tau_A/2) \quad (2.81)$$

$$= (\phi_B(\tau_B/2) - \phi_A(\tau_A/2)) + (\phi_B(-\tau_B/2) - \phi_A(-\tau_A/2)) \quad (2.82)$$

Il dépend de la phase relative initiale et finale entre les passages adiabatiques. Pour retrouver la direction initiale, la matrice L doit être égale à l'identité, autrement dit α doit être égale à zéro à 2π près. Une manière de faire est d'implémenter des passages adiabatiques avec des phases initiales (finales) identiques :

$$\phi_B(\pm \frac{\tau_B}{2}) - \phi_A(\pm \frac{\tau_A}{2}) = 0 \quad (2.83)$$

Une autre consiste à réaliser pour chacun des passages adiabatiques, la relation :

$$\phi_J(-\frac{\tau_J}{2}) + \phi_J(\frac{\tau_J}{2}) = 2n\pi, n \text{ entier}, J = A, B \quad (2.84)$$

Cette séquence permet de récupérer toute l'aimantation transversale A_\perp à des instants bien précis et prévisibles, et dans une direction bien contrôlée du plan horizontal.

2.4.3 Interprétation géométrique de la séquence par double passage adiabatique

La séquence de rephasage par double passage adiabatique peut s'interpréter simplement dans la représentation de la sphère de Bloch. On se place dans le plan équatorial de la sphère de Bloch porté par les vecteurs unités \mathbf{u}_X et \mathbf{u}_Y du référentiel \mathcal{R}_{eff} . On rappelle qu'une rotation de π autour d'un axe contenu dans ce plan est équivalent à une réflexion dans ce même plan. On part d'un vecteur de Bloch \mathbf{b} initialement aligné selon \mathbf{u}_X . On notera ici $\eta = \widehat{(\mathbf{u}_X, \mathbf{b})}$. Effectuons la séquence pas à pas illustrée sur la figure 2.7 :

- (a) position initiale du vecteur de Bloch.

- (b) évolution libre τ_1 : rotation d'angle $\theta_1 = \omega_{12}\tau_1$, $\eta = \theta_1$.
- (c) premier passage adiabatique PAR A : réflexion d'axe Σ_A tel que $\sigma'_A = \widehat{(\mathbf{u}_X, \Sigma_A)}$. A l'issue du passage adiabatique, $\eta = 2\sigma'_A - \theta_1$.
- (d) évolution libre τ_2 : rotation d'angle $\theta_2 = \omega_{12}\tau_2$, $\eta = 2\sigma'_A - \theta_1 + \theta_2$.
- (e) second passage adiabatique PAR B : réflexion d'axe Σ_B tel que $\sigma'_B = \widehat{(\mathbf{u}_X, \Sigma_B)}$. A l'issue du passage adiabatique, $\eta = 2\sigma'_B - 2\sigma'_A + \theta_1 - \theta_2$.
- (f) évolution libre τ_3 : rotation d'angle $\theta_3 = \omega_{12}\tau_3$, $\eta = 2\sigma'_B + 2\sigma'_A + \theta_1 - \theta_2 + \theta_3$.

Les angles σ'_A et σ'_B , qui dépendent du désaccord δ_ω , se déterminent grâce à l'expression du vecteur propre \mathbf{a}_3 (voir (Eq. 2.62)) de la matrice M_{PAR} :

$$\sigma'_J = \sigma_J + \frac{\pi}{2} \quad (2.85)$$

A la fin de la séquence, lorsque que (Eq. 2.80) est remplie, on a alors :

$$\eta = \sigma_B - \sigma_A = \phi_B(-\tau_B/2) + \phi_B(\tau_B/2) - \phi_A(-\tau_A/2) - \phi_A(\tau_A/2) \quad (2.86)$$

Aucune hypothèse n'a été faite sur les divers angles ; l'angle η final sera le même pour n'importe quel vecteur de Bloch, et n'importe quelle pulsation ω_{12} . Ainsi, tous les spins distribués inhomogènement sur Δ_{inh} initialement alignés le seront encore à la fin de la séquence. pour peu que (2.83) ou (2.84) soient vérifiées, la phase initiale de l'aimantation transversale sera conservée à l'issue de la séquence.

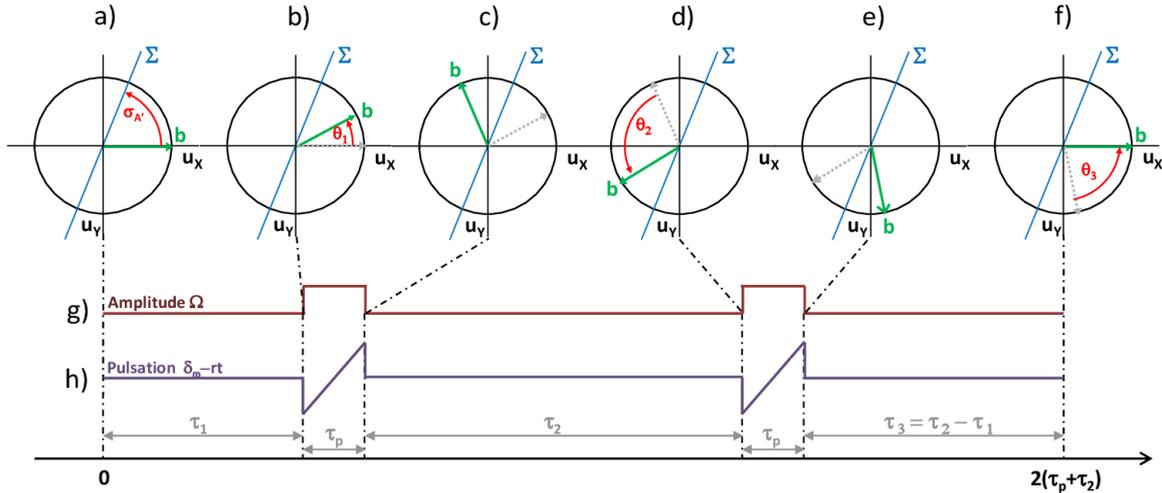


FIGURE 2.7 – Séquence de rephasage par double passage adiabatique rapide, le balayage en fréquence angulaire étant linéaire, et $\sigma'_A = \sigma'_B$. Les éléments de (a) à (f) décrivent la position du vecteur de Bloch étape par étape. Les éléments (g) et (h) représentent l'évolution de l'amplitude et la pulsation du champ radio-fréquence, respectivement.

2.5 Détection de l'écho de spin

2.5.1 Exploiter le faisceau optique

En RMN, l'onde de spin produite lors de l'écho est détectée directement par une antenne, les variations de l'onde magnétique conduisant à une variation de la FEM aux bornes de l'antenne. Les photons dans le domaine radio-fréquence sont peu énergétiques, le nombre de spins produisant le signal RMN doit donc être grand, de l'ordre du nombre d'Avogadro. La situation est différente dans notre cristal. En effet, le dopage en ion Tm^{3+} est très faible, de 0.1%. Si on suppose que le nombre d'ion Y^{3+} est de l'ordre de 10^{23} dans le YAG, alors le nombre d'ion Tm^{3+} , compte-tenu du faible dopage est de l'ordre de 10^{19} . Lors d'une véritable expérience de stockage de l'information, un faisceau optique interagira avec le cristal. Le nombre d'ions Tm^{3+} actifs sera donc limité par la taille du faisceau optique, généralement de l'ordre de $100 \mu\text{m}$. Notre cristal a pour dimension $3 \times 4 \times 5 \text{ mm}^3$ (Hauteur·Largeur·Profondeur). Le rapport de volume est de l'ordre de 10^{-3} , rabaisant le nombre d'ions Tm^{3+} utiles à environ 10^{16} . Enfin, il s'avère que la transition optique du Tm^{3+} :YAG subit un élargissement inhomogène, de l'ordre de 20 GHz. Or le faisceau optique interagit en pratique sur une plage de fréquence de l'ordre de la centaine de kHz, soit une infime fraction des 20 GHz. Finalement, dans notre échantillon, le nombre d'ions Tm^{3+} réellement concernés par l'expérience est de l'ordre de 10^{11} , ce qui est trop peu pour fournir un signal de RMN aisément détectable.

Nous utilisons une détection optique de la résonance magnétique nucléaire (ODNMR). Dans notre cristal, le faisceau sonde est branché sur la transition $|1\rangle-|3\rangle$. Le principal avantage réside dans la sensibilité de cette technique, les photons optiques étant plus énergétiques que les photons radio-fréquence d'un facteur $\approx 10^8$. Par ailleurs, le faisceau optique permet de préparer les spins dans un état hyperpolarisé par pompage optique de la transition $|1\rangle-|3\rangle$, c'est-à-dire de les mettre tous facilement dans le même niveau d'énergie propre. On s'assure ainsi de la participation de l'ensemble des ions actifs dans nos expériences ce qui permet un signal plus important en vue des mesures.

2.5.2 Différentes configurations des ions Tm^{3+} actifs

Lors d'une détection optique, on sonde l'un des niveaux Zeeman (dans nos expériences, le niveau d'énergie E_1 des spins). On regarde alors l'évolution de la population moyenne de l'ensemble, ou encore de l'aimantation longitudinale. Il est donc important d'avoir un lien entre l'évolution de l'aimantation transversale et l'évolution de l'aimantation longitudinale, pour distinguer le cas d'un rephasage parfait d'un rephasage inefficace.

Après pompage optique, les ions Tm^{3+} actifs peuvent se trouver dans deux configurations différentes :

- tous les ions sont dans le niveau d'énergie E_1 . L'aimantation nucléaire est purement longitudinale. La population moyenne du niveau sondé est maximale. Le signal transmis est minimal, le plus bas qu'on puisse obtenir.
- tous les ions sont dans le niveau d'énergie E_2 . L'aimantation nucléaire est également purement longitudinale. La population moyenne du niveau sondé est nulle. Le signal transmis est maximal, le plus haut qu'on puisse obtenir.

Comme énoncé plus haut, le pompage optique est une étape de préparation du système, permettant de mettre tous les ions dans le même niveau d'énergie, dans le même état quantique.

D'un point de vue macroscopique, l'aimantation nucléaire est purement longitudinale. C'est à partir de cette situation de base qu'on ferait interagir les ions avec par exemple un signal optique [38]. L'excitation atomique se manifesterait alors par la présence de cohérence de spin nucléaire, donc d'une aimantation nucléaire transverse. Comme ce n'est pas le but premier ici, on aura recours à certaines techniques de RMN permettant de convertir une aimantation longitudinale en une aimantation transversale, comme par exemple une impulsion d'aire $\pi/2$ déjà rencontrée lors de la deuxième section de ce chapitre.

On suppose que cette aimantation nucléaire transverse est créée. Après une certaine évolution, le système peut se retrouver dans un de ces trois cas de figure suivants :

1. tous les ions sont dans une superposition d'état parfaite, et les moments magnétiques nucléaires ont tous la même direction. L'aimantation nucléaire est purement transverse. Dit de manière quelque peu impropre mais utile pour la compréhension, chaque ion est à moitié dans le niveau d'énergie E_1 et à moitié dans le niveau d'énergie E_2 .
2. tous les ions sont dans une superposition d'état parfaite, et les moments magnétiques nucléaires sont homogènement répartis autour du champ magnétique effectif. L'aimantation nucléaire est cette fois-ci nulle car la somme des moments magnétiques est destructive.
3. les ions sont statistiquement répartis entre les niveaux d'énergie E_1 et E_2 . Il n'y a pas d'aimantation nucléaire car cette situation correspond à l'équilibre thermique.

Le dernier cas se produit lorsque la relaxation transverse a complètement agi : les cohérences de spins nucléaires ont été détruites. Le deuxième cas arrive en présence d'élargissement inhomogène comme expliqué plus haut. Le premier cas est celui qui nous intéresse. En effet, si on applique une séquence de rephasage durant une évolution libre du système comme on l'a expliqué plus haut, on aura à un instant bien prévisible récupérer une aimantation nucléaire transverse.

Une impulsion d'aire $\pi/2$ permet également de convertir une aimantation transverse en une aimantation longitudinale, pour peu que la phase de cette impulsion ait la phase adéquate. Ainsi, si on applique à la fin d'une séquence de rephasage une impulsion d'aire $\pi/2$, on aura une forte aimantation longitudinale dans le premier cas. La population du niveau sondé sera alors extrême, tandis que dans les deux autres cas, le niveau sondé restera à moitié peuplé, l'impulsion d'aire $\pi/2$ de fermeture de la séquence de rephasage ne produisant rien.

Il semble possible d'établir un critère discriminatoire afin d'évaluer l'efficacité de la séquence de rephasage décrite plus haut.

2.5.3 Création d'une cohérence de spin

Pour convertir une aimantation longitudinale en une aimantation transverse, ou encore à l'échelle d'un spin, une population en une cohérence entre les deux niveaux Zeeman, on exploite communément une impulsion carrée d'aire $\pi/2$, qui doit être intense et de courte durée afin qu'elle soit identique pour l'ensemble des spins. Cependant, nous avons vu plus haut que la puissance requise pour ce type d'impulsions n'était pas accessible avec notre matériel. Une alternative réside dans un passage adiabatique rapide arrêté à mi-parcours, qu'on appelle demi-passage adiabatique (DPA). Dans nos expériences, on utilise un balayage linéaire de la fréquence, tandis que la pulsation de Rabi est maintenue constante tout le long de la durée de

l'impulsion. Il est défini de la manière suivante :

$$\phi(t) = \frac{1}{2}rt^2 + \phi_0, \Omega \neq 0, -\frac{\tau_p}{2} \leq t \leq 0 \quad (2.87)$$

La matrice décrivant un tel demi-passage adiabatique dans \mathcal{R} s'exprime :

$$\begin{aligned} M_{DPA} &= [P'(0)]^{-1}[P''(0)]^{-1}U(0, -\tau_p/2)P''(-\tau_p/2)P'(-\tau_p/2) \\ &= \begin{bmatrix} \cos \theta_0 \cos \phi_0 \cos \kappa + \sin \phi_0 \sin \kappa & \cos \theta_0 \cos \phi_0 \sin \kappa - \sin \phi_0 \cos \kappa & \sin \theta_0 \cos \phi_0 \\ \cos \theta_0 \sin \phi_0 \cos \kappa - \cos \phi_0 \sin \kappa & \cos \theta_0 \sin \phi_0 \sin \kappa + \cos \phi_0 \cos \kappa & \sin \theta_0 \sin \phi_0 \\ -\sin \theta_0 \cos \kappa & -\sin \theta_0 \sin \kappa & \cos \theta_0 \end{bmatrix} \end{aligned} \quad (2.88)$$

avec

$$\kappa = -\omega \frac{\tau_p}{2} + \frac{1}{8}r\tau_p^2 + \phi_0 - \chi(0, -\tau_p/2, \delta_\omega) \quad (2.90)$$

$$\theta_0 = \theta(0) \quad (2.91)$$

Regardons l'effet d'un tel DPA sur le vecteur de Bloch initial suivant :

$$\mathbf{b}_{init} = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{bmatrix} \quad (2.92)$$

Nous avons, en explicitant les expressions de $\cos \theta(0)$ et $\sin \theta(0)$:

$$M_{DPA} \cdot \mathbf{b}_{init} = \begin{bmatrix} \frac{\Omega}{\sqrt{\Omega^2 + \delta_\omega^2}} \cos(\phi(0)) \\ \frac{\Omega}{\sqrt{\Omega^2 + \delta_\omega^2}} \sin(\phi(0)) \\ \frac{\delta_\omega}{\sqrt{\Omega^2 + \delta_\omega^2}} \end{bmatrix} \quad (2.93)$$

Les vecteurs de Bloch finals se trouvent dans un plan vertical orienté d'un angle $\phi(0)$ avec le plan $(\mathbf{u}_X \mathbf{u}_Z)$. On remarque que cette expression n'est autre que celle calculée plus haut dans (2.70). La composante longitudinale est fonction du désaccord δ_ω . Concrètement, lors du DPA, Les spins hors résonance ont une composante longitudinale proportionnelle au désaccord δ_ω : les spins sont distribués dans ce plan.

Cependant, on s'intéresse dans nos expériences à l'aimantation, c'est à dire à la moyenne des moments magnétiques nucléaires individuels. A l'issue d'un DPA, la composante longitudinale A_{\parallel} vaut :

$$A_{\parallel} = \int_{-\Delta_{inh}}^{\Delta_{inh}} \frac{\delta_\omega}{\sqrt{\Omega^2 + \delta_\omega^2}} d\delta_\omega = 0 \quad (2.94)$$

La fonction à intégrer étant impaire, la composante longitudinale de l'aimantation est nulle. L'aimantation est donc purement transversale, donc contenu dans le plan horizontal de la sphère de Bloch. Aucune condition sur Ω n'a été requise pour la créer : un DPA est donc une technique adéquate permettant de créer une aimantation purement transversale.

En prenant $\phi_0 = 0$, tous les spins nucléaires seront tous en phase à l'issue du DPA, alignés selon \mathbf{u}_X . L'aimantation transversale s'exprime alors :

$$A_{\perp} = \int G(\delta_\omega) \frac{\Omega}{\sqrt{\Omega^2 + \delta_\omega^2}} d\delta_\omega \quad (2.95)$$

où $G(\delta_\omega)$ est la distribution en fréquence des spins nucléaires :

$$\int G(\delta_\omega) d\delta_\omega = 1 \quad (2.96)$$

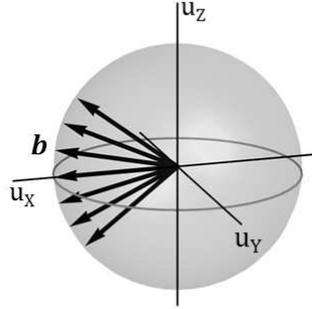


FIGURE 2.8 – Distribution des spins dans le plan $(\mathbf{u}_x \mathbf{u}_z)$. Les spins hors résonance ont une composante selon \mathbf{u}_x d'autant plus petite qu'ils sont éloignés de la pulsation centrale du champ radio-fréquence.

Détaillons encore un point. A l'issue du DPA, lorsque les ions Tm^{3+} étaient initialement dans le niveau Zeeman supérieur E_2 , ces derniers sont dans une superposition d'état de spin nucléaire. Les spins nucléaires sont rapprochés d'autant plus de la direction $-\mathbf{u}_z$ que leurs désaccords sont négatifs. En effet, si l'on se rappelle qu'un DPA n'est rien d'autre qu'un PAR arrêté à mi-parcours, alors ces spins très négativement désaccordés ont déjà effectué la majeure partie de leur basculement. Au contraire, les spins nucléaires très positivement désaccordés ont très peu changé de direction.

2.5.4 Demi-passage adiabatique retour

Le demi-passage adiabatique retour (rDPA) correspond au demi-passage adiabatique vu précédemment mais avec un taux de balayage opposé :

$$\phi'_{rDPA} = -\frac{1}{2}rt^2 + \phi'_0, \text{ pour } 0 \leq t \leq \frac{\tau_p}{2} \quad (2.97)$$

d'expression matricielle :

$$M_{rDPA} = P'^{-1}(\tau_p/2)P''^{-1}(\tau_p/2)U(\tau_p/2, 0)P''(0)P'(0) \quad (2.98)$$

Lorsqu'on l'explique, on obtient :

$$M_{rDPA} = \begin{bmatrix} -\cos \theta_0 \cos \phi'_0 \cos \kappa' - \sin \phi'_0 \sin \kappa' & -\cos \theta_0 \sin \phi'_0 \cos \kappa' + \cos \phi'_0 \sin \kappa' & \sin \theta_0 \cos \kappa' \\ \cos \theta_0 \cos \phi'_0 \sin \kappa' - \sin \phi'_0 \cos \kappa' & \cos \theta_0 \sin \phi'_0 \sin \kappa' + \cos \phi'_0 \cos \kappa' & -\sin \theta_0 \sin \kappa' \\ \sin \theta_0 \cos \phi'_0 & \sin \theta_0 \sin \phi'_0 & \cos \theta_0 \end{bmatrix} \quad (2.99)$$

avec

$$\kappa' = \chi(\tau_p/2, 0, \delta_\omega) - \omega \frac{\tau_p}{2} + \frac{1}{8}r\tau_p^2 - \phi'_0 \quad (2.100)$$

$$\theta_0 = \theta(0) \quad (2.101)$$

Condition sur les deux demi-passages adiabatiques

Lorsque \mathbf{b}_{init} toujours selon \mathbf{u}_Z subit la séquence constituée d'un DPA suivi d'un rDPA, il se trouve à l'issue de cette dernière dans la position :

$$M_{rDPA} \cdot M_{DPA} \cdot \mathbf{b}_{init} = \begin{bmatrix} \sin \theta_0 \sin \kappa' \sin(\phi_0 - \phi'_0) + \sin \theta_0 \cos \theta_0 \cos \kappa' (1 - \cos(\phi_0 - \phi'_0)) \\ \sin \theta_0 \cos \kappa' \sin(\phi_0 - \phi'_0) + \sin \theta_0 \cos \theta_0 \sin \kappa' (\cos(\phi_0 - \phi'_0) - 1) \\ \cos^2 \theta_0 + \cos(\phi_0 - \phi'_0) \sin^2 \theta_0 \end{bmatrix} \quad (2.102)$$

On veut retrouver la position initiale du vecteur de Bloch à l'issue de cette séquence, et ce indépendamment du désaccord. La condition à respecter est :

$$\phi_0 - \phi'_0 = 0[2\pi] \quad (2.103)$$

Les phases initiales du DPA et du rDPA doivent donc être égales.

Nous avons vu plus haut qu'un DPA permettait de convertir une aimantation purement longitudinale en une aimantation purement transversale (puisque l'aimantation est la moyenne de l'ensemble). Si on ne laisse pas les spins nucléaires évoluer, ils sont donc alignés lorsque on applique le rDPA.

Comme le montre l'expression (2.102), le rDPA reconvertit l'aimantation transversale présente dans le milieu en une aimantation longitudinale. Cependant, si l'on ne respecte pas la condition (2.103), cette reconversion n'est pas optimale. Nous pouvons l'expliquer basiquement en se rappelant qu'un passage adiabatique est équivalent à une rotation d'angle π autour d'un axe particulier, ce dernier étant fonction en outre des phases initiales et finales du passage. Dans notre séquence actuelle, lorsque les phases du DPA et du rDPA ne sont pas identiques, tout se passe comme si on faisait subir à un vecteur une demi-rotation autour d'un premier axe, puis une demi-rotation en sens inverse mais autour d'un autre axe : on ne peut dans ces conditions retrouver la position d'origine de ce vecteur.

La différence de phase entre le DPA et le rDPA est donc critique. Si la condition (2.103) n'est pas remplie, les spins nucléaires ne seront alignés initialement dans le plan horizontal ne pointeront pas dans la même direction $-\mathbf{u}_Z$ à l'issue du rDPA : on n'aura accès qu'aux projections des spins nucléaires sur l'axe $-\mathbf{u}_Z$. Au contraire, si les phases du DPA et du rDPA sont identiques, alors on la reconversion sera optimale. C'est dans ce cas de figure que l'on pourra alors s'assurer que la corrélation entre aimantation nucléaire transversale et niveau de population atomique sondé est complète et dépendant uniquement de phénomènes physiques.

Critère sur les spins nucléaires

Regardons maintenant ce qu'il se passe lorsqu'on laisse évoluer le vecteur Bloch entre les deux demi-passages adiabatiques. La matrice représentative de cette séquence test est :

$$M_{test} = M_{rDPA} F(\tau) M_{DPA} \quad (2.104)$$

En utilisant les expressions (2.75), (2.5.3), (2.91), (2.99) et (2.101), on a :

$$M_{test} \cdot \mathbf{b}_{init} = \begin{bmatrix} \frac{1}{2} \sin 2\theta_0 \cos \kappa' (1 - \cos(\omega_{12}t + \phi_0 - \phi'_0)) + \sin \theta_0 \sin \kappa' \sin(\omega_{12}t + \phi_0 - \phi'_0) \\ -\frac{1}{2} \sin 2\theta_0 \sin \kappa' (1 - \cos(\omega_{12}t + \phi_0 - \phi'_0)) + \sin \theta_0 \cos \kappa' \sin(\omega_{12}t + \phi_0 - \phi'_0) \\ \cos^2 \theta_0 + \cos(\omega_{12}t + \phi_0 - \phi'_0) \sin^2 \theta_0 \end{bmatrix} \quad (2.105)$$

On se place alors dans la situation favorable où (2.103) est vérifiée. L'expression (2.105) se simplifie légèrement :

$$M_{test} \cdot \mathbf{b}_{init} = \begin{bmatrix} \frac{1}{2} \sin 2\theta_0 \cos \kappa' (1 - \cos(\omega_{12}t)) + \sin \theta_0 \sin \kappa' \sin(\omega_{12}t) \\ -\frac{1}{2} \sin 2\theta_0 \sin \kappa' (1 - \cos(\omega_{12}t)) + \sin \theta_0 \cos \kappa' \sin(\omega_{12}t) \\ \cos^2 \theta_0 + \cos(\omega_{12}\tau) \sin^2 \theta_0 \end{bmatrix} \quad (2.106)$$

Après une évolution libre de τ , la reconversion de la cohérence de spin créée lors du DPA n'est pas optimale en général. Pour qu'elle le soit, il faut que :

$$\omega_{12}\tau = 0[2\pi] \quad (2.107)$$

Dans ce cas, les deux premières composantes s'annulent et on récupère bien toute la population dans le niveau Zeeman d'énergie E_1 . Ce résultat dépend donc de la vitesse angulaire du spin nucléaire. A l'issue du temps τ , si les spins nucléaire de l'ensemble n'ont pas retrouvé leur position d'origine, la reconversion des cohérences en population ne sera pas efficace, et l'aimantation longitudinale finale sera moindre que celle initiale.

Nous avons donc bien un critère discriminatoire, permettant d'évaluer l'efficacité de la séquence de rephasage par double passage adiabatique. Si le rephasage n'est que partiel, l'ensemble des spins nucléaires ne seront pas correctement alignés et cela se répercutera sur la population du niveau sondé. Au contraire, si la séquence est efficace comme démontré théoriquement plus haut, alors on le niveau sondé sera pleinement peuplé. L'utilisation d'un rDPA semble donc adaptée pour nos expériences.

2.5.5 Conservation de la phase globale de l'aimantation transversale

Dans une expérience d'écho de spins nucléaires classique, le champ oscillant est produit par une bobine entourant l'échantillon. La remise en phase des spins nucléaires produit une variation du flux magnétique qui induit dans la même bobine une force électro-motrice proportionnelle à l'aimantation transversale. La détection de ce signal RMN cependant ne permet pas de remonter à la phase globale de l'aimantation transversale : les différentes techniques de détection en RMN classique y sont insensibles.

La sous-section ci-dessus montre que la détection optique des échos de spins nucléaires est sensible à la phase globale de l'aimantation transversale. La phase du rDPA permettant la reconversion des cohérences de spins nucléaires en population impacte la mesure optique. Par cette technique de détection, on est capable de déterminer la phase globale de l'aimantation transversale, soit la direction dans laquelle l'écho est émis. Cette sensibilité à la phase sera démontrée expérimentalement au prochain chapitre.

2.6 Conclusion

L'inhomogénéité spatiale du champ magnétique externe, ainsi que le caractère réel du cristal sont les deux causes de l'élargissement inhomogène Δ_{inh} présent dans notre cristal $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$. Cet élargissement inhomogène conduit à une annulation rapide de l'aimantation nucléaire transversale, sur une échelle de temps bien plus courte que le temps de relaxation transversale T_2 des ions Tm^{3+} .

Une séquence d'écho de spins est un outil efficace permettant de s'affranchir des problèmes causés par Δ_{inh} . Sa mise en œuvre expérimentale fait habituellement intervenir une impulsion d'aire π . Cependant, il nous est impossible d'en produire des suffisamment larges de façon à couvrir Δ_{inh} , qui est de l'ordre de 500 kHz, lorsque la largeur spectrale des impulsions, donnée approximativement par la pulsation de Rabi, ne dépasse pas les 300 kHz avec des puissances radio-fréquence conséquentes.

Les passages adiabatiques rapides offrent une alternative à l'impulsion de rephasage d'aire π . En exploitant la représentation de la sphère de Bloch, nous avons montré leurs actions concrètes sur les spins nucléaires : mouvement équivalent à une rotation d'angle π autour d'un axe particulier qui dépend entre autre de la fréquence de transition du spin nucléaire, basculement non pas simultané mais successif des spins nucléaires. Nous avons également explicité les conditions requises dans lesquels les PARs s'appliquent en établissant notamment le critère d'adiabaticité. Un unique passage ne permet pas de refocaliser les spins nucléaires, bien que son action soit équivalente à une impulsion π . Il peut cependant servir à réaliser un transfert de population. En revanche, un double passage adiabatique permet effectivement de refocaliser correctement tous les spins nucléaires, indépendamment de Δ_{inh} .

Le faible nombre d'ions Tm^{3+} actifs dans notre cristal incite à utiliser une détection optique des échos de spins, en mesurant la population d'un des niveaux Zeeman du fondamental. Outre son rôle de sonde, la voie optique permet de préparer les ions dans le même état quantique. Nous avons explicité comment un demi-passage adiabatique pouvait convertir une aimantation longitudinale en une aimantation transversale, et remplacer convenablement l'impulsion d'aire $\pi/2$ classique. A l'issue de la séquence de rephasage, un autre demi-passage adiabatique adéquat est appliqué sur le système, permettant d'évaluer l'efficacité de la séquence. Cette technique de détection est sensible à la phase relative entre les deux demi-passages, mais également à la phase globale de l'aimantation nucléaire transversale.

Nous allons désormais aborder la mise en œuvre expérimentale de ces techniques. Le chapitre suivant décrira les divers éléments constituant les expériences et les résultats obtenus.

Chapitre 3

Résultats expérimentaux sur le rephasage des spins nucléaires

Ce chapitre présente tout d’abord une vue d’ensemble du dispositif expérimental. Il décrira ensuite le circuit magnétique permettant de générer un champ radio-fréquence, et donc les PARs. Enfin, on explicitera les différentes étapes conduisant à la démonstration des assertions du deuxième chapitre.

3.1 Dispositif expérimental

Le montage expérimental est représenté sur la figure (3.1). L’excitation lumineuse des ions Tm^{3+} est fournie par l’intermédiaire d’une diode laser à 793 nm en cavité étendue, fermée d’un côté par une face de la diode (l’autre étant traitée anti-reflet), et de l’autre côté par un réseau de diffraction en configuration de Littrow [39], illustrée sur la figure (3.2) : le réseau est placé de telle sorte que l’ordre -1 de diffraction soit réfléchi dans la même direction que l’émission de la diode laser. La cavité étendue affine la largeur de raie d’émission de la diode laser. Par ailleurs, la plage spectrale de réflectivité du réseau étant plus petite que la bande de gain de la diode laser, le faisceau de sortie correspondant à l’ordre 0 de diffraction est monomode avec une meilleure réjection des modes secondaires. Une description plus détaillée se trouve au deuxième chapitre de la thèse de Guillaume Gorju [40]. Cette architecture offre la possibilité d’accorder la diode laser (quelques cm^{-1}). L’angle d’incidence Littrow θ_L de cette dernière sur le réseau de diffraction est ajusté de façon à s’approcher le plus possible de la longueur d’onde de la transition $|1\rangle-|3\rangle$ de Tm^{3+} à 12604.32 cm^{-1} . Cette méthode d’accord du laser reste cependant assez grossière.

La diode laser est asservie en fréquence grâce à une boucle Pound-Drever-Hall [41], cette dernière agissant sur un cristal électro-optique placé à l’intérieur de la cavité étendue [42, 43]. La cavité Fabry-Pérot de référence, en verre ULE¹ et longue de 10 cm, a une finesse de l’ordre de 3000. On obtient une stabilité relative² de 250 Hz sur une durée de l’ordre de 10 ms [4].

1. Pour *Ultra-Low Expansion*, verre de coefficient de dilatation de l’ordre de 10^{-9} K^{-1} , à comparer aux métaux qui ont un coefficient de dilatation de l’ordre de 10^{-5} K^{-1} .

2. Par rapport à la stabilité de la cavité Fabry-Pérot de référence.

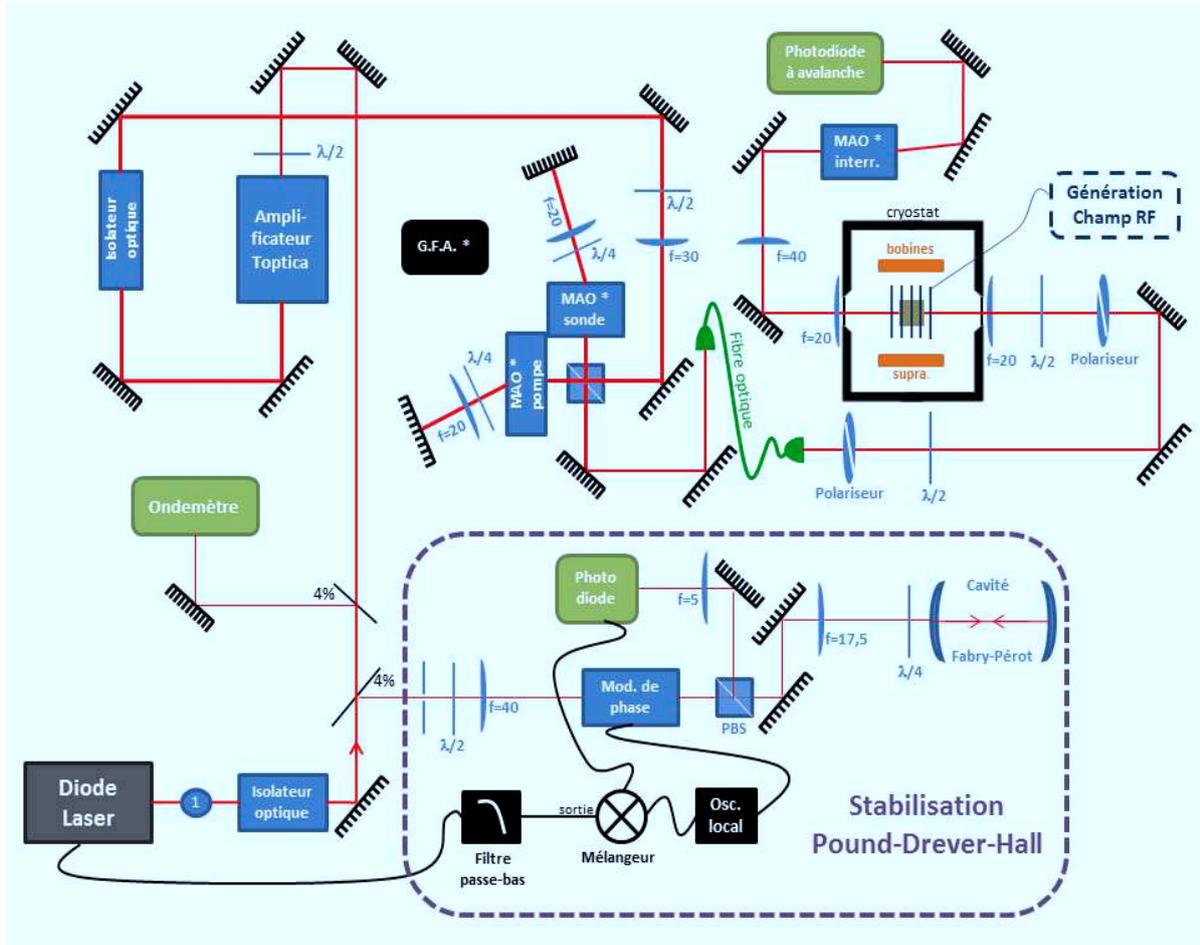


FIGURE 3.1 – Schéma expérimental. Les focales des lentilles sont exprimées en mm. Le train de prismes anamorphoseurs (TPA) optimise le mode spatial du faisceau pour l’amplificateur Toptica. L’astérisque indique que les trois modulateurs acousto-optiques (MAO) sont pilotés par un générateur de forme arbitraires (G.F.A.). Les barres verticales bleues sur le cristal représentent la bobine créant le champ radio-fréquence (rf). Le montage permettant sa génération sera développé plus loin dans ce chapitre.

La température du composant laser est asservie, permettant un contrôle de la longueur d’onde d’émission par de la diode par effet thermo-optique. Cet ajustement est très utilisé en pratique au cours des expériences. La cavité laser, comprenant le composant laser, la lentille de collimation, le réseau et le cristal électro-optique, est placée à l’intérieur d’un boîtier en laiton. Ce dernier est posé sur un élément Peltier qui régule la température de la cavité.

Le faisceau optique, initialement d’une puissance de l’ordre de 8 mW, passe par un amplificateur Toptica, modèle BoosTA. Un train de prismes anamorphoseurs (TPA) permet de définir le mode spatial du faisceau afin que l’efficacité de l’amplificateur soit maximale. La puissance optique à la sortie peut être ajustée sur une plage comprise entre 60 et 400 mW. Le faisceau est ensuite séparé en deux par un cube séparateur de polarisation ; un faisceau de forte puissance pour réaliser du pompage optique (dit *pompe*) et un autre de faible puissance pour mesurer la population des niveaux Zeeman des ions Tm^{3+} (dit *sonde*). La répartition de la puissance dans chaque faisceau est réalisée via une lame $\lambda/2$ placée avant le cube séparateur de polarisation. Également positionnée avant ce dernier, la lentille de focale 300 mm permet de focaliser chacun des faisceaux au centre d’un modulateur acousto-optique (MAO) piloté par un générateur de

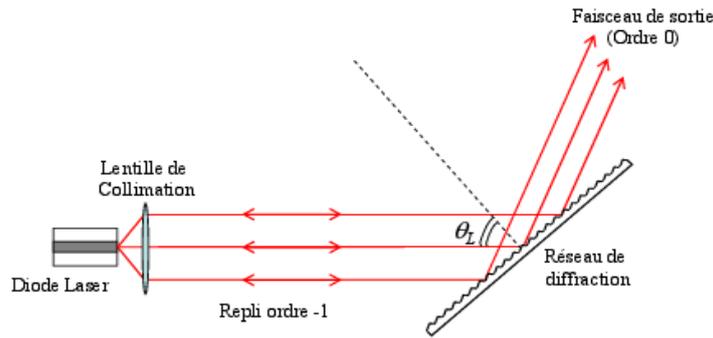


FIGURE 3.2 – Configuration de la cavité étendue. L'angle θ_L est l'angle d'incidence Littrow de l'émission de la diode laser sur le réseau.

formes arbitraires (GFA) Tektronix AWG5004 avec un taux d'échantillonnage de 600 MHz.

Les modulateurs acousto-optique, utilisés ici en *double passage* permettent de moduler les faisceaux en amplitude et en phase. Ils sont constitués d'un cristal de TeO_2 . Un transducteur piézo-électrique génère une onde acoustique à la fréquence f_a dans ce cristal, créant à l'intérieur de celui-ci un réseau d'indice de réfraction. Le faisceau optique de fréquence f_0 se propageant à travers ce cristal est diffracté en plusieurs ordres m . La fréquence d'un ordre m , subissant un décalage en fréquence par rapport à f_0 proportionnel à f_a , s'exprime comme : $f_0 + m f_a$.

Les deux MAOs utilisés ont une fréquence de fonctionnement de l'ordre de 90 MHz, et un temps de montée inférieur à 50 ns. Après le premier passage du faisceau d'entrée dans le MAO sonde (pompe), l'ordre -1 est sélectionné et traverse successivement une lame quart d'onde puis une lentille convergente avant d'être réfléchi par le miroir. La lentille convergente et le miroir sont disposés de façon à former un télescope de grandissement -1 , qui forme l'image du MAO sonde (pompe) sur lui-même. Le miroir et le MAO sonde (pompe) sont donc placés à distance focale de la lentille convergente. Après le second passage dans l'AOM sonde (pompe), on récupère le faisceau de sortie dans la même direction que le faisceau entrant comme on peut le voir sur la figure (3.1). La double traversée de la lame quart d'onde tourne la polarisation de 90° , permettant de séparer le faisceau de sortie du faisceau d'entrée grâce au cube séparateur de polarisation.

Ce dispositif permet de conserver les deux faisceaux sonde et pompe superposés, et avec des polarisations croisées. Par ailleurs, il double le décalage en fréquence entre le faisceau d'entrée et le faisceau de sortie. Ils sont tous deux injectés dans une même fibre optique monomode qui joue le rôle d'un filtre spatial, et place les deux faisceaux dans le même mode spatial. L'efficacité de l'injection est comprise entre 60% et 70%. A la sortie, un polariseur permet de répartir la puissance optique entre le faisceau sonde et pompe ; tandis qu'une lame demi-onde tourne la polarisation du faisceau de façon à optimiser la réflexion sur les miroirs. Enfin, la polarisation du faisceau est ajustée par la lame demi-onde placée juste avant le cryostat, afin de sélectionner les ions de travail.

Le faisceau optique est focalisé sur le cristal : le diamètre est alors de $100 \mu\text{m}$. A la sortie du cristal, le signal optique est collecté sur une photodiode à avalanche (PA) puis analysé à l'aide d'un oscilloscope. Avant la collecte, le faisceau passe par un autre MAO également piloté par le GFA. Seul l'ordre -1 de diffraction est envoyé sur la PA. Le faisceau sonde et pompe étant superposés, il est nécessaire de bloquer ce dernier dont la forte puissance risque

d'endommager la PA. Ce MAO joue donc essentiellement le rôle d'interrupteur, en diffractant ou non le faisceau.

Le cristal $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ utilisé, dopé à 0.1% a été fabriqué par Scientific Materials. Parallélépipédique, de dimensions $3 \times 4 \times 5 \text{ mm}^3$, les faces d'entrée et de sortie sont perpendiculaires à l'axe $[\bar{1}10]$ du cristal. Les arrêtes les plus longues sont parallèles à l'axe de propagation du faisceau optique. Le cristal se situe à l'intérieur d'un cryostat à réservoir d'hélium liquide, qui permet de descendre jusqu'à une température de 1.7 K, température à laquelle toutes les expériences s'effectuent.

Deux bobines supraconductrices (rectangles oranges sur la fig (3.1) sont plongées dans les réservoirs d'hélium liquide et permettent d'obtenir un champ magnétique ajustable jusqu'à 6 T. Ce champ statique est perpendiculaire à l'axe de propagation du faisceau et parallèle à la table optique. Il permet de lever la dégénérescence de spin nucléaire évoquée au premier chapitre et d'obtenir une structure en Λ des niveaux Zeeman.

Le cristal, placé à l'intérieur d'un porte-échantillon, est amené à l'intérieur du cristal via une canne (3.3). L'axe de la canne étant perpendiculaire au champ statique, on l'utilise comme référence pour orienter le cristal, et déterminer ainsi l'angle Θ entre la direction $[001]$ du repère cristallin et le champ statique. Le faisceau optique arrivant perpendiculairement sur la face d'entrée du cristal, l'angle ϕ est fixé, par le clivage des faces du cristal, à 45° .

Le champ radio-fréquence (rf) permettant la manipulation des spins est produit par une bobine disposée autour du porte-échantillon. Elle est représentée par les petites barres et le cercle bleu respectivement sur la figure (3.1) et (3.3). Le champ créé au centre de la bobine est dirigé le long de l'axe de propagation de la lumière dans le cristal, et donc orthogonal au champ statique.

La polarisation $[111]$ permet de sélectionner uniquement les ions des sites 1, 3, et 5, comme expliqué au précédent chapitre. Dans la configuration angulaire du champ magnétique statique $\Theta = -49.4^\circ$, les ions du site 1 possèdent un splitting magnétique de 305 MHz/T, beaucoup plus grand que celui des sites $\{3, 5\}$ de 34 MHz/T, comme l'indique la figure (1.6); ce qui implique une forte différence des fréquences de transition de spin. Une bon choix de la fréquence du champ radio-fréquence permettra donc de sélectionner uniquement les ions des sites $\{3, 5\}$.

L'efficacité d'un passage adiabatique rapide repose sur le respect de la condition d'adiabaticité :

$$\Omega^2 > r = \frac{\Delta_b}{\tau_p} \quad (3.1)$$

où Δ_b est la plage de balayage du PAR. Cette efficacité dépend aussi des conditions au début et à la fin du PAR explicitées au deuxième chapitre par la relation (2.56). On doit cependant légèrement la modifier. En effet, le PAR devant basculer successivement les différentes classes de fréquences, la plage de balayage Δ_b doit contenir l'intégralité de l'élargissement inhomogène Δ_{inh} et même davantage pour prendre en compte les spins nucléaires se trouvant sur les ailes de la transition. Il faut donc plutôt que (2.56), satisfaire l'inégalité :

$$\Delta_b \gg \Delta_{\text{inh}} \quad (3.2)$$

On se penche désormais plus en détail sur la pulsation de Rabi radio-fréquence de notre système, ainsi que sur la génération du champ radio-fréquence.

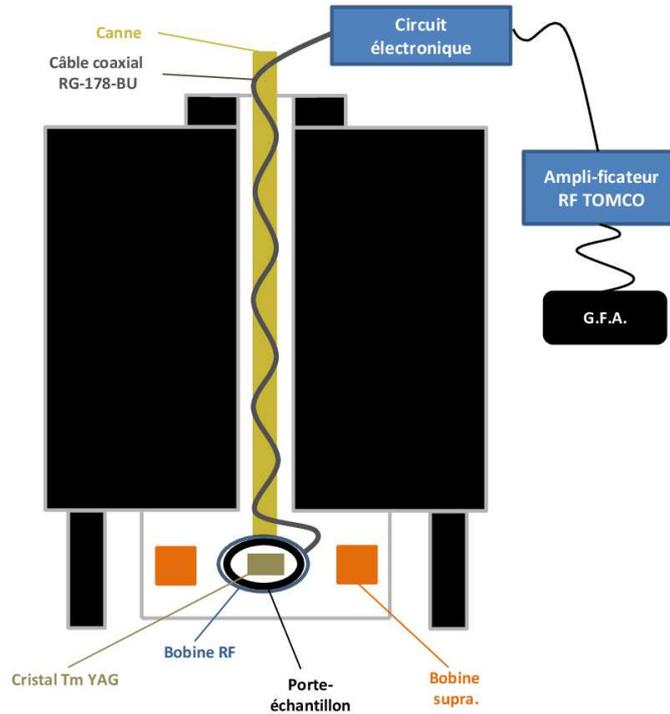


FIGURE 3.3 – Schéma simplifié du cryostat et de la disposition des éléments. Vue de face, dans la direction du faisceau optique.

3.2 Excitation radio-fréquence

La pulsation de Rabi Ω est le produit du facteur gyromagnétique du noyau γ_n par l'amplitude effective du champ oscillant B_o vu par les ions Tm^{3+} , et correspond au terme de couplage explicité au premier chapitre. Elle a été tracée au premier chapitre pour tous les sites (figure 1.8). Il s'avère que les courbes sont identiques pour les ions des sites 3 et 5. On reporte cette courbe uniquement pour ces sites sur la figure (3.4). Pour l'orientation choisie $(\Theta, \Phi) = (-49.4^\circ, 45^\circ)$, on obtient, pour un champ radio-fréquence de 1 mT, une fréquence de Rabi pour les ions des sites 3 et 5 :

$$\frac{\Omega}{2\pi} = 95 \text{ kHz} \quad (3.3)$$

Intéressons nous précisément à la création du champ radio-fréquence.

3.2.1 La bobine

La bobine est un simple solénoïde constitué d'un fil de cuivre. Les dimensions r , l_b , et N (tableau 3.1) du solénoïde désignant respectivement son rayon, sa longueur et son nombre de spires sont contraintes par les dimensions du cristal et du cryostat. Elles fixent en particulier son inductance L_B

$$L_B = \frac{\pi\mu_0\mu_r N^2 r^2 (\sqrt{r^2 + l_b^2} - r)}{l_b} \approx 655 \text{ nH} \quad (3.4)$$

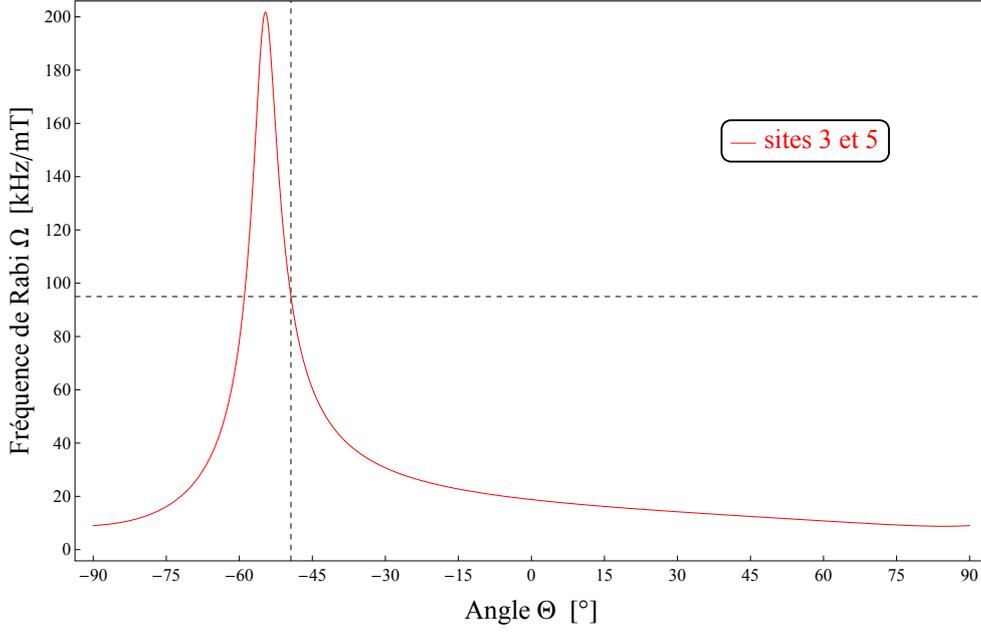


FIGURE 3.4 – Fréquence de Rabi radio-fréquence Ω , exprimé en kHz/mT, en fonction de l’orientation du champ statique (Θ). Pour l’orientation qui optimise le rapport de branchement, on obtient une fréquence de Rabi de 95 kHz pour un champ radio-fréquence de module 1 mT.

où μ_0 est la perméabilité du vide, et μ_r la perméabilité relative du cristal. Les ions Tm^{3+} sont ferromagnétiques pour des températures inférieures à 22 K [44, 45, 46]. La valeur de μ_r est cependant délicate à déterminer, puisque le cristal ne remplit pas complètement le volume intérieur de la bobine. Par ailleurs, les ions Tm^{3+} sont en infime quantité compte-tenu du faible dopage du cristal. Nous estimons cette valeur de l’ordre de $\mu_r \approx 1.3$. L’expression du champ créé par le solénoïde s’écrit :

$$B_o = \mu_0 \mu_r \frac{N}{2} \frac{1}{\sqrt{(\frac{l_b}{2})^2 + r^2}} I_B \quad (3.5)$$

La résistance de la bobine est fixée par les caractéristiques du fil de cuivre, à savoir sa longueur l_{Cu} , son rayon r_{Cu} et sa résistivité ρ_{Cu} , rassemblées dans le tableau (3.1). Elle est cependant augmentée par l’effet de peau, phénomène qui fait qu’à fréquence élevée (à partir du MHz), le courant a tendance à ne circuler qu’à la surface du métal. La profondeur de peau pour une pulsation ω donnée s’exprime :

$$p(\omega) = \sqrt{\frac{2\rho_{Cu}}{\mu_0\omega}} \quad (3.6)$$

et vaut environ 0.6 μm à 15 MHz. La résistance de la bobine s’obtient alors

$$R_B = \frac{\rho_{Cu} l_{Cu}}{\pi(r_{Cu}^2 - (r_{Cu} - p(\omega))^2)} \propto \sqrt{\omega} \quad (3.7)$$

qui varie donc comme la racine carrée de ω . On montre, en utilisant les valeurs du tableau (3.1), que cette résistance est négligeable. On trace sur la figure (3.5) la résistance de la bobine ainsi que le rapport entre la partie imaginaire et réelle de l’impédance $Z_B = R_B + jL_B\omega$.

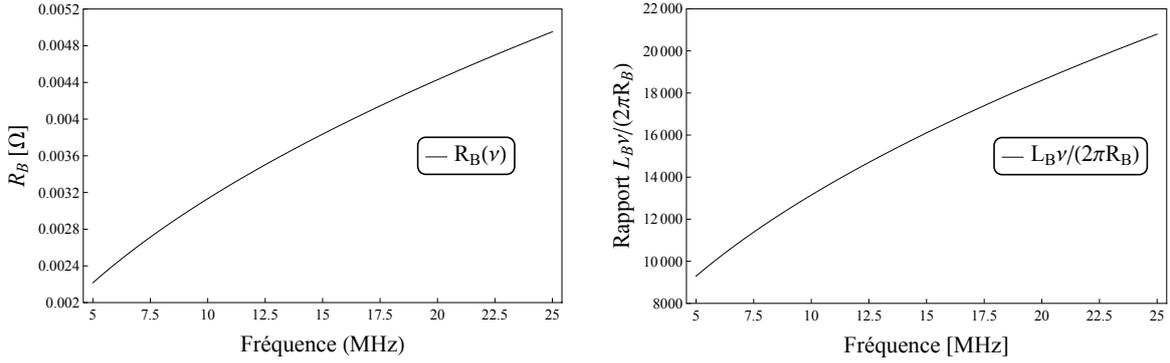


FIGURE 3.5 – Paramètres du solénoïde calculés à partir des expressions (3.6) et (3.7), et des valeurs du tableau (3.1). A gauche, la graphie représente la variation de la résistance de la bobine en fonction de la fréquence. A droite, le rapport entre la partie imaginaire et réelle de l'impédance $Z_B = R_B + jL_B\omega$.

3.2.2 Principes du circuit résonnant avec adaptation d'impédance

Le champ radio-fréquence permettant la manipulation des spins nucléaires Tm^{3+} est produit par une bobine, traversée par un courant électrique I . Ce champ doit répondre à deux critères :

- l'éclatement des niveaux Zeeman des ions Tm^{3+} est choisi autour de 15 MHz. La fréquence du champ oscillant doit donc être de cet ordre de grandeur.
- L'amplitude du champ oscillant doit prendre des valeurs suffisamment appréciables afin de pouvoir satisfaire le critère d'adiabaticité des PARs.
- le spectre du champ oscillant doit être suffisamment large par rapport à l'élargissement inhomogène, afin que le critère d'adiabaticité soit vérifié pendant tout le long du passage adiabatique. En effet, la fréquence du champ oscillant variera linéairement au cours d'un passage adiabatique, tandis que la pulsation de Rabi dépendra du profil de ce spectre. Il ne faut donc pas que le profil du spectre du champ oscillant soit trop piqué.

Pour les satisfaire, on utilise une bobine placée dans un circuit résonnant RLC, appelé aussi circuit bouchon. Ce circuit permet d'emmagasiner de l'énergie. Le courant circulant à l'intérieur du circuit résonnant et donc dans la bobine est très supérieur au courant i fourni par le générateur. Un circuit d'adaptation d'impédance est mis en série avec le circuit bouchon. Il permet de diriger entièrement l'énergie disponible vers la bobine, et de se prémunir des pertes par réflexion.

Le schéma électronique d'un tel circuit résonnant est représenté sur la figure 3.6. Le signal est délivré par un générateur de forme arbitraire (GFA). L'impédance du GFA est de $Z_0 = 50$ Ohms et les tensions utilisées en pratique s'évaluent de 0 mV à 350 mV. Elles conduisent à des puissances initiales du signal de 0 à 2.45 mW.

Ce signal est amplifié grâce à un amplificateur radio-fréquence TOMCO BT-00500. Il opère sur la plage de fréquence 500 kHz – 150 MHz. L'impédance d'entrée et de sortie est de 50 Ohms, le temps de montée est de l'ordre de 800 ns et le temps de descente de l'ordre de 200 ns. Sur la gamme de fréquence allant de 10 MHz à 20 MHz, le gain est en moyenne de 58 dB. La puissance maximale de sortie est de 500 W.

L'impédance du circuit bouchon varie en fonction de la fréquence et passe par un maximum qui définit la pulsation de résonance du circuit. Cette résonance s'exprime :

$$\omega_{cb} = \frac{1}{\sqrt{L_B C}} \quad (3.8)$$

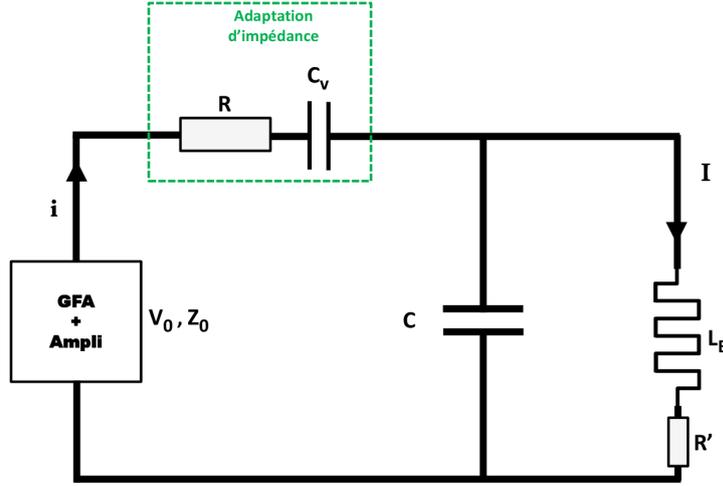


FIGURE 3.6 – Schéma du circuit résonant avec adaptation d'impédance. La bobine d'inductance L_B et la capacité C constituent le circuit bouchon. L'ajout d'une résistance R' dans ce dernier permet d'élargir la résonance du circuit. La résistance R et la capacité variable C_v réalisent l'adaptation d'impédance. La source est composée d'un générateur de formes arbitraires (GFA) et de l'amplificateur radio-fréquence. L'ensemble a une impédance $Z_0 = 50$ Ohms, et délivre une tension V_0 .

Compte-tenu de la valeur de l'inductance L_B de la bobine, la capacité C doit être de l'ordre de 160 pF pour que la fréquence de résonance du circuit soit autour de 15 MHz. Pour amplifier de manière significative le courant fourni par la source, il faut optimiser le transfert de puissance entre la source et la bobine. Pour ce faire, on réalise l'adaptation d'impédance : l'impédance totale Z_t du circuit doit être égale à l'impédance de la source. Cette condition s'écrit :

$$Z_0 = Z_t = R + \frac{1}{jC_v\omega} + \frac{R' + jL_B\omega}{1 - L_B C \omega^2 + jR' C \omega} \quad (3.9)$$

$$= R + \frac{1}{jC_v\omega} + \frac{R \left(1 + \frac{Q\omega}{\omega_{cb}}\right)}{1 - \frac{\omega^2}{\omega_{cb}^2} + \frac{j\omega}{Q\omega_{cb}}} \quad (3.10)$$

où

$$Q = \frac{L_B \omega_{cb}}{R'} \quad (3.11)$$

est le facteur de qualité du circuit résonnant. L'adaptation d'impédance dépend de ce facteur de qualité. Pour la réaliser, il faut que $Z_t = Z_0$, soit que la partie imaginaire de l'impédance totale soit nulle. La pulsation qui réalise cette annulation est la fréquence d'adaptation d'impédance, nommée également *fréquence d'accord* ω_a . Elle est légèrement plus basse que la fréquence de résonance du circuit bouchon ω_{cb} .

On regarde alors le gain en courant, fonction de ω , défini comme le rapport entre le courant I qui circule dans la bobine et le courant délivré par la source à l'adaptation d'impédance. Ce

gain s'exprime :

$$G(\omega) = \frac{I(\omega)}{i(\omega_a)} \quad (3.12)$$

Le maximum du gain sera atteint pour une certaine pulsation ω_{res} qui sera celle qui maximisera l'amplitude du champ radio-fréquence.

Il faut bien noter les différentes pulsations calculées : le circuit bouchon seul présente une pulsation de résonance ω_{cb} correspondant à un maximum de son impédance. Puis on réalise une adaptation d'impédance afin de minimiser les pertes de transferts de puissance entre la source et la bobine. Elle est réalisée pour une certaine pulsation ω_a , qui annule la partie imaginaire de l'impédance totale du circuit composé du circuit bouchon, de la résistance R et de la capacité variable C_v . Le maximum du courant I traversant la bobine est obtenu pour une certaine pulsation ω_{res} . A cette pulsation, l'amplitude du champ radio-fréquence, donc la pulsation de Rabi des ions Tm^{3+} sera maximale.

Il existe cependant une contrainte pratique : l'alimentation électrique composée du GFA et de l'amplificateur radio-fréquence ne peut pas être à proximité de la bobine qui se situe à l'intérieur du cryostat. Il est donc nécessaire d'utiliser un câble d'alimentation qui présente des propriétés propres telles la capacitance linéique, ou encore l'impédance caractéristique dont il faudra tenir compte. L'incorporation d'un câble, ou encore d'une ligne de transmission modifie, complexifie comme nous allons le voir, le circuit magnétique et l'obtention des différentes fréquences ω_{cb} , ω_a et ω_{res} .

3.2.3 Réalisation pratique : insertion d'une ligne de transmission dans le circuit résonnant

La ligne coaxiale se distingue d'un composant électronique ordinaire dans la mesure où sa longueur l est suffisamment élevée pour ne plus être totalement négligeable devant les longueurs d'onde des signaux transmis. Nous utilisons un câble coaxial RG-178-BU d'une longueur $l = 1.22$ m. A l'intérieur du câble, les signaux se propagent à une vitesse $v = 0.7c$ où c est la vitesse de la lumière. Pour un signal de pulsation $\omega = 2\pi \cdot 15 \cdot 10^6 \cdot \text{rad}\cdot\text{s}^{-1}$, la longueur d'onde λ du signal est de 14 m : le rapport l/λ avoisine donc les 10%.

Il nous faut un modèle pour cette ligne prenant en compte le temps de propagation du signal. Par ailleurs, il faut également prendre en compte la capacitance et l'inductance du câble, ainsi que sa résistance et sa conductance décrivant les pertes lors de la transmission du signal.

On utilise un modèle à constantes réparties, c'est à dire un modèle où les caractéristiques de la ligne coaxiale (capacitance, inductance, résistance, conductance) sont délocalisées. La ligne est vue comme une infinité de tronçons de longueur infinitésimale dz mis en cascade. Chaque tronçon est alors décrit par une capacitance linéique K , une inductance linéique Λ , une résistance linéique ρ et une conductance linéique G , comme représenté sur la figure (3.7).

Le nouveau schéma du circuit magnétique est illustré sur la figure (3.7). On exploite la capacitance de la ligne coaxiale pour réaliser, avec la bobine, le circuit bouchon.

La tension et le courant à l'intérieur du câble sont déterminés en résolvant les équations de propagation suivantes :

$$\begin{cases} \partial_z V = -Z_l i \\ \partial_z i = -Y_l V \end{cases} \quad (3.13)$$

Éléments	caractéristiques	valeurs	unités
fil de cuivre	l_{Cu}	$35 \cdot 10^{-2}$	m
	r_{Cu}	$0.5 \cdot 10^{-3}$	m
	ρ_{Cu}	$2 \cdot 10^{-11}$	$\Omega \cdot m$
Solénoïde	l_b	$1.8 \cdot 10^{-2}$	m
	r	$0.5 \cdot 10^{-2}$	m
	N	11	spires
	μ_0	$4\pi \cdot 10^{-7}$	$H \cdot m^{-1}$
	μ_r	≈ 1.3	
	L_B	$\approx 655 \cdot 10^{-9}$	H
câble coaxial	l	1.2	m
	Z_c	50 ± 2	Ω
	K	$95 \cdot 10^{-12}$	$F \cdot m^{-1}$
	v	$0.7c$	$m \cdot s^{-1}$
	α	0.05	m^{-1}
adapt. d'impédance	C_v	$[31.5 - 73] \cdot 10^{-12}$	F
	R	0	Ω
Source	Z_0	50	Ω

TABLE 3.1 – Paramètres des différents éléments du circuit radio-fréquence. la constante c représente la vitesse de la lumière dans le vide.

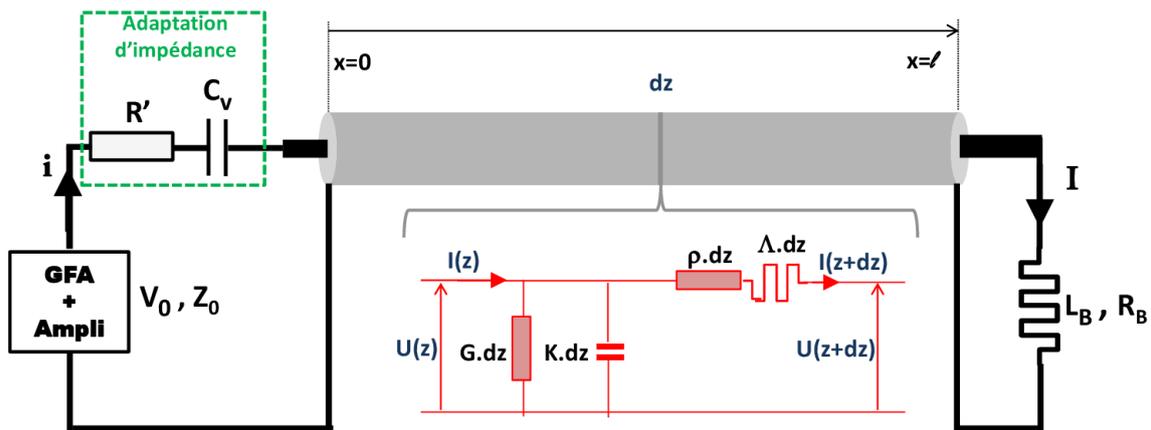


FIGURE 3.7 – Circuit magnétique avec la ligne coaxiale. Le circuit LC est formé par le solénoïde et le câble coaxial, où l'on exploite la capacitance de ce dernier. Un tronçon de la ligne de longueur dz est décrit par les quatre paramètres par unité de longueur, K , Λ , ρ et G . Les autres éléments du circuit restent inchangés par rapport à (3.6).

où $Z_l = \rho + j\Lambda\omega$, $Y_l = G + jK\omega$ ¹. Les équations se combinent pour produire l'équation d'onde de la tension :

$$\partial_{z^2}^2 V - \gamma^2 V = 0 \quad (3.14)$$

où $\gamma = \sqrt{Y_l Z_l}$ est la constante de propagation. La solution de cette équation s'exprime :

$$V(z) = Ae^{\gamma z} + Be^{-\gamma z} \quad (3.15)$$

Il s'ensuit que :

$$i(z) = -\frac{1}{Z_c}(Ae^{\gamma z} - Be^{-\gamma z}) \quad (3.16)$$

où Z_c est l'impédance caractéristique de la ligne coaxiale, définie comme :

$$Z_c(\omega) = \sqrt{\frac{Z_l}{Y_l}} = \sqrt{\frac{\rho + j\Lambda\omega}{G + jK\omega}} \quad (3.17)$$

La ligne est fermée par la bobine d'inductance L_B . Au bout de la ligne, la tension et le courant sont reliés par :

$$V(l) = i(l)jL_B\omega \Leftrightarrow -Z_c \frac{Ae^{\gamma l} + Be^{-\gamma l}}{Ae^{\gamma l} - Be^{-\gamma l}} = jL_B\omega \quad (3.18)$$

On en déduit alors l'expression du rapport des deux constantes :

$$\frac{B}{A} = \frac{\frac{jL_B\omega}{Z_c} + 1}{\frac{jL_B\omega}{Z_c} - 1} e^{2\gamma l} \quad (3.19)$$

L'impédance à l'entrée de la ligne coaxiale s'écrit finalement :

$$Z_{in}(\omega) = \frac{V(0)}{i(0)} = -Z_c \frac{A+B}{A-B} = \frac{Z_c \tanh(\gamma l) + jL_B\omega}{1 + \frac{jL_B\omega}{Z_c} \tanh(\gamma l)} \quad (3.20)$$

Les câbles coaxiaux sont conçus pour que le signal à transmettre subissent le moins d'altération possible. On se place ici dans le régime de faibles pertes. Dans ce cas, l'impédance caractéristique est réelle :

$$Z_c = \sqrt{\frac{\Lambda}{K}} \quad (3.21)$$

La constante de propagation γ peut également s'écrire :

$$\gamma = \alpha + j\beta \quad (3.22)$$

avec α coefficient d'atténuation en m^{-1} et β la constante de phase en $rad \cdot m^{-1}$. Dans un tel régime, on montre (en négligeant les termes du second ordre) que la ligne est non dispersive et que l'atténuation ne dépend pas explicitement de ω :

$$\begin{cases} \beta \approx \omega \sqrt{\Lambda K} = \frac{\omega}{v} \\ \alpha \approx \frac{1}{2} \left(\frac{\rho}{Z_c} + G Z_c \right) \end{cases} \quad (3.23)$$

Le fabricant fournit généralement la capacitance linéique K ainsi que l'impédance caractéristique Z_c du câble, ce qui permet ensuite de remonter à l'inductance linéique. Il fournit également une estimation du coefficient d'atténuation α décrivant les pertes de la ligne. Tous ces paramètres sont répertoriés dans le tableau (3.1).

1. Dans cette section, l'unité imaginaire sera noté j et non i .

Fréquence de résonance du circuit bouchon

L'impédance du circuit bouchon est donnée par Z_{in} (3.20). Son module est maximal pour la pulsation de résonance ω_{cb} . On représente ce module sur la figure (3.8), tracée à partir des paramètres du tableau (3.1). On obtient une fréquence propre $\nu \approx 17.0$ MHz.

Si l'on considère qu'il n'y a pas de pertes ($\alpha = 0$), la résonance se produit, d'après (3.20) et (3.23) lorsque :

$$\frac{L_B \omega}{Z_c} \tan\left(\frac{\omega l}{v}\right) = 1 \quad (3.24)$$

Si l'on considère de surcroît que la ligne est suffisamment courte devant la longueur d'onde λ du signal de façon à considérer une propagation quasi instantanée de ce dernier, alors

$$\frac{l}{\lambda} \ll 1 \Leftrightarrow \frac{\omega l}{v} \ll 1 \quad (3.25)$$

Alors (3.24) se simplifie :

$$\omega^2 L_B K l = 1 \quad (3.26)$$

où Kl n'est autre que la capacitance du câble coaxial. Ce calcul aboutit à une fréquence de résonance du circuit bouchon de l'ordre de 18.4 MHz. Cet écart par rapport à celle obtenue sur la figure (3.8) vient du fait que l'approximation faite dans l'expression (3.25) n'est pas satisfaisante dans notre situation. En effet, l'application numérique donne, pour une fréquence propre de résonance du circuit bouchon de 17 MHz correspondant au maximum de l'impédance Z_{in} :

$$\omega \frac{l}{v} = 2\pi \cdot 17 \cdot \frac{1.2}{300} = 0.42 \quad (3.27)$$

qui n'est pas négligeable devant l'unité. La modélisation précise de la ligne de transmission est donc capitale pour un dimensionnement correct du circuit magnétique.

Adaptation d'impédance

Comme on l'a mentionné plus haut, il est important de réaliser l'adaptation d'impédance, afin que la source transmette le maximum de puissance à la bobine. L'impédance de la source formée par le GFA et l'amplificateur radio-fréquence vaut $Z_0 = 50$ Ohms. L'impédance totale Z_t du reste du circuit doit donc lui être égale. Ceci s'écrit :

$$Z_t(\omega) = R + \frac{1}{jC_v \omega} + Z_{in}(\omega) = Z_0 \quad (3.28)$$

Comme mentionné plus haut, la résistance R et la capacité variable C_v vont permettre de se rapprocher le plus possible de cette égalité. Réaliser (3.28) est équivalent à :

$$\begin{cases} |Z_t(\omega)| = Z_0 \\ \arg(Z_t(\omega)) = 0 \end{cases} \quad (3.29)$$

La capacité C_v permet d'annuler la phase de $Z_t(\omega)$ pour une certaine fréquence d'accord ν_a . Il est possible cependant que pour une fréquence donnée, l'impédance totale ne soit pas exactement égale à Z_0 , d'où l'ajout dans certains cas de la résistance R . L'ensemble est illustré sur la figure (3.9), avec les valeurs du tableau (3.1).

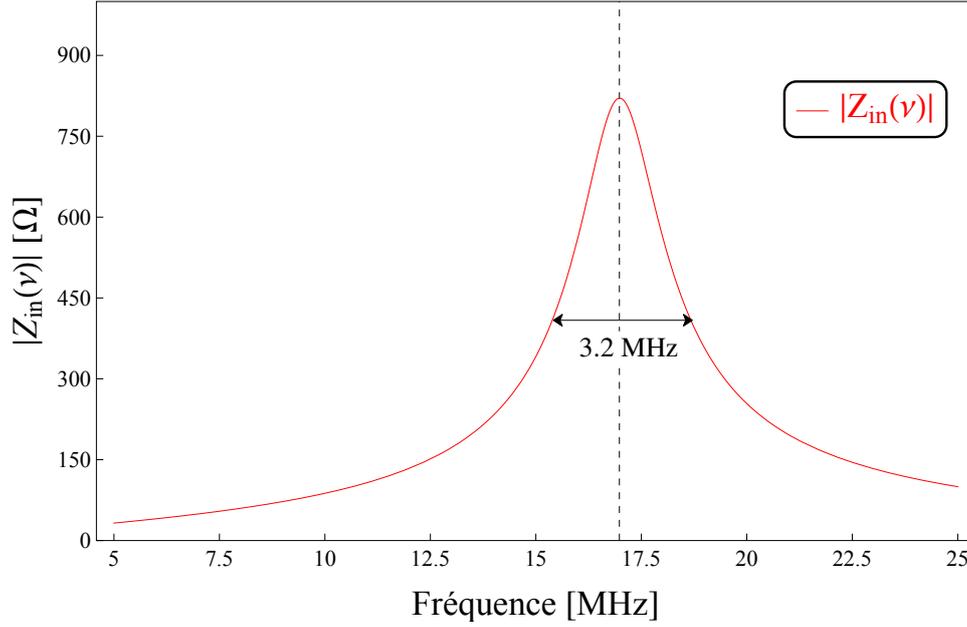


FIGURE 3.8 – Profil théorique de la résonance du circuit bouchon, donné par l'équation (Eq 3.20). La résonance est atteinte pour une fréquence $\nu_{cb} = \omega_{cb}/2\pi = 16.98$ MHz. Avec un coefficient de pertes $\alpha = 0.05$ m⁻¹ du tableau (Tab 3.1), la largeur de la résonance est estimée à 3.2 MHz.

Pour déterminer cette fréquence d'accord en pratique, on utilise un coupleur directionnel. Il permet de mesurer la composante réfléchie du signal, cette composante étant nulle lorsque le circuit est adapté. Le taux de réflexion s'exprime :

$$\Gamma(\omega) = \frac{Z_t(\omega) - Z_0}{Z_t(\omega) + Z_0} \quad (3.30)$$

On représente sur la figure (3.10), ce taux de réflexion Γ en utilisant les valeurs du tableau (3.1), aussi qu'une courbe expérimentale obtenue.

La courbe expérimentale de la figure (3.10) représente la tension réfléchie. La tension à l'entrée de l'amplificateur était de 0.110 V_{pp}. Le balayage de la fréquence a été réalisé sur la plage 10–18 MHz, sur une durée de 500 μs. La valeur précise de la capacité variable C_v n'était pas accessible. Pour déterminer expérimentalement la fréquence d'accord, on variait C_v de façon à ce que la réflexion soit la plus faible possible. La largeur de la courbe du taux de réflexion est plus faible que la largeur de la résonance initiale du circuit bouchon. Il y a un bon accord qualitatif entre le modèle et les mesures.

Spectre du courant traversant la bobine

On peut désormais estimer complètement le facteur d'amplification du courant à l'intérieur du solénoïde. D'après (3.16), il s'exprime :

$$I(\omega) = -\frac{1}{Z_c} (Ae^{\gamma t} - Be^{-\gamma t}) \quad (3.31)$$

Une première relation entre les deux coefficients A et B est fournie par (3.19). La seconde relation est donnée par les conditions à l'entrée de la ligne. La tension V_0 produite par le GFA

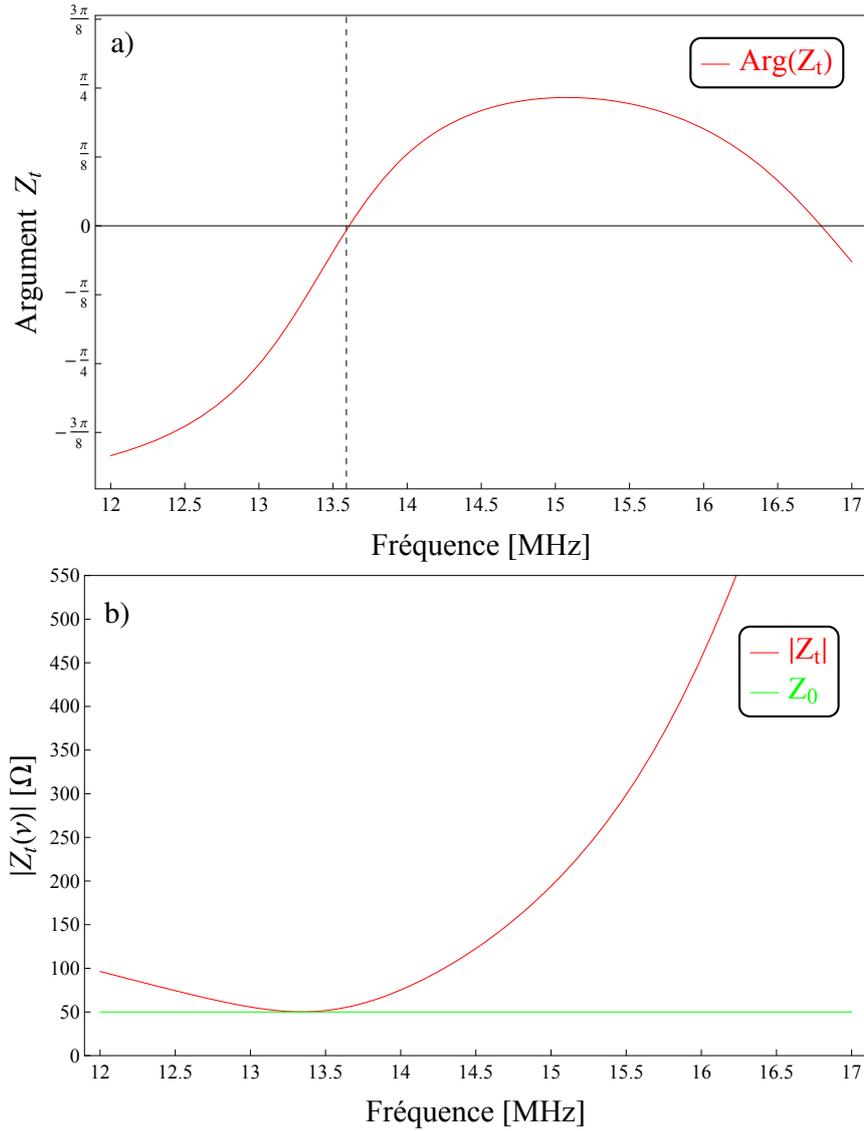


FIGURE 3.9 – Profil théorique de la phase (a) et du module de $Z_t(\omega)$ (b). On a utilisé les valeurs des paramètres du tableau (3.1). La valeur $C_v = 59$ pF permet d’annuler l’argument de Z_t . On trouve une fréquence d’accord de $\nu_a = 13.6$ MHz.

puis l’amplificateur est appliqué à travers la résistance interne Z_0 sur l’impédance totale $Z_t(\omega)$. Le courant s’écrit donc :

$$i(\omega) = \frac{V_0}{Z_0 + Z_t(\omega)} = i(\omega_a) \frac{2Z_0}{Z_0 + Z_t(\omega)} = -\frac{1}{Z_c}(A - B) \quad (3.32)$$

car le courant délivré par la source dans une impédance adaptée s’écrit

$$i(\omega_a) = i(2\pi\nu_a) = \frac{V_0}{2Z_0} \quad (3.33)$$

Le rapport des équations (3.31) et (3.32) conduit à :

$$\frac{I(\omega)}{i(\omega_a)} = \frac{2Z_0}{Z_0 + Z_t(\omega)} \frac{Ae^{\gamma t} - Be^{-\gamma t}}{A - B} \quad (3.34)$$

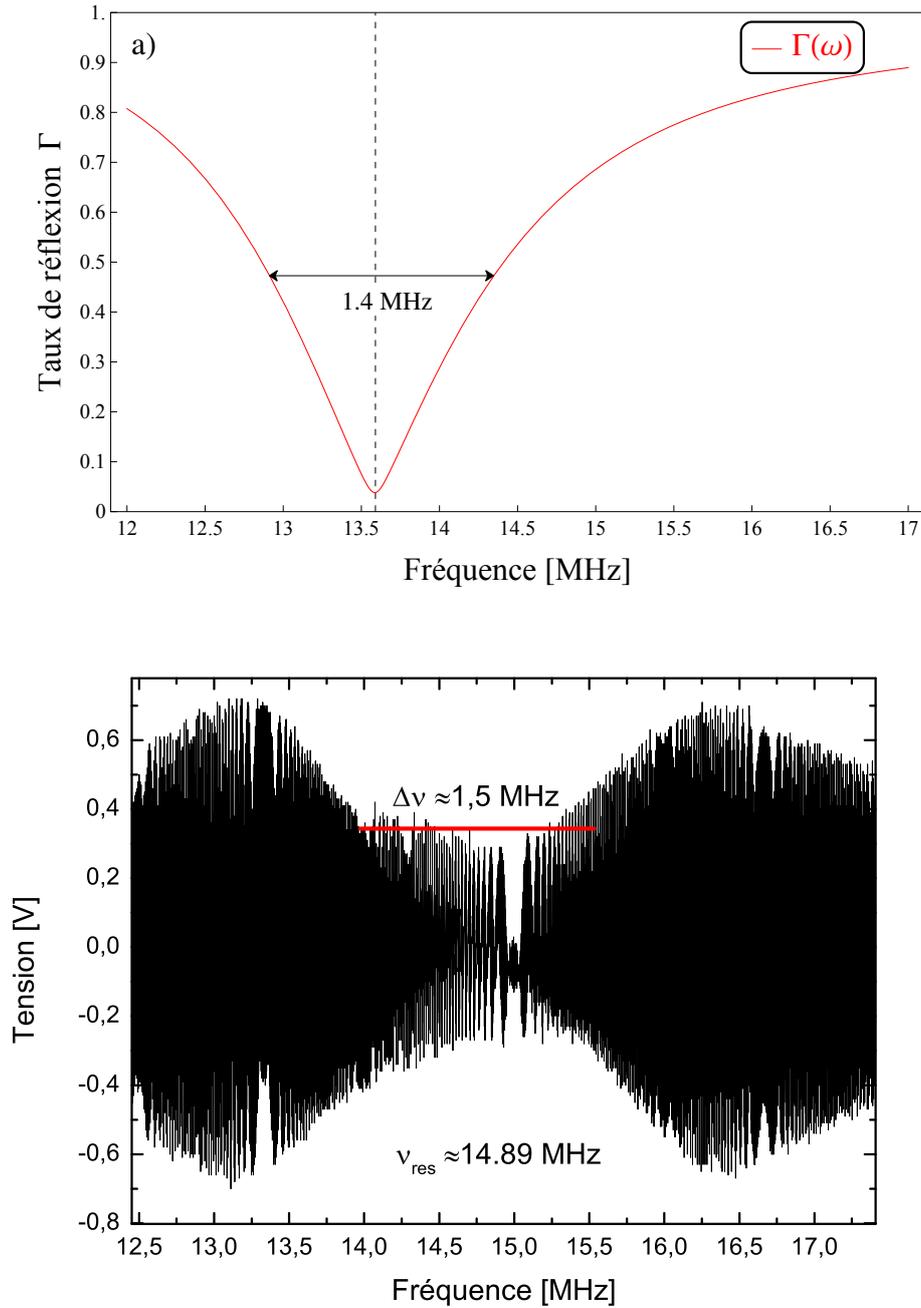


FIGURE 3.10 – a) Profil théorique du taux de réflexion, déterminé à partir des paramètres du tableau (3.1) et pour une valeur de $C_v = 59$ pF. b) Exemple de courbe expérimentale obtenue grâce au coupleur directionnel. Expérimentalement, la valeur de la capacité variable n'était pas connue, et était optimisée chaque jour. Ceci explique pourquoi on trouve une fréquence d'accord différente. Cependant, la largeur de la courbe du taux de réflexion est proche de la valeur attendue.

ce qui donne, en utilisant (3.19) :

$$\frac{I(\omega)}{i(\omega_a)} = \frac{2Z_0}{Z_0 + Z_t(\omega)} \frac{1}{\cosh(\gamma l) + j \frac{L_B \omega}{Z_c} \sinh(\gamma l)} \quad (3.35)$$

Le spectre du courant dans le solénoïde est tracé sur la figure (3.11). On gagne ainsi un peu plus d'un facteur 2.5 sur le courant.

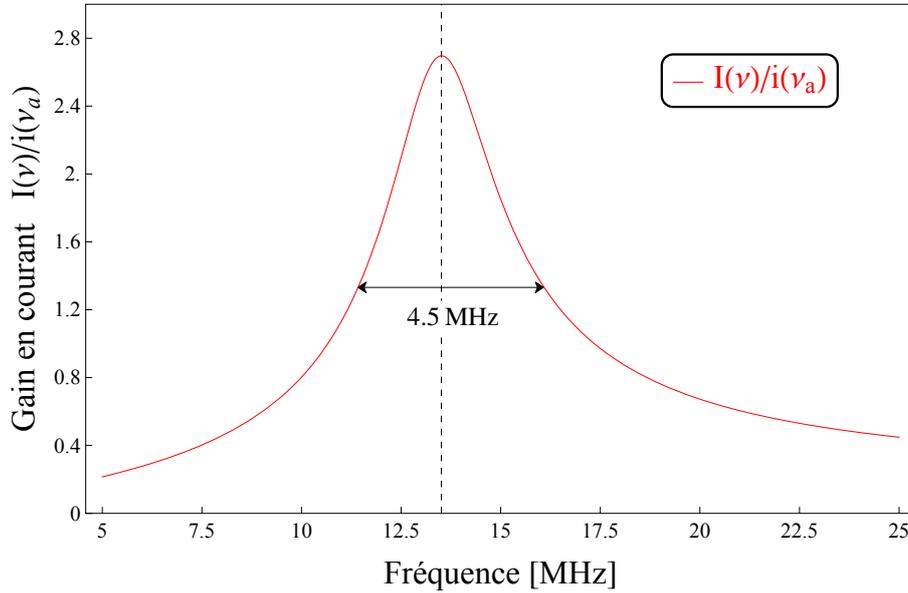


FIGURE 3.11 – Profil théorique du spectre du courant dans le solénoïde, toujours avec les paramètres du tableau (3.1). Le gain maximum s'élève à 2.6 pour la fréquence $\nu_{res} = 13.51$ MHz.

Pour une tension du signal à la sortie du GFA de 0.2 V, la tension à la sortie de l'amplificateur radio-fréquence est multipliée par un facteur 786, soit une tension de 151.2 V. Le courant qui arrive sur le système d'adaptation d'impédance et la ligne est alors quasiment de 3 A à la fréquence d'accord ν_a . Les courbes des figures (3.10) et (3.11), ainsi que les expressions (3.3) et (3.5) permettent d'estimer la fréquence de Rabi des ions Tm^{3+} . Le facteur de proportionnalité K_v entre la tension du signal du GFA et la fréquence de Rabi est estimé à $K_v = 1.56$ kHz/mV_{pp} comme on peut le voir sur la figure (3.12).

Le modèle a été très fécond dans la mesure où il donne le comportement général du circuit magnétique et permet de retrouver un certain nombre de résultats en accord avec l'expérience. Il faudrait le développer davantage si l'on veut être plus précis, notamment sur la prédiction de la fréquence d'accord, mais il est amplement suffisant pour décrire et prédire le champ magnétique créé, et donc la fréquence de Rabi du système.

3.3 Excitation optique et résonance magnétique

3.3.1 Transitions optiques sous champ magnétique

Nous avons mentionné au second chapitre que nous utilisons une détection optique des ions Tm^{3+} . La quantité accessible à la mesure est l'intensité I_t transmise par le cristal. Ce dernier étant faiblement dopé, la loi de Bouguer–Beer–Lambert relie de manière simple, l'intensité transmise à l'intensité d'entrée I_e :

$$I_t = I_e e^{-\alpha L} \quad (3.36)$$

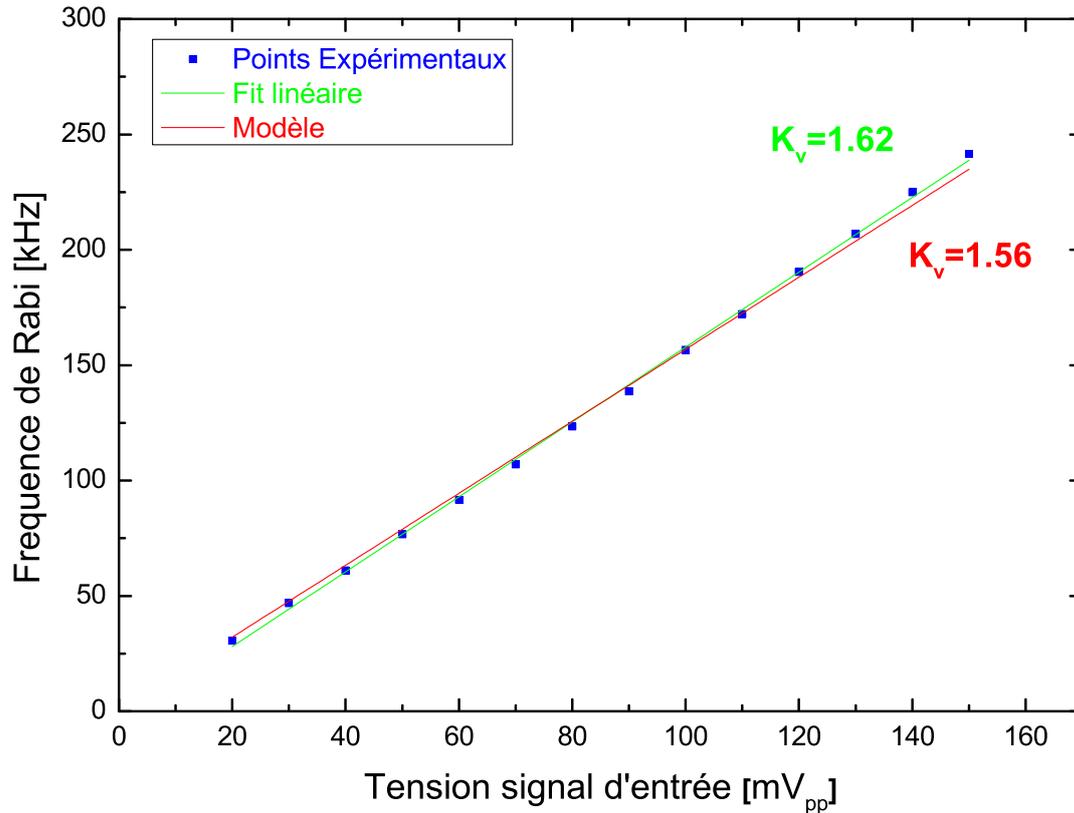


FIGURE 3.12 – On représente l'évolution de la fréquence de Rabi à la résonance du circuit total en fonction de la tension d'entrée du signal. Les points expérimentaux sont en bleus. La courbe calculée à partir de (Eq 3.35), en rouge, est en accord avec les données expérimentales.

où α est le coefficient d'absorption, exprimé en m^{-1} , et L la longueur du cristal en m. Le coefficient d'absorption est lui-même proportionnel à la différence de population entre les niveaux E_1 et E_3 , de population respective n_1 et n_3 :

$$\alpha = a(n_3 - n_1) \quad (3.37)$$

Ce coefficient a réalise la jonction entre l'intensité transmise et la population de l'état sondé. Ce coefficient peut se déterminer expérimentalement si on est capable de connaître l'intensité I_e . Plusieurs techniques ont été utilisées pour la mesure de a , tel le creusement de trou spectral que l'on détaillera dans la sous-section suivante, ou encore la nutation optique.

Le faisceau sonde, de faible puissance (quelques dixièmes de μW dans nos expériences), ne modifie pratiquement pas les populations. Il permet ainsi d'avoir accès à la population du niveau fondamental E_1 , et donc également à celle de l'autre niveau Zeeman du fondamental, E_2 .

Le faisceau lumineux monochromatique permet également de préparer les ions dans un même état, grâce au pompage optique. Le champ monochromatique de fréquence angulaire ω_0 connecte les niveaux d'énergie E_1 et E_3 des ions Tm^{3+} . Lors de l'excitation de la transition (illustré sur la figure 3.13), les ions initialement dans le niveau E_1 atteignent le niveau d'énergie

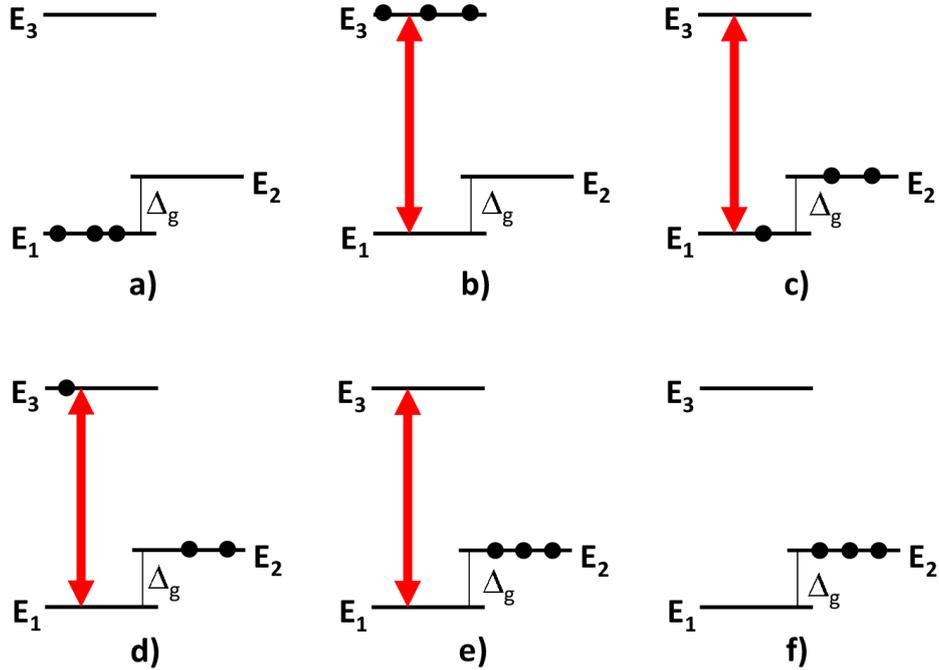


FIGURE 3.13 – Les diverses étapes du pompage optique. Etat initial (a), excitation de la transition optique et dépeuplage partiel du niveau E_1 (b,c), pompage optique et fin du dépeuplage du niveau E_1 (d,e). Etat final (f).

E_3 . Après une durée de l'ordre de $800 \mu\text{s}$ (voir chapitre 1), ils se désexcitent ; une partie retombe dans le niveau Zeeman E_1 tandis que l'autre partie arrive dans le niveau Zeeman E_2 , d'une durée de vie de plusieurs secondes. Cette dernière étant largement supérieure à celle du niveau optique E_3 , les ions seront tous transférés vers le niveau E_2 après un temps de pompage suffisant. Ainsi, l'absorption sera nulle à la pulsation ω_0 du faisceau, mais maximale à la pulsation $\omega_0 - (E_2 - E_1)/\hbar$.

L'architecture des niveaux d'un ion Tm^{3+} sous champ magnétique statique montre qu'il existe quatre transitions optiques possibles [17] comme illustré sur la figure 3.14 : deux transitions directes $|1\rangle-|3\rangle$ et $|2\rangle-|4\rangle$, et deux transitions croisées $|1\rangle-|4\rangle$ et $|2\rangle-|3\rangle$, de fréquence angulaire ω_{13} , ω_{24} , ω_{14} et ω_{23} respectivement. Ces quatre pulsations sont liées par les splittings Δ_g et Δ_e déterminés au premier chapitre :

$$\omega_{13} = \omega_{23} + \Delta_g = \omega_{14} - \Delta_e = \omega_{24} + \Delta_g - \Delta_e \quad (3.38)$$

Ainsi, les ions participant à l'expérience peuvent être rangés en quatre catégories différentes correspondant à une absorption selon l'une des quatre transitions possibles, comme illustré sur la figure 3.15. Il apparaîtra alors différents trous et anti-trous dans le spectre.

Le spectre atomique à l'issue d'un pompage optique peut se mesurer grâce à la technique de creusement de trou spectral. Nous allons exposer succinctement ce procédé, ainsi que d'autres mesures préliminaires, permettant de récolter des données de base sur l'ensemble d'ions.

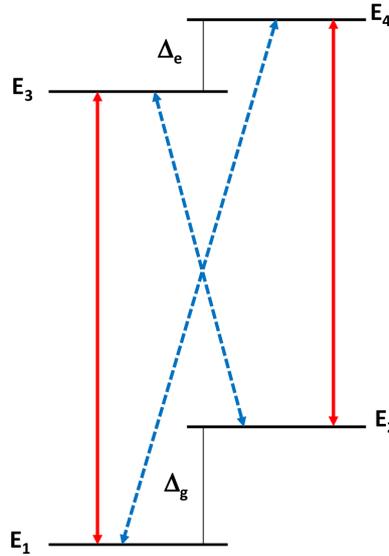


FIGURE 3.14 – Schéma des niveaux d'énergie du Tm^{3+} avec les transitions optiques possibles. Les transitions directes (fortes) sont marquées par une ligne rouge pleine. Les transitions croisées (faibles) par une ligne bleue tiretée.

3.3.2 Creusement de trou spectral

Le creusement de trou spectral repose sur l'élargissement inhomogène d'une transition entre deux niveaux d'un système physique. L'effet a été initialement observé en RMN [47], puis dans d'autres systèmes comme les vapeurs gazeuses [48] ou encore les solides à basses températures [49].

L'idée consiste d'abord à créer un trou dans le spectre atomique, en utilisant le faisceau pompe qui réalise un pompage optique du niveau fondamental à la fréquence ω_0 . On utilise ensuite le faisceau sonde de faible puissance dont la fréquence est balayée sur une plage centrée en ω_0 . On obtient alors le nouveau profil d'absorption (après pompage optique) de l'ensemble d'atomes.

La figure 3.16 représente une courbe de creusement de trou spectral dans $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ 0.1%. La séquence, répétée en boucle, se compose comme suit : le faisceau pompe d'une puissance de l'ordre de $100 \mu\text{W}$ réalise un pompage optique d'une durée de 500 ms, à la fréquence $\nu_0 = \omega_0/2\pi$. Puis, on effectue un balayage en 2 ms sur une plage de 70 MHz de part et d'autre de la fréquence ν_0 . Enfin, on applique une impulsion de 2 ms balayée également en fréquence mais sur une plage sensiblement plus grande que la précédente, de l'ordre de 100 MHz, permettant de réinitialiser le milieu.

La courbe est symétrique par rapport au trou central (point A) à la fréquence ν_0 . La courbure observée provient de la réponse du MAO sonde. Le point B représente le trou décalé de Δ_e . Les trois anti-trous C, D et E sont décalés du centre de $\Delta_g - \Delta_e$, Δ_g et $\Delta_g + \Delta_e$ respectivement.

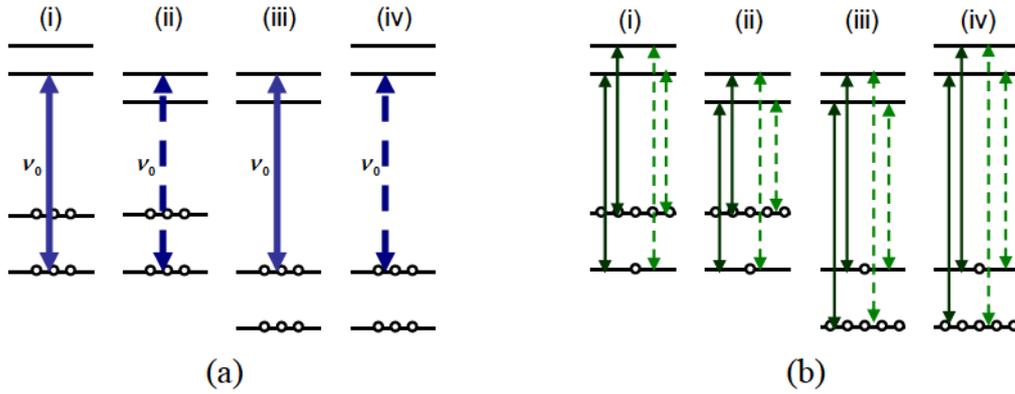


FIGURE 3.15 – Pompage optique des ions Tm^{3+} . a) Quatre catégories d’ions peuvent être excités par le faisceau monochromatique de fréquence ν_0 . À l’issue du pompage, les populations initialement égales dans les deux niveaux Zeeman du fondamental sont amenées vers les niveaux Zeeman non-résonants du fondamental. b) Un faisceau de lecture de faible puissance sonde les populations désormais déséquilibrées. La situation sera différente selon la catégorie de l’ion considéré. Les transitions fortes et faibles sont représentées respectivement par des flèches continues et en pointillées.

Une analyse détaillée des spectres de creusement de trou spectral dans $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ se trouve dans la thèse de Anne Louchet [17].

Le creusement de trou spectral permet de contrôler le splitting de la transition Zeeman, en ajustant la position de l’anti-trou décalé de Δ_g de la pulsation centrale de pompage via l’intensité du champ magnétique statique. Sur la figure 3.16, on mesure $\Delta_g = 13.44$ MHz.

Grâce à cette technique, on peut également estimer la valeur du coefficient d’absorption, et donc la valeur du paramètre a . On réalise deux mesures distinctes :

- la première consiste à réaliser une simple lecture du système sous champ magnétique. Les populations sont également réparties entre les deux niveaux hyperfins du fondamental $^3H_6(0)$: on a donc

$$n_1 = n_2 = \frac{1}{2} \quad (3.39)$$

où n_1 et n_2 sont les populations des niveaux hyperfins d’énergie E_1 et E_2 respectivement. La courbe expérimentale obtenue dans $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ est présentée sur la figure 3.17a).

- la seconde consiste d’abord à exciter le système pendant 200 ms avec un champ monochromatique ω_0 d’une puissance suffisante afin de blanchir le milieu à cette fréquence. On sonde¹ ensuite le système permettant d’obtenir le spectre atomique, comme illustré sur la figure 3.17b). Le pompage optique vide le niveau d’énergie E_1 pour amener toute la population dans le niveau d’énergie E_2 . De ce fait, à la fréquence ω_0 on a :

$$n_1 = n_3 = 0 \quad (3.40)$$

Cette mesure donne la valeur de l’intensité d’entrée du faisceau de lecture.

À partir des courbes expérimentales, on peut déterminer la valeur du coefficient d’absorption. Si l’on considère la première mesure, alors :

$$(\alpha L) = \ln \left(\frac{I_t(\text{sans trou})}{I_e} \right) = \ln \left(\frac{I_t(\text{sans trou})}{I_t(\text{avec trou})} \right) \approx 0.62 \quad (3.41)$$

1. Dans les mêmes conditions que précédemment.

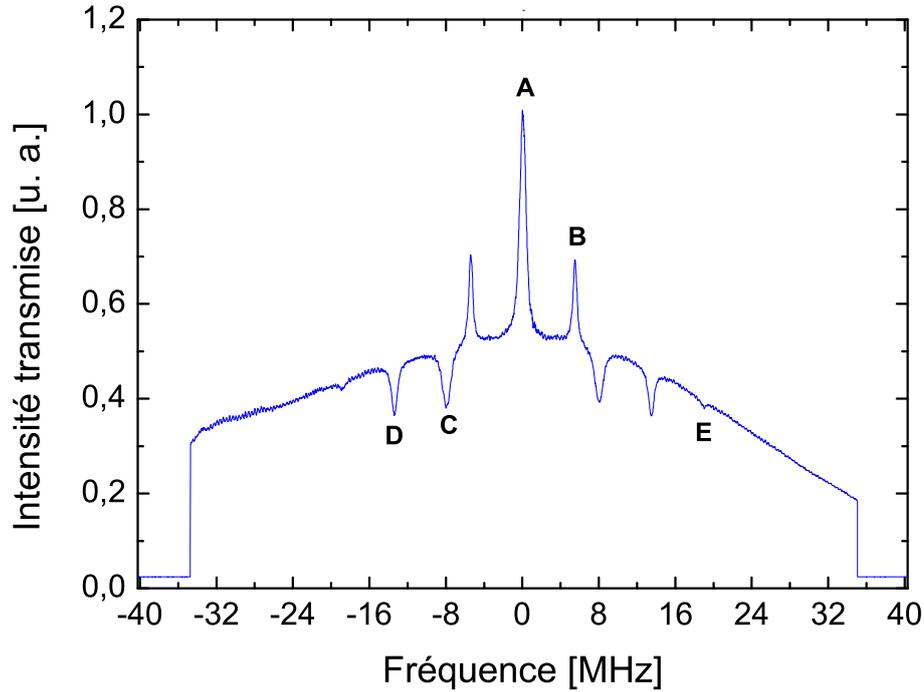


FIGURE 3.16 – Expérience de creusement de trou spectral. La lettre A désigne le trou central à la fréquence ν_0 prise comme origine. Le trou B et son symétrique par rapport au trou central représente le trou décalé de Δ_e . Les anti-trou C, D et E et leurs symétriques par rapport au trou A sont décalés de ce dernier de $\Delta_g - \Delta_e$, Δ_g et $\Delta_g + \Delta_e$ respectivement.

On a donc, à la pulsation ω_0 :

$$\alpha L = 0.62 = a(n_1 - n_3)L = an_1L = \frac{1}{2}aL \quad (3.42)$$

Sachant que $L = 5$ mm, on a finalement :

$$a = 0.248\text{mm}^{-1} \quad (3.43)$$

3.3.3 Oscillations de Rabi radio-fréquence

Nous avons vu au chapitre 2 qu'en se plaçant dans le référentiel tournant, les spins nucléaires sous l'influence d'un champ radio-fréquence précessaient autour de ce dernier, à une vitesse angulaire donnée par la pulsation de Rabi. On devrait donc facilement avoir accès à la pulsation de Rabi Ω en excitant le milieu avec une onde radio-fréquence. On a montré cependant que les spins nucléaires avaient des pulsations de Rabi généralisées différentes du fait de l'élargissement inhomogène Δ_{inh} . Il résulte que les populations des niveaux Zeeman du fondamental oscillent à différentes vitesses. Romain Lauro a démontré lors de sa thèse [38] qu'on pouvait cependant obtenir la fréquence de Rabi par une expérience d'oscillation de Rabi.

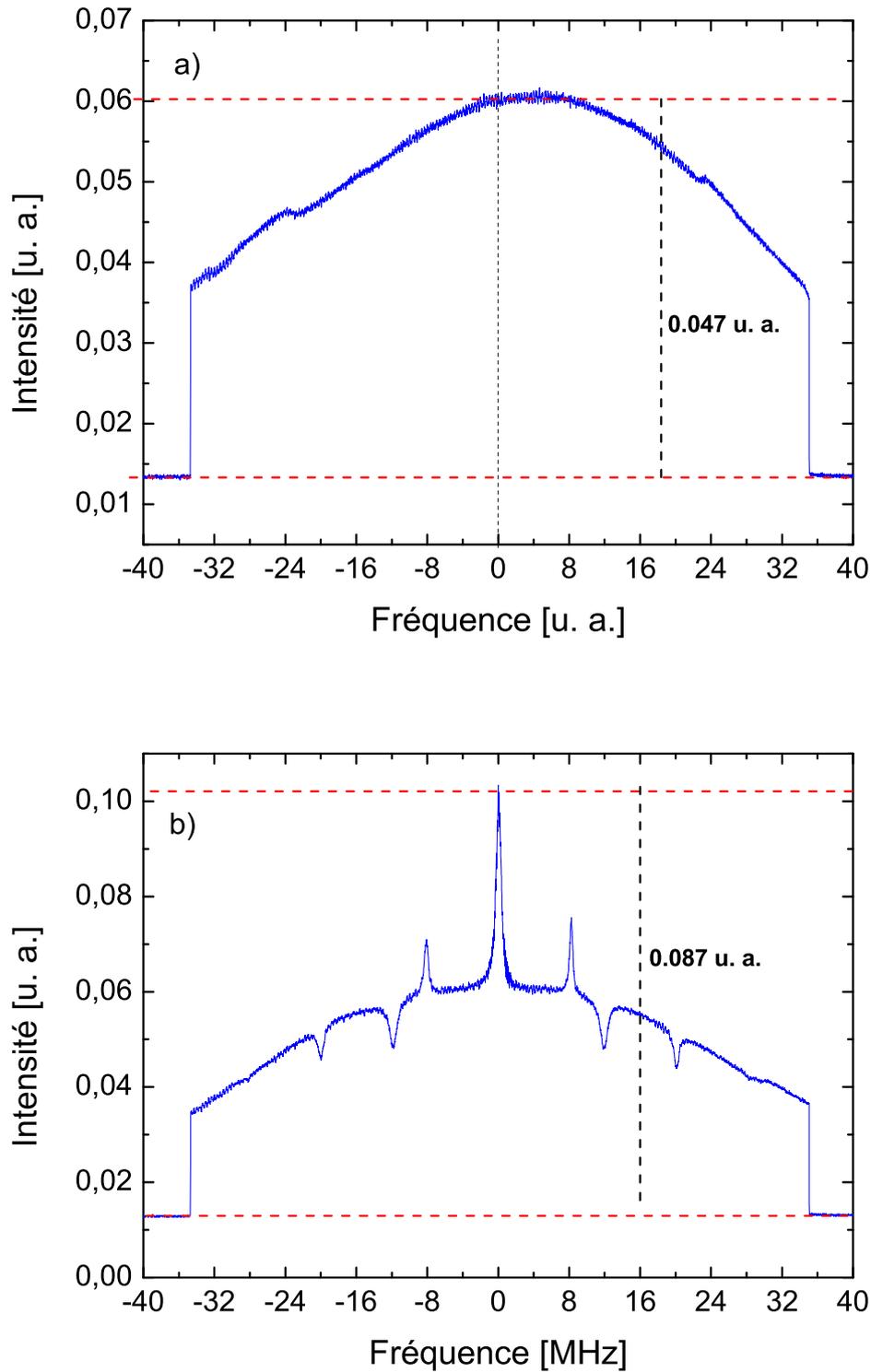


FIGURE 3.17 – Détermination du coefficient a . La courbe a) représente une simple lecture. Elle correspond à l'intensité transmise pour une population $n_1 = 0.5$. La courbe b) représente un creusement d'un trou de façon à atteindre la transparence. Grâce aux deux courbes, on obtient $\alpha L = 0.62$.

Cette expérience consiste tout d'abord à réaliser un pompage optique du niveau E_1 , avec un faisceau pompe d'une puissance de l'ordre de $100 \mu\text{W}$. Puis, on excite les ions Tm^{3+} par une onde radio-fréquence sinusoïdale. On mesure simultanément les variations d'intensité optique de la transition $|1\rangle$ - $|3\rangle$ grâce au faisceau sonde, d'une puissance de quelques dixième de μW . La figure 3.18 montre le résultat d'une telle expérience. On trouve $\Omega/2\pi = 143.5 \text{ kHz}$.

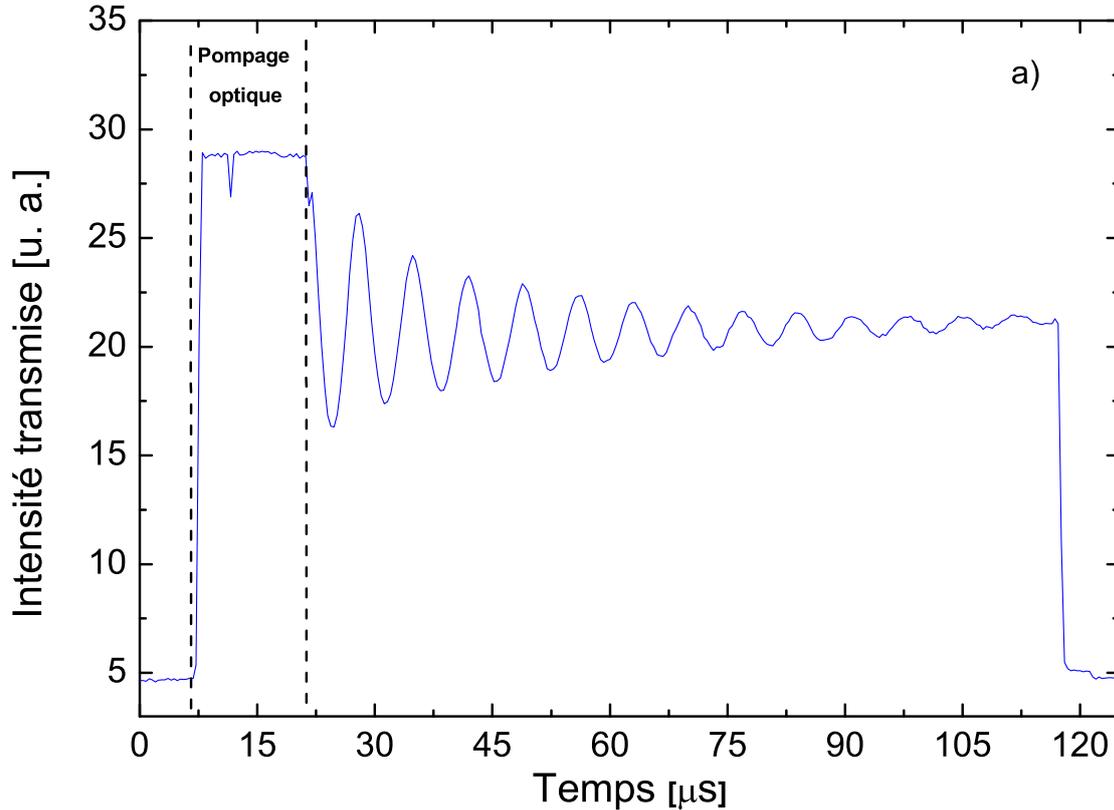


FIGURE 3.18 – Expérience d'oscillations de Rabi radio-fréquence détectées optiquement. On obtient une fréquence de Rabi de 143.5 kHz .

3.3.4 Passages et demi-passages adiabatiques

Avant de s'intéresser à la séquence de rephasage complète des spins par double passage adiabatique, on regarde d'abord l'efficacité réelle d'un PAR et d'un DPA sur notre système.

Transfert de population

On teste l'efficacité d'un PAR en réalisant un transfert de population. Nous avons vu au deuxième chapitre que l'action résultante d'un PAR était identique à celle d'une impulsion d'aire π . Ainsi, pour des atomes initialement préparés dans le même état Zeeman $|2\rangle$ par pompage optique, leurs états finals devraient être l'état Zeeman $|1\rangle$ à l'issue du PAR, si ce dernier est efficace. Un PAR est caractérisé par trois paramètres :

- la durée totale T_{PAR}

- la plage de balayage Δ_0
- la fréquence de Rabi Ω

Les deux premiers définissant le taux de balayage r

$$r = \frac{\Delta_0}{T_{PAR}} \quad (3.44)$$

Nous avons vu au deuxième chapitre qu'un PAR doit satisfaire plusieurs conditions. D'une part, une relation déterminant la situation initiale et finale du PAR. A partir de (2.56), on a pour un balayage linéaire et une fréquence de Rabi constante :

$$\frac{|\delta_\omega - rT_{PAR}|}{2} > \Omega \quad (3.45)$$

Sachant que la plage de balayage est en pratique largement supérieure à δ_ω , on a :

$$\Delta_0 \gg 2\Omega \quad (3.46)$$

D'autre part, le critère d'adiabaticité, pour une fréquence de Rabi constante, à l'instant le plus critique :

$$\Omega^2 > r \quad (3.47)$$

Au début du PAR, tout comme à la fin, le vecteur de contrôle doit être aligné verticalement dans la sphère de Bloch. On rappelle les coordonnées du vecteur de contrôle dans le référentiel tournant :

$$\begin{bmatrix} \Omega(t) \\ 0 \\ \delta_\omega(t) \end{bmatrix} \quad (3.48)$$

Pour prendre en compte les spins très désaccordés, c'est à dire δ_ω grand au début et à la fin du PAR, il est nécessaire que la plage de balayage Δ_0 comprenne plusieurs fois l'élargissement inhomogène Δ_{inh} , qui est de l'ordre de 500 kHz. Ainsi, on retournera également les spins qui sont *dans les ailes* du profil spectral des ions Tm^{3+} . La condition (3.46) devient donc, étant donné par ailleurs que $\Delta_{inh} > \Omega$:

$$\Delta_0 \gg \Delta_{inh} \quad (3.49)$$

En pratique, elle sera considérée remplie dès lors que

$$\Delta_0 \geq 6\Delta_{inh} \quad (3.50)$$

Pour un PAR de caractéristiques :

$$T_{PAR} = 100 \mu s \quad \Delta_0 = 4 \text{ MHz} \quad \Omega = 262 \text{ kHz} \quad (3.51)$$

la condition (3.50) est effectivement bien satisfaite.

Le respect du critère d'adiabaticité semblent également satisfait. Cependant, il s'avère que la pulsation de Rabi n'est pas constante au cours du temps. En effet, durant le PAR, la fréquence du champ radio-fréquence varie linéairement. Or la pulsation de Rabi dépend du profil de la résonance du circuit magnétique. La dépendance de Ω en fonction de la fréquence du champ radio-fréquence est illustrée sur la figure 3.19.

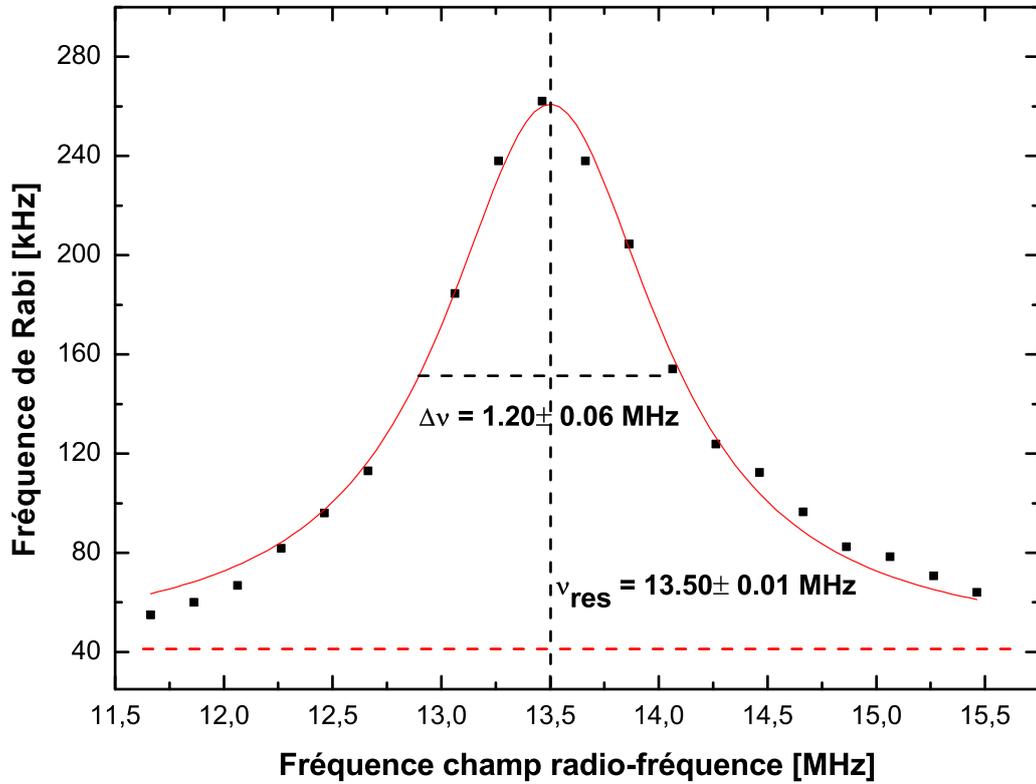


FIGURE 3.19 – Variation de la fréquence de Rabi en fonction de la fréquence radio-fréquence appliquée au circuit magnétique. Les carrés noirs représentent les points expérimentaux. La courbe rouge est un fit lorentzien, il estime la fréquence centrale à 13.50 MHz, et la largeur à mi-hauteur à 1.20 MHz.

Pour s'assurer du respect du critère d'adiabaticité, il faut revenir à l'expression générale de ce dernier. On définit la grandeur ζ associée au caractère adiabatique du passage, à partir de l'expression (2.48) :

$$\zeta = \left| \frac{(\delta_\omega - rt)\dot{\Omega}(t) + \Omega(t)r}{\sqrt{\Omega^2 + (\delta_\omega - rt)^2}^3} \right| < 1 \quad (3.52)$$

où la pulsation de Rabi est donné par le fit lorentzien de la figure 3.19 :

$$\frac{\Omega(t)}{2\pi} = \frac{\Omega_0}{2\pi} + \frac{2A}{\pi} \frac{\Delta_\nu}{4(\delta_\omega - rt)^2 + \Delta_\nu^2} \quad (3.53)$$

avec

$$\frac{\Omega_0}{2\pi} \approx 42.3 \text{ kHz} \quad A \approx 414 \text{ kHz} \quad (3.54)$$

$$\Delta_\nu \approx 1.20 \text{ MHz} \quad r = \frac{\Delta_0}{T_{PAR}} = 0.04 \mu\text{s}^{-2} \quad (3.55)$$

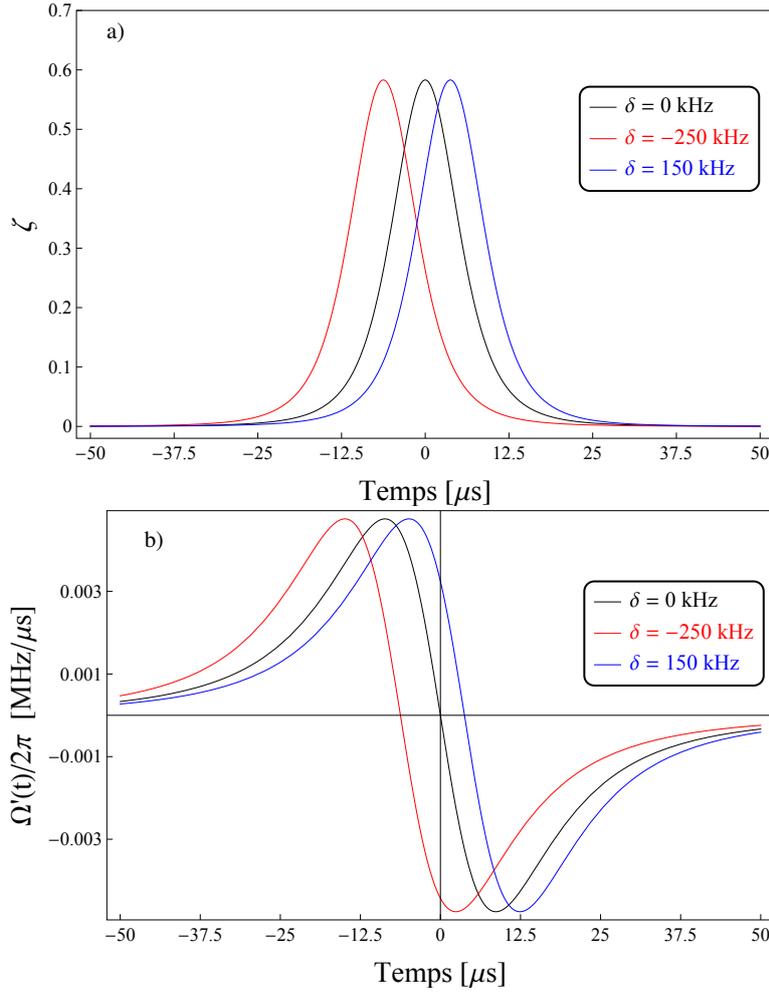


FIGURE 3.20 – a) Vérification de la validité de la condition d’adiabaticité $\zeta < 1$ au cours d’un PAR. Le pic de chaque courbe représente le moment où le critère peut s’écrire sous la forme $\Omega^2/r > 1$. b) Dérivée par rapport au temps de la fréquence de Rabi, pour les mêmes désaccords.

On représente sur la figure 3.20a), le terme ζ pour différentes valeurs du désaccord δ_ω .

On remarque que le critère d’adiabaticité est bien respecté tout au long du passage adiabatique, et ce pour n’importe quel désaccord. Le maximum de chaque tracé correspond à la situation où la condition d’adiabaticité est la plus sévère, c’est à dire lorsque le spin nucléaire en question est à résonance avec le champ radio-fréquence. Le basculement successif des différentes classes de fréquence se visualise ici par le fait que ce maximum intervient à des temps différents en fonction du désaccord δ_ω . On peut être surpris qu’il n’y ait pas de différences notables entre les courbes. Cela résulte des faibles valeurs prises par la dérivée de la fréquence de Rabi durant le PAR, comme on peut le voir également sur la figure 3.20. Si ces valeurs étaient plus importantes, il y aurait des différences notables selon le désaccord, et le critère d’adiabaticité ne serait pas constamment vérifié au cours d’un PAR.

Les conditions requises pour un PAR efficace étant remplies, on réalise une expérience de transfert de population. Les résultats sont présentés sur la figure 3.21. On y reporte l’intensité transmise (a) et la population du niveau sondé (b). On détermine l’évolution de la population au cours du PAR grâce au coefficient a déterminé plus haut (3.43) qui relie l’intensité transmise

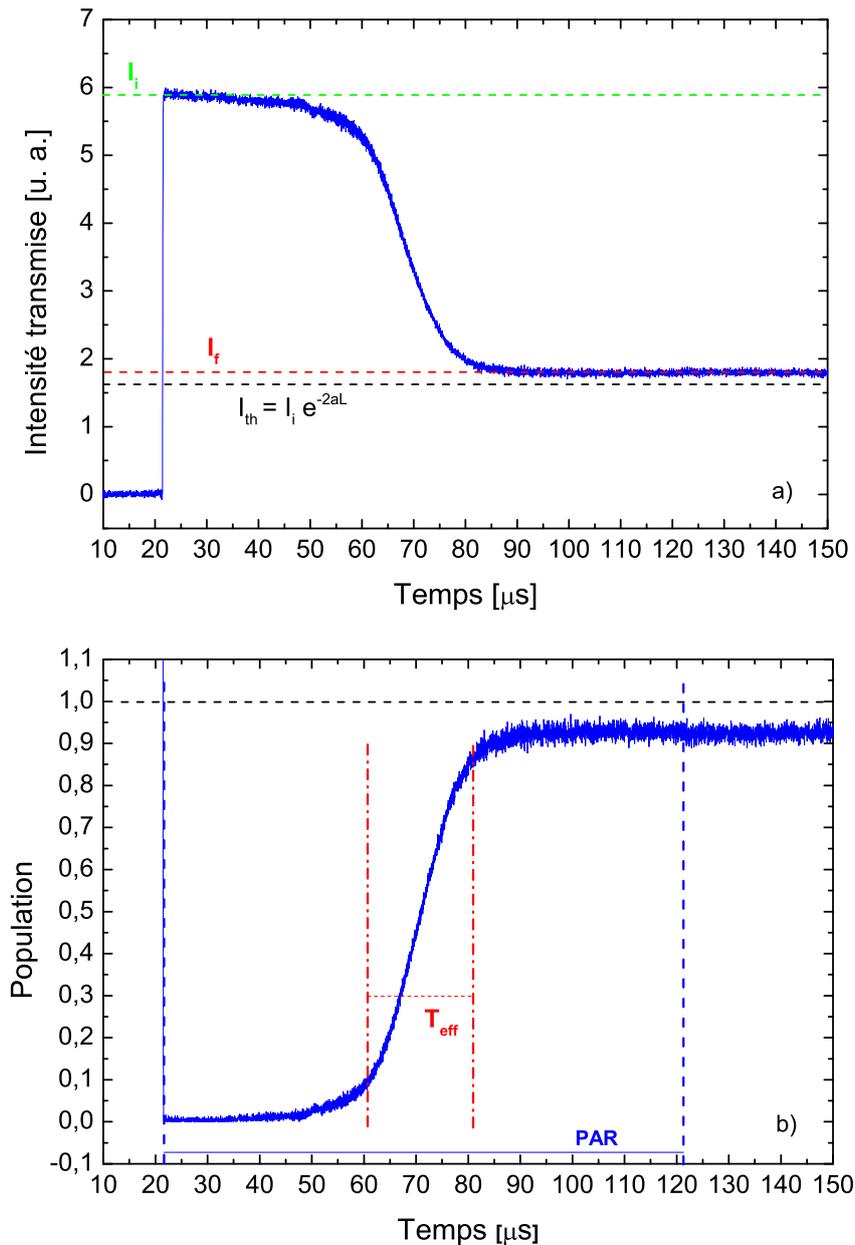


FIGURE 3.21 – Tracé expérimental d'un PAR, dans le cadre d'un transfert de population. Sur la figure a) est reportée l'intensité transmise. Au début du PAR, le milieu est transparent, l'intensité initiale I_i est donc maximale. L'intensité finale est matérialisée par la ligne en pointillé rouge, à comparer avec la valeur théorique attendue en noire. Cette dernière correspond à la situation où le niveau sondé est maximalelement peuplé, donc de population unité. Sur la figure b) est reportée la population qu'on obtient en utilisant le coefficient de conversion a de (3.43). L'efficacité est très élevée puisqu'on arrive à transférer les population d'un niveau à l'autre à plus de 95%. La plage véritable du retournement de la population est indiquée par T_{eff}

mesurée et la population du niveau sondé.

Au début du tracé expérimental, la population est nulle, et le reste sur une durée de l'ordre de $40 \mu\text{s}$. En effet, seuls les ions très négativement désaccordés peuvent être sensibles au champ radio-fréquence, et ils représentent une infime minorité de l'ensemble de spins nucléaires. Puis,

au fur et à mesure que la fréquence de balayage augmente, de plus en plus de spins commencent successivement à basculer. La majorité de la population est retournée sur un intervalle de temps de l'ordre de $20 \mu\text{s}$. Enfin, sur les microsecondes restantes, les quelques spins très positivement désaccordés sont enfin renversés.

La population finale à l'issue d'un PAR est voisine de l'unité (≈ 0.95). On a donc une très bonne efficacité. Par ailleurs, on remarque que le retournement de la population se fait essentiellement sur un temps bien plus court que la durée totale du PAR, comme déjà évoqué au deuxième chapitre. Ce temps effectif T_{eff} de basculement des spins nucléaires, dont on rappelle ci-dessus l'expression est matérialisé sur la figure 3.21 :

$$T_{eff} = \pi \frac{\Omega}{r} = \pi \frac{\Omega}{\Delta_0} T_{PAR} \quad (3.56)$$

Conversion population-cohérence Zeeman

On regarde maintenant l'efficacité d'un DPA à créer une aimantation transversale. Les spins sont initialement placés dans le niveau E_2 comme précédemment. Le niveau E_1 qui est le niveau sondé est alors vide, l'intensité initiale I_i est donc maximale. On applique alors un DPA, qui n'est rien d'autre qu'un PAR arrêté à mi-parcours. La courbe de la figure 3.22 a été obtenue avec les paramètres suivants :

$$T_{DPA} = 50\mu\text{s} \quad \Delta_0 = 2\text{MHz} \quad \Omega_{max} = 262\text{kHz} \quad (3.57)$$

Le pic survenant juste après la fin du DPA correspond à un artefact de mesure, lié au fonctionnement du GFA. Le niveau sondé, de population initialement nulle, est à moitié peuplé à l'issue du DPA, comme illustré sur la figure 3.22. Ce dernier est donc parfaitement adapté pour créer une cohérence de spin nucléaire dans le milieu.

On réalise également un DPA suivi immédiatement d'un rDPA. Lorsque le niveau sondé est initialement vide, on s'attend à le retrouver également vide après l'application de cette séquence. C'est bien ce qui est observé en pratique, comme l'illustre la figure 3.23. Les conditions de passage adiabatique sont les mêmes que précédemment, mis à part que le sens de parcours de la plage Δ_0 se fait en sens inverse pour le rDPA.

On peut définir l'efficacité de la séquence DPA+rDPA comme le rapport entre l'intensité transmise à la fin du processus et celle au début du processus, la valeur unité signifiant une double conversion parfaite. Ou encore, de manière équivalente à partir de la différence de population δ_n entre la fin et le début du processus : $\eta^2 = 1 - \delta_n$. Au regard de la figure 3.23, on obtient une efficacité supérieure à 98%.

3.4 Rephasage des spins nucléaires par double passage adiabatique

Nous avons maintenant tous les éléments pour étudier la relaxation de l'aimantation transverse, à travers la séquence détaillée au chapitre 2.

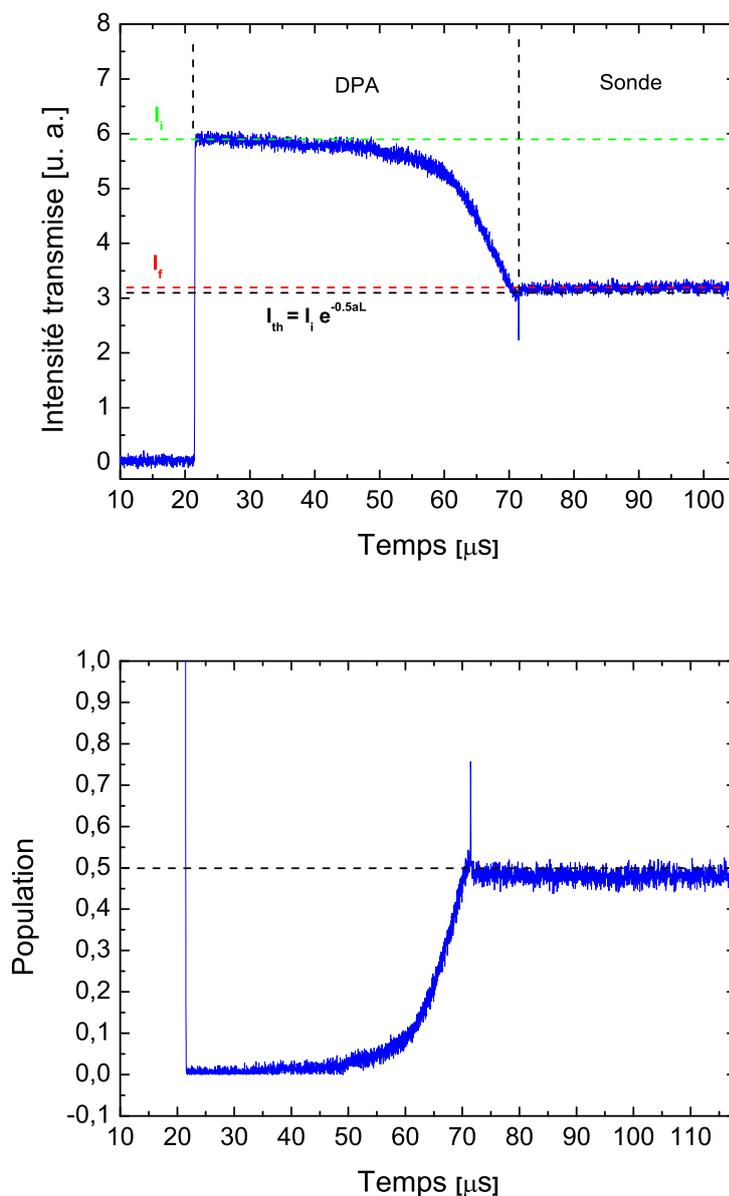


FIGURE 3.22 – Courbes expérimentales d’un DPA. Le code de couleur est le même que sur la figure 3.21. La courbe de la figure b) est identique à celle de a) ; on a utilisé le coefficient a de (3.43) afin d’afficher la population du niveau sondé en ordonnée.

3.4.1 Reconstruction de l’aimantation initiale

L’enjeu consiste ici à vérifier expérimentalement l’efficacité de la séquence de rephasage explicitée au deuxième chapitre, et les propriétés particulières de la technique de détection optique d’un écho de spin, à savoir :

- la condition de phase très stricte, absente dans un écho classique. Les spins nucléaires doivent être parfaitement alignés à l’issue de la séquence de rephasage afin que le rDPA puissent convertir correctement l’aimantation nucléaire transversale en une aimantation

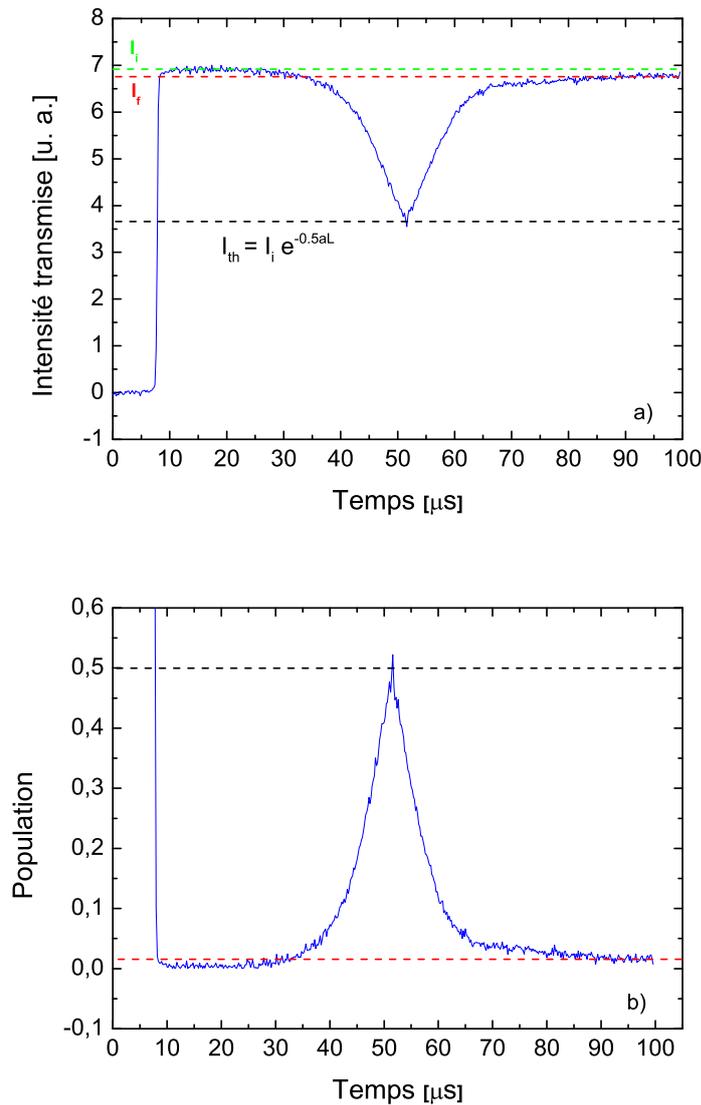


FIGURE 3.23 – Succession d'un DPA et d'un rDPA, de mêmes caractéristiques. Le pic central des deux tracés expérimentaux correspond à création d'une cohérence de spin nucléaire, ou encore à une aimantation transversale. A la fin du processus, on retrouve la situation initiale, à savoir le niveau sondé de nouveau vide.

purement longitudinale. Par ailleurs, pour s'assurer d'une reconversion optimale, le déphasage relatif entre les deux demi-passages doit être nul.

- la condition sur les durées, similaire à celle d'un écho standard via impulsion π . La séquence de rephasage décrite au deuxième chapitre annonce les instants où les spins nucléaires seront focalisés. Ces instants dépendent des intervalles de temps entre les deux PARs, le DPA et le premier PAR, ainsi qu'entre le deuxième PAR et le rDPA.

Condition de phase et efficacité du double passage adiabatique

Dans cette expérience dont les résultats sont présentés sur la figure 3.24, les deux passages adiabatiques rapides PAR *A* et PAR *B* sont identiques :

$$T_{PAR} = 100 \mu\text{s}, \quad \Delta_0 = 4 \text{ MHz}, \quad \frac{\Omega_{max}}{2\pi} = 141 \text{ kHz} \quad (3.58)$$

Les demi-passages DPA et rDPA découlent des deux PARs précédemment décrits. Les spins nucléaires se trouvent initialement dans le même niveau Zeeman E_2 ; ils sont donc alignés selon leur champ magnétique effectif, et le niveau sondé est vide. L'intensité transmise au début de la séquence est la quantité I_i . Pour tester l'efficacité, on comparera simplement ce niveau d'intensité initial I_i avec le niveau d'intensité final I_f à l'issue de l'expérience. On se focalise pour l'instant sur la courbe étiquetée « 0 » de la figure 3.24a.

A l'instant $t = -50 \mu\text{s}$, l'intensité I_i correspond à la transparence du milieu. En effet, les ions Tm^{3+} actifs ont été préalablement pompés dans le niveau Zeeman d'énergie E_2 . On applique alors le DPA. La décroissance de l'intensité est très lentement au début, puis s'accélère. Ce comportement s'explique par le fait que le balayage touche d'abord des atomes très éloignés de la résonance, comme évoqué au deuxième chapitre. A la fin du DPA, à $t = 0$, l'intensité atteint la valeur correspondant à un niveau sondé peuplé à moitié. Le système évolue ensuite librement pendant $\tau_1 = 10 \mu\text{s}$. Pendant de telles évolutions, le système n'est pas sondé. Suite à cette première évolution libre, on applique un premier PAR. Deux points méritent quelques approfondissements :

- on remarque qu'un pic d'intensité se produit au milieu du premier PAR. L'explication est la suivante. Nous avons vu au deuxième chapitre que le DPA crée bien une aimantation nucléaire transversale. Cependant, les spins nucléaires sont distribués dans le demi-plan vertical ($\mathbf{u}_X \mathbf{u}_Z$) autour de la position moyenne \mathbf{u}_X . Lorsque le PAR commence, les spins nucléaires désaccordés négativement sont mis en mouvement en premier. Pendant leurs basculement, les composantes longitudinales, qui étaient négatives, et donc contribuaient à l'absorption du faisceau sonde, vont devenir positives. L'inverse se produit pour les spins nucléaires désaccordés positivement. Cependant, le trait caractéristique d'un PAR est que les classes de fréquence de spin ne basculent pas en même temps, mais successivement. Ainsi, notamment au milieu du PAR, on se trouve dans une situation où les spins désaccordés négativement ont quasiment réalisé leurs basculement alors que les spins désaccordés positivement n'en sont pas encore à ce stade d'avancement. Le milieu devient alors pendant quelques instants légèrement plus transparent, d'où la présence de pic.
- on note aussi que le niveau d'intensité au début du PAR n'est pas identique au niveau d'intensité à la fin du PAR, contrairement à ce qu'on attend. Nous attribuons cette disparité au fait que la fréquence radio-fréquence centrale du PAR ne coïncide pas parfaitement avec le centre de l'élargissement inhomogène du cristal.

Après une nouvelle évolution libre de $\tau_2 = 20 \mu\text{s}$, on applique un autre PAR. C'est un trou qu'on observe cette fois-ci au centre de ce second PAR. L'explication est similaire à celle donnée pour le pic du premier PAR. On laisse une dernière fois évoluer le système pendant $\tau_3 = 10 \mu\text{s}$ avant d'appliquer le rDPA.

On note que l'intensité finale est inférieure à l'intensité initiale. Cependant, le fait qu'on ne retrouve pas I_i à l'issue de la séquence n'est pas du à un mauvais rephasage, mais est du à la

relaxation de l'aimantation nucléaire transversale. Le temps de vie T_2 est fini est est de l'ordre de $500 \mu\text{s}$ comme on le verra dans la section suivante. Les calculs montrent que la diminution de I_f observée est complètement compatible avec cette explication. Nous en déduisons que les spins nucléaires ont bien été refocalisés grâce à l'écho de Hahn par double passage adiabatique.

La différence de phase entre le DPA et le rDPA était nulle pour la courbe étiquetée « 0 » que l'on vient de commenter. Cette condition, établie en (2.103) au second chapitre est censée être la plus favorable pour nos expériences. Pour le vérifier, nous avons effectué une série de mesure en introduisant un déphasage entre les deux demi-passages, telle que :

$$\phi_0 - \phi'_0 = \delta \quad (3.59)$$

. Concrètement, la phase du DPA et du rDPA s'exprimaient de la façon suivante :

$$\phi_{DPA}(t) = \frac{1}{2}rt^2 \quad (3.60)$$

$$\phi_{rDPA}(t) = -\frac{1}{2}rt^2 + \delta \quad (3.61)$$

Les courbes obtenues pour différentes valeurs sont présentées sur la figure 3.24b. Elles sont étiquetées par leur valeur $\delta/2\pi$. On observe une dépendance de l'intensité finale en fonction de δ . La plus haut niveau de I_f obtenu est bien pour $\delta = 0$, conformément à nos prévisions.

La figure 3.24b présente une comparaison de nos valeurs expérimentales avec la théorie développée au deuxième chapitre. L'allure générale de la courbe théorique est en adéquation avec la courbe théorique. On note cependant un décalage entre les deux courbes. Il est attribué au possible écart entre la fréquence centrale du balayage et le centre de l'élargissement inhomogène.

Condition sur la durée de la séquence

On s'intéresse désormais à la validité de la condition temporelle à respecter pour les trois intervalles de temps d'évolution libre :

$$\tau_3 = \tau_2 - \tau_1 \quad (3.62)$$

Pour cette expérience, les caractéristiques des différents passages sont les mêmes que précédemment, hormis la fréquence de Rabi dont le pic culmine à 262 kHz. Une amélioration du circuit radio-fréquence a permis une nette amélioration de la pulsation de Rabi, mais également de son profil temporel. La condition d'adiabaticité est alors mieux remplie.

Lors de cette expérience, on a réalisé différentes séquences de rephasage en variant les temps d'évolution libre τ_1 , τ_2 et τ_3 des spins nucléaires définis sur la figure 3.25b, de telle sorte que (3.62) soit satisfaite. On note tout d'abord une meilleure qualité des courbes expérimentales : les paliers des PARs sont nettement mieux alignés. Ceci est matérialisé par la ligne tiret-pointillée étiquetée $I_{0,5}$ sur la figure 3.25a.

Les différents tracés sont très similaires. On note principalement que l'intensité finale, est rigoureusement identique pour toutes les courbes, preuve que le changement de condition temporelle n'affecte pas l'efficacité de la séquence de rephasage sous condition que (3.62) soit vérifiée. Nous venons également donc de démontrer que, sous réserve que les DPA et rDPA

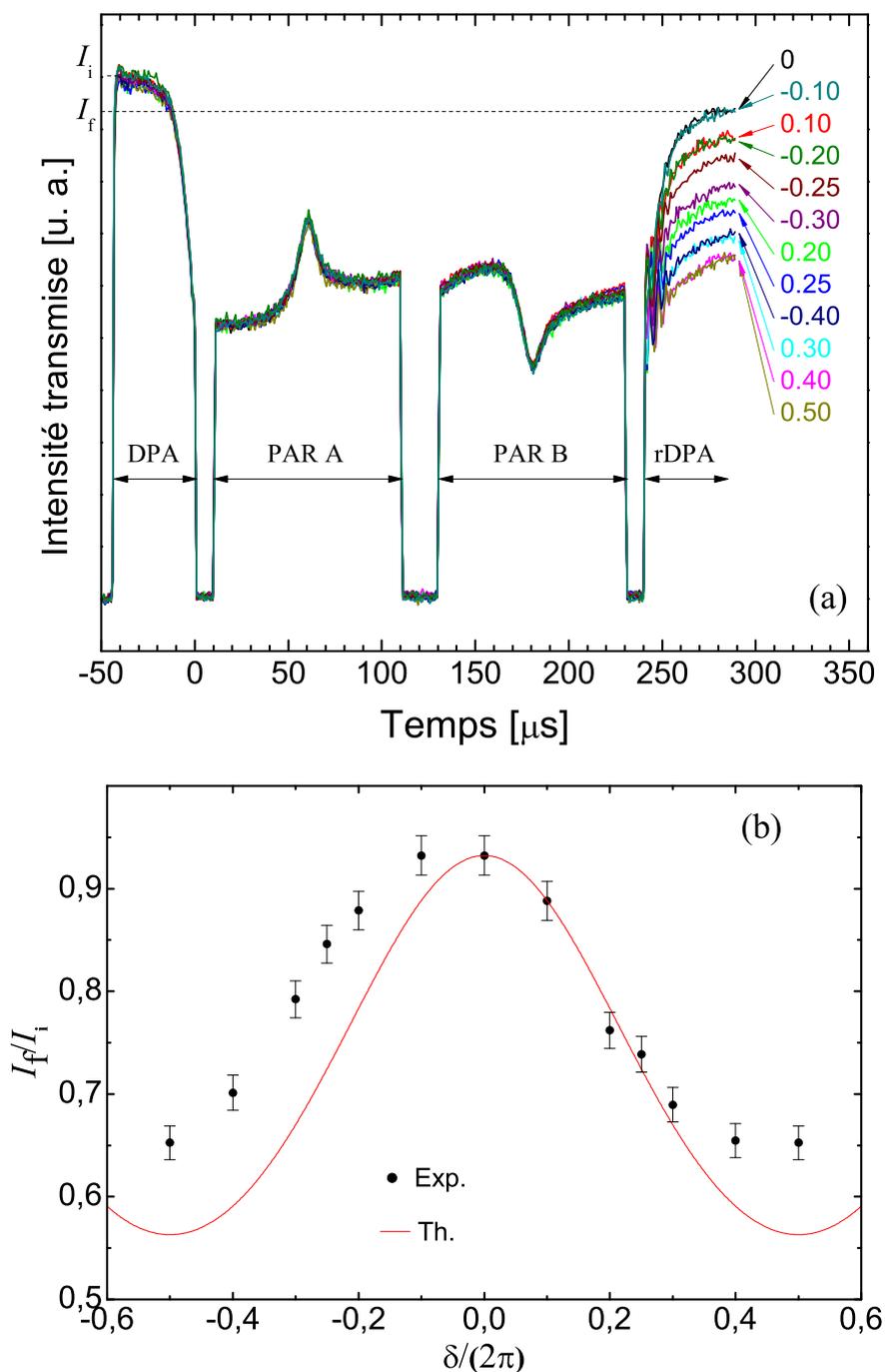


FIGURE 3.24 – a) Intensité transmise par le faisceau sonde lors d’une séquence de rephasage par double passage adiabatique. La fréquence de Rabi maximale était de 141 kHz, le taux de balayage r de $0.04 \mu\text{s}^{-2}$. Le rDPA a une phase additionnelle de δ par rapport au DPA. Chaque tracé est étiqueté par la valeur de δ . b) Efficacité déterminée comme le rapport entre l’intensité finale et l’intensité initiale de la séquence de rephasage en fonction du déphasage entre les deux demi-passages adiabatiques. Les carrés noirs correspondent aux points expérimentaux, et la ligne rouge le modèle théorique. Le léger désaccord entre l’expérience et la théorie peut provenir du mauvais calibrage des PARs et des DPAs.

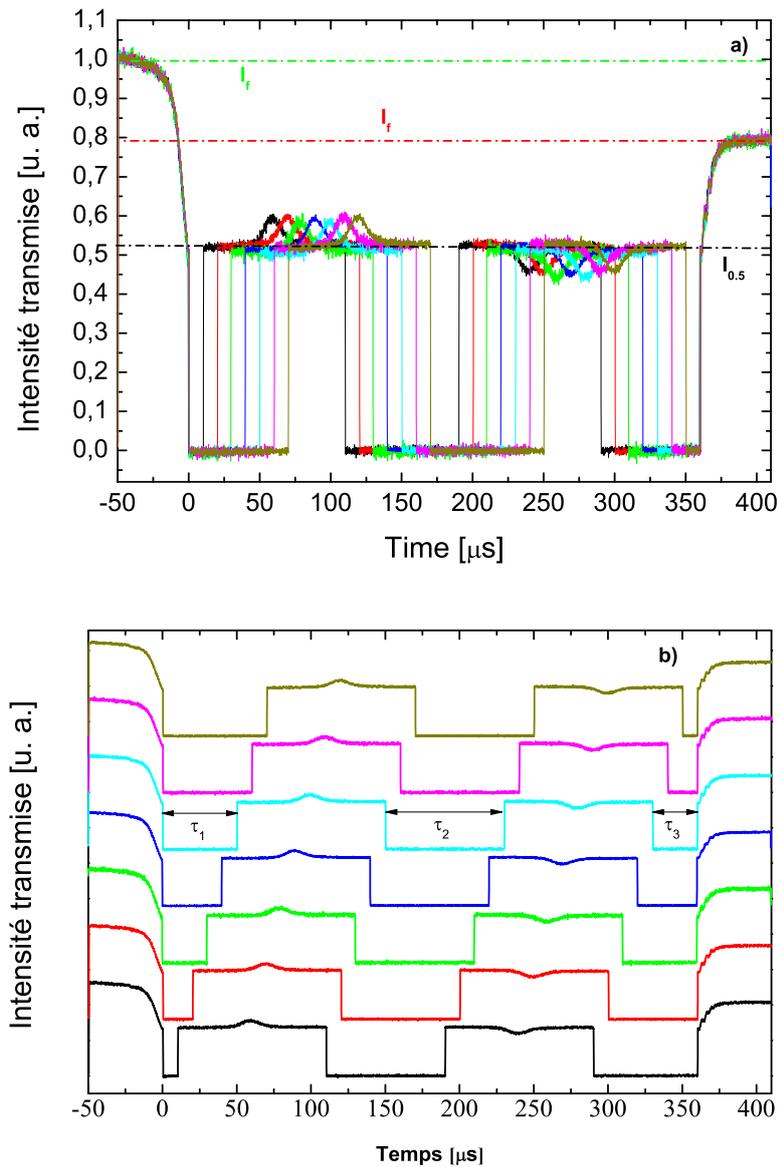


FIGURE 3.25 – Diverses séquences de rephasage pour des trios de valeurs (τ_1, τ_2, τ_3) différents tels que $\tau_3 = \tau_2 - \tau_1$. Les courbes sont superposées en a) et décalées en b). On n’observe aucun changement de l’intensité finale et donc de l’efficacité de la séquence de rephasage.

aient une différence de phase nulle, le rephasage des spins nucléaires est possible dès lors que (3.62) est remplie.

Cette expérience généralise l’étude antérieure réalisée par mon prédécesseur Romain Lauro. Il s’était alors placé dans la situation plus restrictive

$$\begin{cases} \tau_2 = 2\tau_1 \\ \tau_3 = \tau_1 \end{cases} \quad (3.63)$$

3.5 Relaxation de l'aimantation

3.5.1 Mesure du temps de relaxation de l'aimantation transversale

La technique des échos de spins permet de s'affranchir de l'élargissement inhomogène Δ_{inh} . On peut alors avoir accès à la relaxation de l'aimantation transversale. Pour ce faire, on réalise plusieurs expériences d'échos de spins pour des temps d'évolution libres totaux différents.

Les caractéristiques des PARs utilisés étaient les suivantes :

$$\Delta_0 = 6 \text{ MHz} \qquad T_{PAR} = 100 \text{ } \mu\text{s} \qquad (3.64)$$

$$\nu_{res} = 13.5 \text{ MHz} \qquad \frac{\Omega}{2\pi} = 264 \text{ kHz} \qquad (3.65)$$

Les temps d'évolution libre entre le DPA et le premier PAR, les deux PARs, le second PAR et le rDPA respectaient le schéma

$$\tau_1/\tau_2/\tau_1 \text{ avec } \tau_2 = 2\tau_1 \qquad (3.66)$$

Le temps total d'une séquence de rephasage était donc

$$T_{seq} = 2T_{PAR} + 2\tau_2 \qquad (3.67)$$

On montre sur la figure 3.26, une des séquences d'échos de spins. La définition de l'efficacité de rephasage η repose sur le niveau d'intensité initial I_i et final I_f de la séquence de rephasage. L'intensité maximale I_{ref} du pic qui survient lors du premier PAR est utilisée comme référence pour la comparaison des intensités transmises. La formule donnant η est (voir [50]) :

$$\eta' = \frac{\ln(I_f) - \ln(I_{ref})}{\ln(I_i) - \ln(I_{ref})} \qquad (3.68)$$

Les mesures ont été réalisées avec un temps d'évolution libre total allant de 20 μs à 1200 μs . On a reporté l'efficacité de chaque séquence sur la figure 3.27, en échelle logarithmique. On observe une courbe linéaire, en accord avec le modèle phénoménologique de Bloch décrivant une relaxation de l'aimantation transversale de type exponentielle. Le fit linéaire utilisé pour rendre compte des mesures expérimentales prend en compte la possibilité d'un rephasage seulement partiel des spins nucléaires à l'issue de la séquence. On définit alors l'efficacité η , tiré de la référence [50] :

$$\eta = e^{-T/T_2} \ln(\eta') \qquad (3.69)$$

ou T est la durée totale de la séquence de rephasage. Il est important ici de bien faire la distinction entre η' et η . Le premier est l'efficacité qu'on retire d'une simple expérience d'écho de spins, et qui prend en compte à la fois la relaxation transversale et le caractère imparfait du rephasage de spins nucléaires. Le second renseigne purement sur le caractère imparfait du rephasage des spins nucléaires. On l'obtient à partir du fit de la courbe de la figure 3.27, c'est l'ordonnée à l'origine. L'information sur la relaxation transversale est donnée par la constante de temps T_2 , la pente du fit linéaire. Le fit permet donc d'extraire :

$$T_2 = 500 \pm 10 \text{ } \mu\text{s} \qquad \eta = 1.08 \pm 0.03 \qquad (3.70)$$

en accord avec les mesures effectuées par les deux précédents doctorants [17, 38]. L'efficacité η vaut l'unité, ce qui signifie que le rephasage des spins nucléaires est bien réalisé.

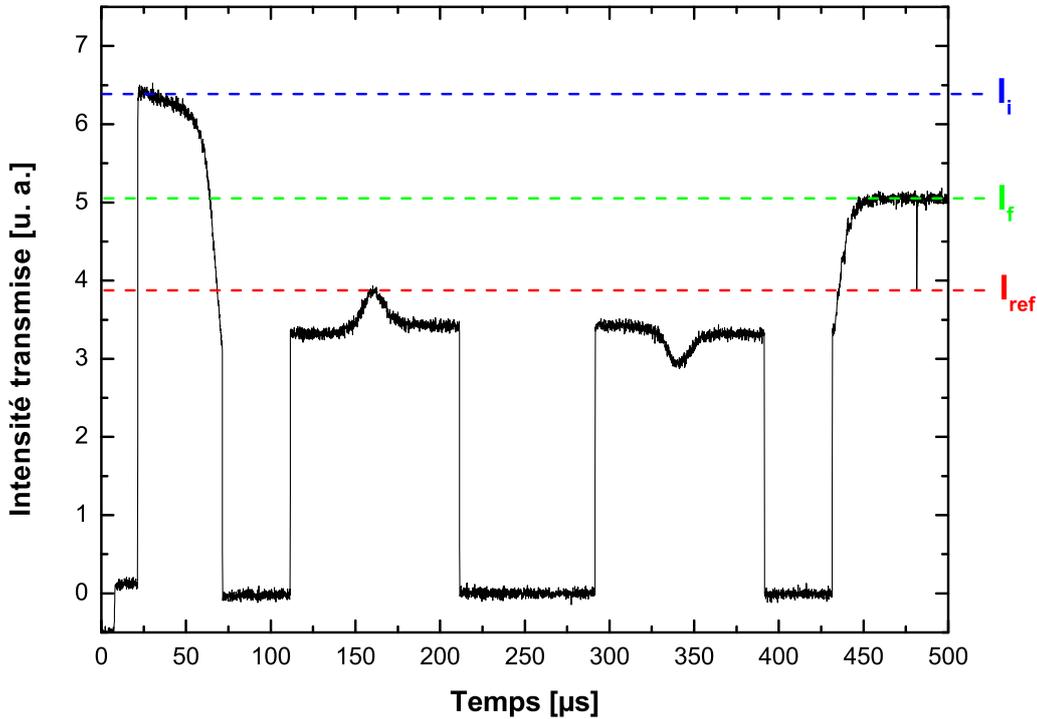


FIGURE 3.26 – Séquence d'échos de spin expérimentale. L'intensité initiale I_i (bleue), l'intensité finale I_f (vert) et l'intensité de référence I_{ref} permettent la définition de l'efficacité de rephasage de la séquence.

3.5.2 Phénomène de blocage de spin par transfert adiabatique dans le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$

On revient ici sur le cas d'un transfert de population. Lors de sa thèse, Romain Lauro avait déjà mis en évidence une efficacité d'un retournement de population supérieure à 90% lors même que le temps de basculement d'un spin T_{eff} était grand devant le temps de relaxation de l'ensemble de spins nucléaires [38]. Nous proposons ici de présenter une autre mesure plus poussée qui confirme ce phénomène, et une discussion sur le concept de température de spin. On trouvera une discussion plus complète dans les chapitres 5 et 12 de la référence [36]. Une interprétation de nos résultats expérimentaux se trouve dans la référence [51].

On rappelle que notre système se compose de spins nucléaires 1/2 des ions Tm^{3+} sur les sites 3 et 5. Le faible dopage du cristal en ions Tm^{3+} permet de les considérer indépendants les uns des autres. Nous avons vu au deuxième chapitre qu'on pouvait d'un point de vue qualitatif et en première approximation, ne pas tenir compte de la dispersion angulaire du champ magnétique effectif qui s'applique sur chacun des ions Tm^{3+} du fait de l'anisotropie du tenseur gyromagnétique. On peut alors définir les populations N_2 et N_1 des deux niveaux Zeeman E_2 et E_1 de l'ensemble de spins, telles que $N_2 + N_1 = 1$.

En l'absence de champ radio-fréquence, le rapport des populations à l'équilibre thermody-

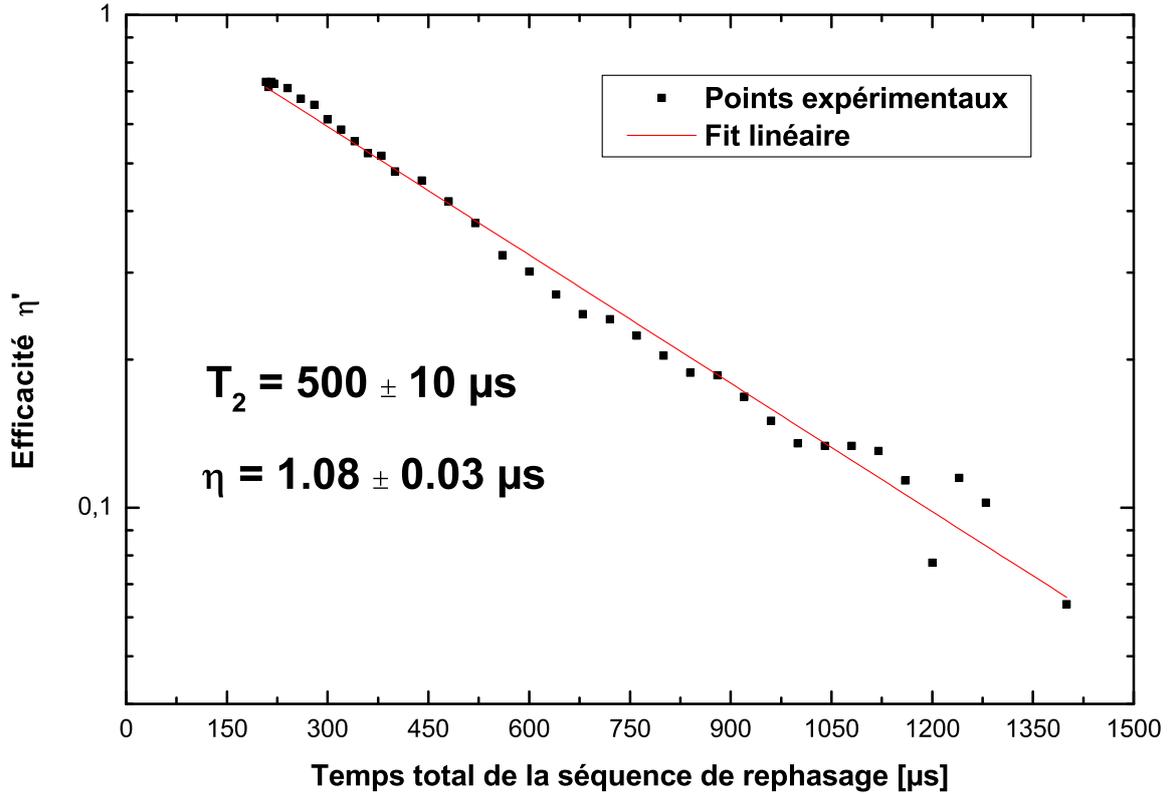


FIGURE 3.27 – Décroissance de l'intensité transmise à la fin de la séquence de rephasage en fonction du temps total de cette dernière. Le fit exponentiel (traits pointillés rouge) des points expérimentaux (carrés noirs) donne une constante de temps de $T_2 = 450 \pm 12 \mu\text{s}$.

namique est donné par :

$$\frac{N_2}{N_1} = \exp\left(-\frac{\gamma_n \hbar |\mathbf{B}_{eff}|}{k_B T}\right) \quad (3.71)$$

où k_B est la constante de Boltzmann et T la température de l'échantillon, ou encore du réseau. La température T caractérise donc le rapport de population. En présence d'un champ radio-fréquence, il est encore possible de définir une température dite de spin T_S . Elle est valable uniquement lorsque un régime permanent s'est établi, c'est à dire lorsque s'est établi un équilibre entre l'irradiation radio-fréquence et la relaxation due au réseau. On peut alors écrire, pour ces nouvelles populations N_2 et N_1 :

$$\frac{N_2}{N_1} = \exp\left(-\frac{\gamma_n \hbar |\mathbf{B}_{eff}|}{k_B T_S}\right) \quad (3.72)$$

Il est important de noter que le concept de température est issu de la physique statistique : il n'est ainsi valable que pour un ensemble macroscopique de sous-systèmes, tel par exemple notre ensemble de spins nucléaires ($\approx 10^{11}$ spins). Ce concept de température repose sur la notion d'équilibre énergétique des spins nucléaires entre eux. Par ailleurs, pour qu'une température s'établisse dans un ensemble, il faut que ce dernier soit ergodique, c'est à dire que l'énergie

totale de l'ensemble macroscopique soit la seule constante du mouvement [36]. Dans ce cas, le système peut se décrire uniquement via les populations de ses niveaux d'énergie, ce qui veut dire que toute aimantation transversale s'est éteinte. Il ne peut s'appliquer qu'en l'absence de champ radio-fréquence et une fois que le système atteint un premier régime permanent après une échelle de temps de l'ordre de T_2 , temps de relaxation de l'aimantation transversale mesurée ci-dessus. Le concept de température de spin en tant que véritable hypothèse physique a été consolidé expérimentalement dans les années 1950s [52, 53, 54] via des expériences portant sur la désaimantation isentropique en champ nul (ou très faible, tel qu'il soit inférieur aux champs locaux produits par les ions voisins du système). Redfield a proposé d'appliquer ce concept de température de spin dans le référentiel tournant, donc en présence d'un champ radio-fréquence ; afin d'expliquer justement les résultats obtenus dans des situations de passages adiabatiques rapides de durée beaucoup plus longue que le T_2 dans les solides [55].

Cette description, bien que séduisante, ne peut s'appliquer cependant à notre système, comme nous allons le voir.

Les équations de Bloch stipulent que pour un transfert de population par passage adiabatique rapide réussisse, le temps de basculement des spins T_{eff} (3.56) doit satisfaire :

$$T_{eff} \ll T_2, T_1 \quad (3.73)$$

Nous avons réalisé une série de transfert de population par passage adiabatique rapide, où l'on a fait varier T_{eff} en augmentant la durée totale d'un PAR. Les caractéristiques étaient les suivantes :

$$\Delta_0 = 6 \text{ MHz} \quad \nu_{res} = 13.5 \text{ MHz} \quad \frac{\Omega}{2\pi} = 263.2 \text{ kHz} \quad (3.74)$$

Comme on peut le voir sur la figure 3.28, la condition exprimée par l'équation (3.73) n'est pas du tout respectée et un PAR reste très efficace pour des temps de basculement long. Ce blocage de spin ne peut cependant pas s'expliquer par un équilibre thermodynamique partiel des ions Tm^{3+} excités par le champ radio-fréquence, équilibre qui serait caractérisé par une température de spin. En effet :

- le nombre d'ions actifs, excités par le champ radio-fréquence est trop faible ($\approx 10^{-11}$) pour permettre le fort couplage nécessaire à la thermalisation. Les systèmes monoatomiques du début de la RMN étaient constitués d'un grand nombre de particules, de l'ordre du nombre d'Avogadro.
- le blocage est observé sur une échelle de temps longue par rapport à T_2 . Cependant, ce T_2 est principalement dû à l'interaction des ions Tm^{3+} avec leurs voisins Al^{3+} , qui ont un fort moment magnétique, environ quinze fois supérieur à celui des ions Tm^{3+} . Le blocage de spin reste certainement court devant le temps d'interaction caractéristique des ions Tm^{3+} .

Durant la majeure partie du transfert de population, l'aimantation reste alignée selon le champ magnétique : elle subit ainsi la relaxation due au réseau, de taux $1/T_1$. Lors du basculement de l'aimantation (la durée étant donnée par T_{eff}), la seule relaxation principale est celle due aux ions Al^{3+} , qui ne sont pas couplés au champ radio-fréquence. La préservation de l'aimantation sur des temps longs provient vraisemblablement d'un allongement du T_2 .

L'un des intérêts de cette expérience est que nous sommes capables d'observer ce phénomène de blocage de spin ¹ dans une configuration totalement différente de celle des années 1950s. Cela

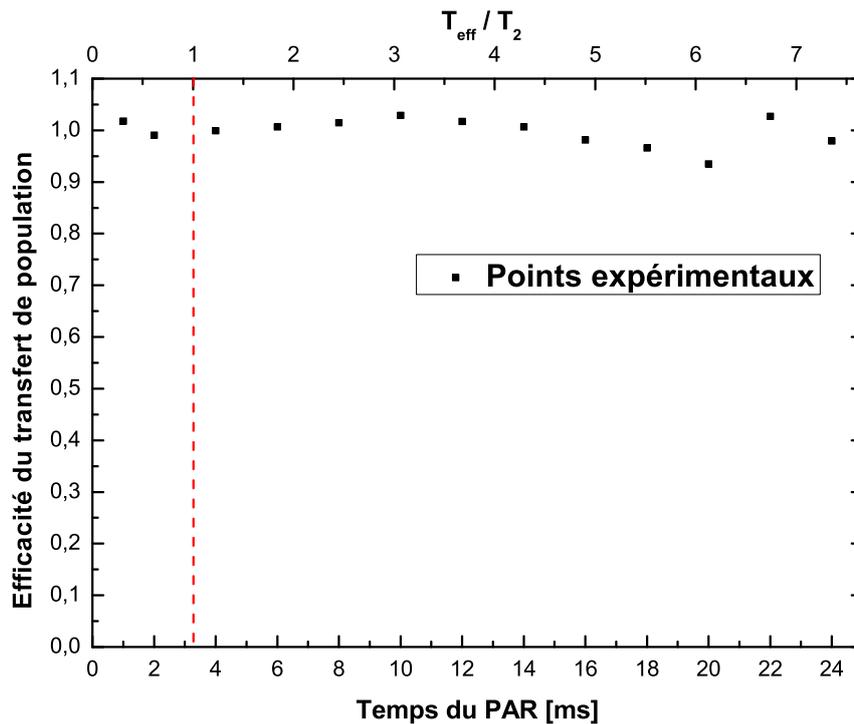


FIGURE 3.28 – Mesure de l’efficacité du transfert de population par passage adiabatique rapide, en fonction de la durée de ce dernier. Chaque point expérimental représente l’efficacité du transfert de population à l’issue du PAR. L’efficacité reste quasiment constante et égale à l’unité sur de longue durée de PAR.

tient au fait que la détection optique des ions Tm^{3+} permet de travailler avec des échantillons très peu concentrés.

3.6 Conclusion

La réalisation du circuit radio-fréquence a été une étape cruciale. Le modèle a été fécond et permet de prédire convenablement les principales mesures expérimentales. Nous nous sommes placés dans la configuration angulaire du champ magnétique ($\Theta = -49.4^\circ$, $\Phi = 45^\circ$) qui optimise le rapport de branchement. En choisissant une polarisation du faisceau optique adaptée, et en jouant sur les splittings différents des classes de sites, seuls les ions des classes 3 et 5 étaient actifs lors de nos expériences. Nous avons démontré expérimentalement les prévisions théoriques développées au cours du deuxième chapitre. La robustesse des PARs et des DPAs a été validée. Nous avons illustré comment répondre aux différentes conditions nécessaires au bon déroulement des expériences : respect du critère d’adiabaticité ou encore sensibilité de notre technique de détection à la différence de phase entre le DPA et le rDPA. Un écho de Hahn exploitant le double passage adiabatique est une technique efficace dans $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ pour refocaliser les spins nucléaires à des moments prévisibles et s’affranchir de l’élargissement inhomogène de notre cristal de l’ordre de 500 kHz. Cette technique permet donc d’aborder les phénomènes

1. connu également sous le terme de spin-locking dans la littérature.

physiques conduisant à la réduction de l'aimantation nucléaire transversale. Un temps de vie des cohérences de spins nucléaires, ou plus proprement de l'aimantation nucléaire transversale dans le milieu a été mesuré à $T_2 = 500 \pm 10 \mu s$, tout en ayant la certitude qu'aucun gêne d'ordre technique puisse perturber cette valeur, car $\eta \approx 1$.

On se propose dans le chapitre suivant de se pencher plus en avant sur les mécanismes conduisant à la réduction de l'aimantation transversale.

Chapitre 4

Extension de la durée de vie de l'aimantation transversale

Les séquences de rephasage par double passage adiabatique ont permis de résoudre le problème lié à l'élargissement inhomogène. Cependant, un autre phénomène provoque la destruction de l'aimantation transversale après un certain temps T_2 , de l'ordre de $500 \mu\text{s}$. On se propose dans ce chapitre d'étudier les causes de cette durée de vie finie et de trouver une solution permettant de préserver \mathbf{A}_\perp au-delà de $500 \mu\text{s}$.

4.1 Relaxation de l'aimantation transversale

4.1.1 Décohérence et déphasage

L'environnement d'un ion Tm^{3+} est au cœur de la relaxation de sa cohérence de spin nucléaire. La manière de le décrire vis à vis de l'ion Tm^{3+} conditionne la compréhension que l'on pourra obtenir de l'origine de cette relaxation.

Une première approche consiste à considérer l'ensemble formé d'un ion Tm^{3+} actif et son environnement comme un même système quantique isolé :

$$\text{ensemble} = \text{ion } \text{Tm}^{3+} + \text{environnement} \quad (4.1)$$

Ce dernier évolue alors suivant une transformation unitaire : la trace, mais aussi les cohérences de l'opérateur d'état ρ_{tot} de l'ensemble sont conservées. Les états quantiques de l'ensemble s'écrivent comme le produit tensoriel entre un état de spin nucléaire et un état de l'environnement

$$|\text{spin nucléaire}\rangle \times |\text{environnement}\rangle \quad (4.2)$$

Ces deux sous-ensembles ne sont pas indépendants, mais interagissent entre eux. L'ion Tm^{3+} agit sur son environnement, et ce dernier rétroagit sur l'ion Tm^{3+} . L'évolution particulière du spin nucléaire de l'ion Tm^{3+} s'obtient via l'opérateur d'état réduit, obtenu en réalisant la trace partielle de ρ_{tot} sur l'environnement. Cet opérateur réduit ρ n'évolue pas suivant une transformation unitaire, une relaxation des éléments non-diagonaux ρ_{ab} et ρ_{ba} de cet opérateur réduit se produit : ce phénomène est la décohérence. Les modules de ρ_{ab} et ρ_{ba} ne se conservent pas.

Ainsi, dans la représentation de la sphère de Bloch, le vecteur de Bloch retrouve son alignement initial mais voit son module diminué, d'autant plus que le temps d'évolution libre est long. La réduction de l'aimantation nucléaire transversale a donc pour origine, la destruction des cohérences de spins nucléaires individuelles.

Il est cependant délicat d'établir correctement l'état quantique de l'environnement. Une approche plus simple d'un point de vue théorique, mais tout aussi féconde pour la compréhension des phénomènes se manifestant dans nos expériences, consiste à considérer un ion Tm^{3+} décrit quantiquement soumis à une perturbation semi-classique : l'action de l'environnement est assimilée à celle d'un champ magnétique fluctuant temporellement de manière aléatoire. Le Hamiltonien de l'ion Tm^{3+} dépend désormais du temps, mais l'évolution, elle, suit une transformation unitaire. Le module des éléments non-diagonaux de l'opérateur d'état de l'ion Tm^{3+} se conserve alors, pour peu que le processus soit élastique.

Contrairement à l'approche purement quantique, un ion individuel conserve sa cohérence de spin nucléaire. En revanche, la fréquence de transition de cet ion n'est plus stable. En effet cette fréquence, connue aussi sous le nom de fréquence de Larmor, est fonction du champ normalement du champ magnétique s'exerçant sur l'ion. Or, ce dernier fluctue désormais, pour mieux rendre compte de l'action de l'environnement. Lorsqu'on regarde l'ensemble des spins nucléaires, ces derniers, bien qu'ils conservent leur état de superposition, se déphasent entre eux. Mais ce déphasage n'est pas de la même nature que celui provoqué par l'élargissement inhomogène. Ici, les spins se déphasent de manière aléatoire : les relations de phase initiales entre les spins nucléaires sont irrémédiablement détruites. Le déphasage est ici non-déterministe.

Alors, lorsque qu'on réalise la moyenne des spins nucléaires, ces derniers s'ajoutent de manière destructive, ce qui conduit à une réduction de l'aimantation nucléaire transversale. Dans ce point de vue, c'est le déphasage aléatoire entre les spins qui est à l'origine de la destruction de l'aimantation transversale.

Nous avons ici deux approches qui sont radicalement différentes. La première adoptant un point de vue complètement quantique, il serait tentant de la considérer comme plus *fondamentale*. Cependant, il semble délicat d'établir une correspondance entre ces deux approches, et il n'est pas certain qu'on puisse en trouver une. On pourra trouver une étude détaillée de la différence entre les notions de déphasage d'un spin et de décohérence d'un spin se trouve dans [56].

Pour distinguer expérimentalement le déphasage aléatoire de la décohérence dans notre cristal $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$, il faudrait avoir accès au module des éléments non-diagonaux de l'opérateur densité d'*un seul* ion Tm^{3+} . En effet, la décohérence conduirait à une diminution du module, tandis que le déphasage aléatoire laisserait le module inchangé.

Dans nos expériences, nous utilisons une détection optique des signaux RMN. Nous avons vu aux chapitres précédents, comment le demi-passage adiabatique permettait de convertir l'aimantation transversale en population. Nous avons montré également théoriquement et expérimentalement la nécessité du rDPA, et pourquoi il constituait un outil adéquat pour établir une correspondance entre présence d'une aimantation nucléaire transversale et mesure d'une population conséquente dans le niveau Zeeman sondé.

Le rDPA réalise une conversion des cohérences de spins nucléaires individuelles en population, et c'est cette dernière que l'on mesure. Alors que le rDPA est très sensible à la phase de l'aimantation, la mesure proprement dite n'est sensible qu'à la projection selon \mathbf{u}_z de l'aiman-

tation nucléaire. Regardons ce qu'il se passe selon l'approche qu'on considère¹ :

- dans le cas de la décohérence, les spins nucléaires sont alignés mais leur module a fortement diminué. L'application du rDPA les ramène tous alignés selon l'axe vertical \mathbf{u}_Z . L'aimantation nucléaire dans le milieu est purement selon \mathbf{u}_Z mais elle s'est donc réduite.
- dans le cas du déphasage aléatoire, les spins nucléaires ont un module égal à l'unité, mais sont déphasés dans le plan horizontal de la sphère de Bloch. L'application du rDPA ne les ramène donc pas tous ensemble selon \mathbf{u}_Z . Les spins nucléaires seront distribués autour de cette valeur. Seule la projection des spins nucléaires est accessible, ce qui limite le module de l'aimantation longitudinale.

On aboutit à la conclusion que notre technique de détection de signaux RMN ne permet pas de discriminer le mécanisme décrivant la destruction de l'aimantation transversale. L'un des problèmes semblent être le fait que l'on travaille avec un ensemble d'ions. Cependant, différentes études montrent également qu'il est difficile de conclure dès lors qu'on utilise une détection optique, et cela qu'on travaille avec un ensemble de systèmes, ou bien avec un système unique, comme un centre NV (diamant isotopiquement pur) [57, 58, 59], un ion calcium piégé dans un piège de Paul [60] ou encore un atome unique de rubidium [61].

On adoptera par la suite l'approche semi-classique. Elle permet une description relativement simple et aisée des effets de l'environnement sur les ions actifs, qui par ailleurs se révélera plutôt en accord avec nos résultats expérimentaux.

4.1.2 L'ion Tm^{3+} et son environnement dans l'approche semi-classique

Les effets de l'environnement local composé en première approximation par les ions Al^{3+} , peuvent se décrire par un champ magnétique local. Cependant, les ions Al^{3+} interagissent également entre eux par mécanisme *flip-flop*. Ce processus, qui voit le basculement simultané de deux spins nucléaires de composantes selon Z opposées, est très efficace car il se produit à énergie constante. Ce mécanisme conduit à un champ magnétique local fluctuant aléatoirement dans le temps $\mathbf{B}_{fl}(t)$.

Ce champ fluctuant peut se décomposer en deux parties :

- une partie perpendiculaire au champ magnétique effectif \mathbf{B}_{eff} . Elle s'ajoute alors au champ radio-fréquence et affecte alors la pulsation de Rabi, ce qui peut diminuer l'efficacité d'un PAR.
- une partie parallèle au champ magnétique effectif \mathbf{B}_{eff} . Elle s'ajoute alors à ce dernier, et modifie donc aléatoirement la pulsation de transition entre les deux niveaux Zeeman.

Nous avons démontré expérimentalement au chapitre précédent, une très grande efficacité des PARs, supérieure à 95 %. La partie perpendiculaire au champ magnétique \mathbf{B}_{eff} du champ fluctuant n'influence *a priori* pas de manière significative les PARs. On ne la prendra pas en compte par la suite. On ne s'intéressera donc qu'aux contributions au champ effectif du champ local fluctuant aléatoirement, qu'on désignera (encore) par $\mathbf{B}_{fl}(t)$. Le champ total permettant la levée de dégénérescence des niveaux Zeeman s'écrit alors :

$$\mathbf{B}_{eff} + \mathbf{B}_{fl}(t) \tag{4.3}$$

Regardons alors ce qu'il advient pour un spin nucléaire lors d'une séquence de rephasage par double passage adiabatique.

1. pour plus de clarté, on ne prend pas en compte l'élargissement inhomogène

4.1.3 Écho de Hahn avec double passage adiabatique

On reprend ici la séquence d'écho de spins par double passage adiabatique. On étudie le processus lorsqu'on prend en compte le champ fluctuant pour donner une explication plus consistante et plus concrète aux résultats expérimentaux du chapitre précédent.

Prenons un vecteur de Bloch \mathbf{b}_a de pulsation ω_a initialement dans le plan équatorial de la sphère de Bloch, aligné selon \mathbf{u}_X . Après un certain temps d'évolution libre τ_{el} , l'angle $\eta_0(\tau_{el}) = \widehat{\mathbf{u}_X, \mathbf{b}_a}$ parcouru vaut $\omega_a \tau_{el}$ sans prise en compte des fluctuations locales du champ. Lorsque c'est le cas, la pulsation peut changer à plusieurs reprises pendant l'évolution libre ; l'angle parcouru est déterminé par :

$$\eta(\tau_{el}) = \sum_i \omega_i \tau_i \text{ avec } \sum_i \tau_i = \tau_{el} \quad (4.4)$$

où le temps d'évolution libre est partitionné en intervalle τ_i sur lequel la fréquence de transition est stable et vaut ω_i . On note $\delta_\eta(\tau_{el}) = \eta(\tau_{el}) - \eta_0(\tau_{el})$, l'écart du vecteur de Bloch entre la situation réelle et la situation idéale. Cet écart peut être positif ou négatif.

On applique maintenant à \mathbf{b}_a initialement selon \mathbf{u}_X , la séquence décrite au deuxième chapitre, en prenant en compte cette fois-ci les fluctuations temporelles aléatoires du champ statique. Une illustration est proposée sur la figure 4.1. On notera ici $\eta = \widehat{\mathbf{u}_X, \mathbf{b}_a}$.

- (a) position initiale du vecteur de Bloch
- (b) évolution libre : rotation d'angle $\theta_1 = \eta_0(\tau_1) + \delta_\eta(\tau_1)$, $\eta = \theta_1$.
- (c) premier passage adiabatique PAR A : réflexion d'axe Σ tel que $\sigma'_A = \widehat{\mathbf{u}_X, \Sigma}$. A l'issue du passage adiabatique, près réflexion, $\eta = 2\sigma'_A - \theta_1$.
- (d) évolution libre : rotation d'angle $\theta_2 = \eta_0(\tau_2) + \delta_\eta(\tau_2)$, $\eta = 2\sigma'_A - \theta_1 + \theta_2$.
- (e) second passage adiabatique PAR B : réflexion d'axe Σ tel que $\sigma'_B = \widehat{\mathbf{u}_X, \Sigma}$. A l'issue du passage adiabatique, $\eta = 2\sigma'_B - 2\sigma'_A + \theta_1 - \theta_2$.
- (f) évolution libre : rotation d'angle $\theta_3 = \eta_0(\tau_3) + \delta_\eta(\tau_3)$, $\eta = 2\sigma'_B + 2\sigma'_A + \theta_1 - \theta_2 + \theta_3$.

Toujours en utilisant (2.85), on utilise comme au deuxième chapitre la relation (2.80) et l'une des deux conditions (2.83) ou (2.84) pour satisfaire les critères d'un bon rephasage. On obtient alors finalement :

$$\eta = \delta_\eta(\tau_3) - \delta_\eta(\tau_2) + \delta_\eta(\tau_1) \quad (4.5)$$

A l'issue d'une séquence par double passage adiabatique, les fluctuations temporelles de l'environnement empêchent un retour à la position initiale du vecteur de Bloch. Cet écart à la position initiale est imprévisible ; et change selon la valeur de $\delta_n(\tau_1)$, $\delta_n(\tau_2)$ et $\delta_n(\tau_3)$, mais aussi selon le spin considéré. On ne peut donc pas le compenser par un choix des conditions initiales des passages adiabatiques, notamment.

Conséquences au niveau de l'ensemble d'ions actifs

Regardons maintenant les conséquences de ces fluctuations aléatoires de l'environnement local sur l'ensemble de spins nucléaires. Chaque ion Tm^{3+} a un environnement local spécifique, du fait que la position des ions Al^{3+} change légèrement d'un site à l'autre. Les fluctuations aléatoires du champ magnétique local $\mathbf{b}_{fl}(t)$ ne sont donc pas les mêmes pour les ions Tm^{3+} . De ce fait, leurs pulsations de transition fluctueront différemment, tant temporellement qu'en

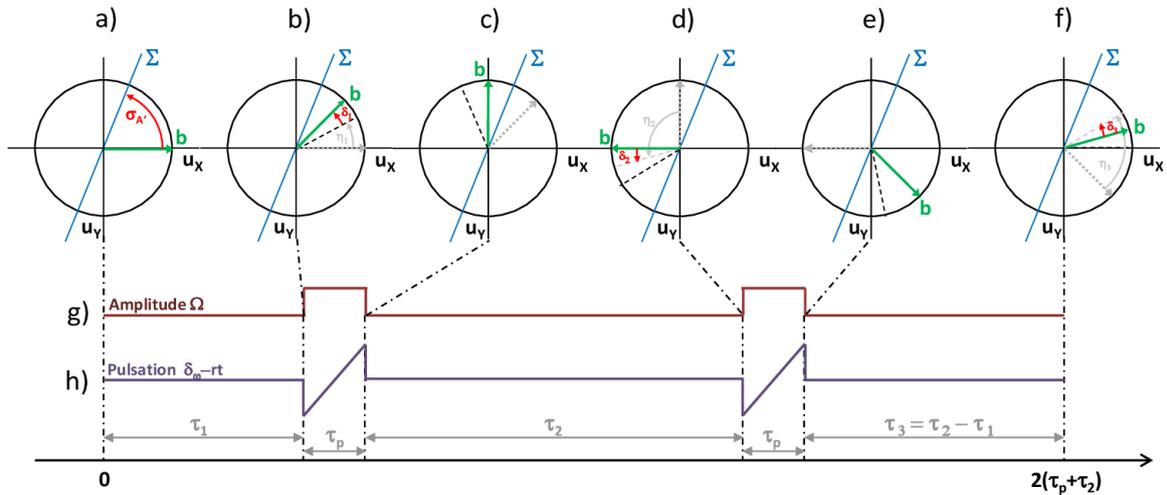


FIGURE 4.1 – Séquence de rephasage par double passage adiabatique rapide, similaire à (2.7), avec cette fois-ci la prise en compte des fluctuations aléatoires de la vitesse angulaire du vecteur de Bloch. Les traits pointillés noirs correspondent aux positions du vecteur de Bloch de la figure (2.7). Le vecteur de Bloch en vert ne retrouve pas sa position initiale à l'issue de la séquence.

amplitude. Autrement dit, le nombre de valeurs prises par la fréquence de transition pendant un certain laps de temps τ_{el} , ainsi que les valeurs prises elles-mêmes seront différent d'un ion Tm^{3+} à l'autre. Explicitons ceci par quelques exemples :

- pulsation d'un spin a : successivement $\omega_{a,1}$, $\omega_{a,2}$, $\omega_{a,3}$ et $\omega_{a,4}$ pendant respectivement τ_{a1} , τ_{a2} , τ_{a3} et τ_{a4} .
- pulsation d'un spin b : successivement $\omega_{b,1}$, $\omega_{b,2}$, ... $\omega_{b,10}$ et $\omega_{b,11}$, pendant respectivement τ_{b1} , τ_{b2} , ... τ_{b10} et τ_{b11} .
- pulsation d'un spin c : successivement $\omega_{c,1}$ et $\omega_{c,2}$ pendant respectivement τ_{c1} et τ_{c2} .

où à chaque fois on a

$$\sum_i \tau_{\lambda,i} = \tau_{el}, \quad \lambda=a,b,c \quad (4.6)$$

A l'issue de la séquence de rephasage, les vecteurs de Bloch seront distribués autour d'une direction du plan horizontal de la sphère de Bloch. Cette plage sur laquelle ils sont distribués sera d'autant plus grande que le temps d'évolution libre sera élevé. De ce fait, l'aimantation transversale de l'ensemble des spins nucléaires tend vers zéro lorsque τ_{el} croît.

4.1.4 Répétition de la séquence d'écho : découplage dynamique

On considère un spin nucléaire soumis au champ effectif \mathbf{B}_{eff} et au champ local fluctuant aléatoirement au cours du temps $\mathbf{B}_{fl}(t)$. L'écartement des niveaux Zeeman Δ_g , ou encore la pulsation de la transition de spin $\omega_{12} = \frac{\Delta_g}{\hbar}$ change donc aléatoirement dans le temps. Pour décrire ces fluctuations, on utilise deux paramètres :

- le temps de corrélation des fluctuations τ_c : c'est le temps pendant lequel en moyenne la fréquence de transition reste la même, ou encore le temps moyen qui s'écoule entre deux fluctuations.

- l'amplitude moyenne des fluctuations σ_c : indique de quelle quantité s'écarte en moyenne la fréquence de transition de sa valeur initiale.

A l'issue d'une séquence de rephasage d'une durée totale τ_{seq} , on veut conserver la direction initiale du spin nucléaire (éventuellement à une phase π près). Jusqu'à maintenant, la séquence de rephasage consistait en un écho de spins standard. La durée τ_{es} de cet écho correspondait donc à τ_{seq} . Or les résultats des expériences présentées au troisième chapitre montrent qu'on n'arrive pas à préserver cette direction initiale à l'issue de cette séquence de rephasage. Grâce à ces résultats, et avec ce qui a été dit plus haut dans ce chapitre, il est très probable que l'on soit dans la situation où $\tau_{seq} = \tau_{es} \gg \tau_c$.

Pour s'assurer de la conservation de la direction initiale du spin nucléaire à l'issue d'un écho de spin standard, malgré les fluctuations locales de l'environnement, il est capital que la pulsation Δ_g/\hbar de la transition Zeeman reste constante pendant toute la durée τ_{es} . Il faut donc que

$$\tau_{es} < \tau_c \text{ voire même } \tau_{es} \ll \tau_c \quad (4.7)$$

En répétant successivement des échos de spins standard respectant (4.7), la probabilité que ω_{12} change durant un écho de spin standard est très faible. La direction du spin nucléaire dans le plan équatorial de la sphère de Bloch est donc conservée à l'issue de chaque séquence élémentaire. Ainsi, à la fin de la séquence totale de rephasage composée d'un nombre n d'écho de spin standard de durée τ_i , le spin nucléaire retrouvera son orientation initiale.

Interprétons ce qui se passe à l'échelle d'un spin nucléaire individuel. Les effets de l'environnement sur le spin nucléaire sont d'autant plus prononcés et conséquents que l'interaction entre les deux systèmes est prolongée. On peut parler d'un phénomène cumulatif, dans le sens où plus le temps d'évolution libre entre deux basculements est long, plus le nombre de fluctuations pendant ce temps est grand. A partir du moment où l'on divise le temps d'évolution libre total du spin nucléaire en une succession de *micro-évolution*, et qu'on agit sur le système entre deux micro-évolution, le phénomène cumulatif est amoindri. Le spin nucléaire ressent moins les effets de son environnement local : on parle alors de découplage dynamique des fluctuations de l'environnement, dynamique car on agit quasi en permanence sur le spin nucléaire afin limiter les effets des fluctuations aléatoires.

En considérant maintenant l'ensemble de spins nucléaires, on s'attend ainsi à ce que pour une même durée de la séquence de rephasage totale, l'ajout d'un grand nombre de séquence d'écho de spins standard préserve mieux l'aimantation nucléaire transversale, ce qui implique alors une extension de sa durée de vie T_2 .

4.2 Tentative de découplage dynamique à l'aide des passages adiabatiques

L'orientation du champ magnétique statique \mathbf{B}_s est toujours fixée à $\Theta = -49.4^\circ$. On effectue tout d'abord une séquence de rephasage comprenant un unique écho de spin, soit deux PARs.

Les conditions de cette expériences sont les suivantes :

$$\Delta_0 = 3.2 \text{ MHz}, \quad T_{PAR} = 80 \text{ } \mu\text{s} \quad (4.8)$$

$$\tau_1 = \tau_3 = 140 \text{ } \mu\text{s}, \quad \tau_2 = 280 \text{ } \mu\text{s} \quad (4.9)$$

$$\nu = 13.5 \text{ MHz}, \quad \Omega = 264 \text{ kHz} \quad (4.10)$$

Le temps total de la séquence est donc de $720 \text{ } \mu\text{s}$ et constitue la séquence de référence. Puis on réalise des séquences contenant 2, 3 et 4 échos standards, soit respectivement 4, 6 et 8 PARs. Le temps total étant toujours le même, ce sont les valeurs de τ_1 et τ_2 qui changent. Les résultats sont présentés à la figure (4.2)

On n'observe pas d'effet significatif en augmentant le nombre d'écho standard à l'intérieur d'une séquence rephasage par passage adiabatique rapide. La séquence de rephasage avec deux échos standards semble aussi efficace que la séquence de référence; les deux autres exhibent une efficacité moindre. Cette baisse peut s'expliquer par le cumul d'erreur des PARs. En effet, même si leur efficacité est supérieure à 95 %, l'erreur qui peut être négligée pour un, deux voire trois PARs ne peut sans doute plus l'être au-delà.

La séquence de rephasage contenant quatre échos standards, chacun d'entre eux dure $180 \text{ } \mu\text{s}$. On n'a pas pu en mettre davantage. En effet, on est confronté à un problème : pour réduire considérablement le temps total d'un écho standard, il faut raccourcir le temps des PARs. Il faut alors ajuster Δ_0 et Ω afin de respecter le critère d'adiabaticité. Cependant, la pulsation de Rabi est limitée (on peut difficilement atteindre 300 kHz), ce qui contraint à restreindre la plage de balayage du PAR. Si Δ_0 n'est pas très supérieur à Δ_{inh} , on ne peut manipuler qu'une partie de l'ensemble des spins nucléaires : le PAR perd donc en efficacité.

L'utilisation d'échos de spin standards via une impulsion π pourrait résoudre le problème : en effet, l'interaction du champ radio-fréquence avec les ions peut être rendue très courte, inférieure à la dizaine de microseconde. Cependant, nous avons vu au deuxième chapitre que l'élargissement inhomogène Δ_{inh} rendait leur utilisation trop contraignante. Cependant, si on réussit à trouver une configuration dans laquelle Δ_{inh} est suffisamment réduit, il serait alors possible de produire avec nos contraintes expérimentales, des impulsions π efficaces, c'est à dire suffisamment large spectralement pour couvrir Δ_{inh} . Nous allons voir de suite comme cela est possible dans le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$.

4.3 Minimisation de l'élargissement inhomogène dans le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$

On rappelle que l'objectif est de s'affranchir des fluctuations de l'environnement qui déphasent de manière irréversible les spins nucléaires, conduisant à une extinction de l'aimantation nucléaire transversale. Pour ce faire, la séquence de rephasage n'est plus constituée d'un unique écho de Hahn, mais d'une multitude; l'idée étant de refocaliser constamment les spins nucléaires sur un intervalle de temps plus court que le temps de corrélation des fluctuations τ_c .

Comme étudié au deuxième chapitre, un écho de Hahn peut se réaliser avec une unique impulsion. Cette impulsion de rephasage est une impulsion π . Il nous est possible techniquement de générer des impulsions d'aire π courtes, d'une durée inférieure à la dizaine de microsecondes.

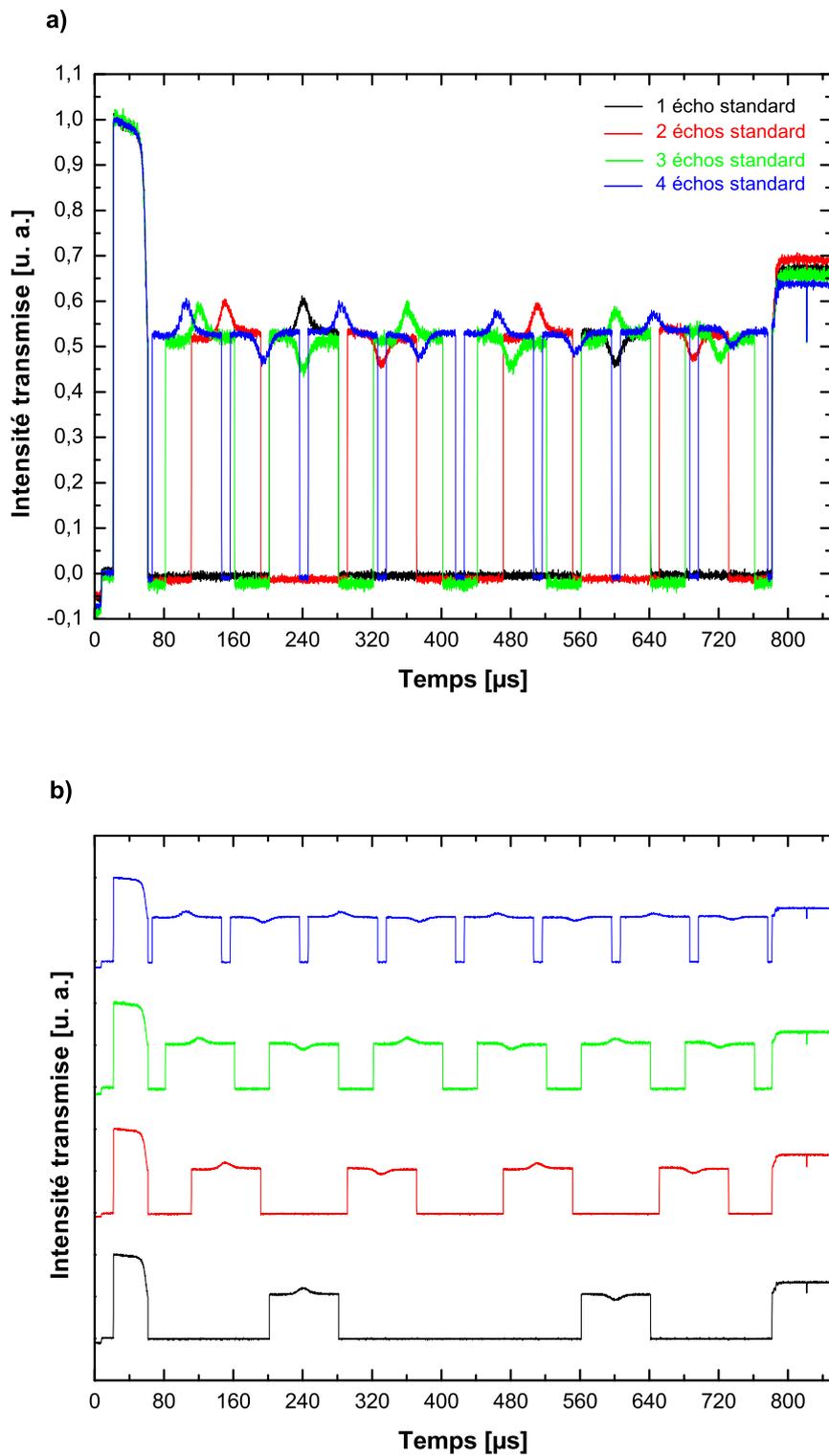


FIGURE 4.2 – Expériences d'échos de spins multiples. a) La durée totale des séquences est de 720 μs . L'intensité transmise à la fin des séquences est sensiblement la même, indépendamment du nombre d'échos standard. b) Mêmes données expérimentales. Les courbes ont été verticalement translattées afin de mieux visualiser le nombre de PARs.

Cependant, nous avons explicité au deuxième chapitre la condition requise pour un écho standard soit efficace :

$$\left(\frac{\Delta_{\text{inh}}}{2\Omega}\right)^2 \ll 1 \quad (4.11)$$

Réduire sensiblement l'élargissement inhomogène devient alors impératif. Comme nous allons le voir, la réduction de Δ_{inh} repose dans notre système sur une orientation particulière du champ statique dans le repère cristallin. Par ailleurs, nous avons vu au premier chapitre que la fréquence de Rabi du système dépendait également de l'orientation du champ statique.

A partir de maintenant, le choix de l'orientation du champ magnétique statique dans le repère cristallin n'est plus gouverné par la valeur du rapport de branchement optimale dans le cadre de la réalisation d'un protocole complet de stockage d'impulsions lumineuse. Il est dicté désormais par un double objectif : un faible Δ_{inh} combiné à un Ω suffisamment grand de façon à satisfaire la condition (4.11). Pour ce faire, revenons à l'expression du splitting Δ_g .

4.3.1 Variation de Δ_g en fonction du champ statique B_s

Nous avons déterminé au premier chapitre l'expression du splitting Δ_g en fonction des coordonnées de champ statique dans le repère local d'un site :

$$\Delta_g(B_x, B_y, B_z) = \sqrt{\gamma_{g,x}^2 B_x^2 + \gamma_{g,y}^2 B_y^2 + \gamma_{g,z}^2 B_z^2} \quad (4.12)$$

Or les expressions de B_x , B_y et B_z peuvent s'écrire à partir du module du champ statique B_s , et des angles Θ et Φ (expressions (1.35) du premier chapitre). Par ailleurs, on sait que le splitting est proportionnel au module du champ statique. On peut donc réécrire (4.12) :

$$\Delta_g(B_x, B_y, B_z) = \Delta_g(B_s, \Theta, \Phi) = B_s \Delta(\Theta, \Phi) \quad (4.13)$$

où $\Delta(\Theta, \Phi)$ peut s'interpréter comme un facteur gyromagnétique. Comme expliqué au premier chapitre, le splitting est très sensible à l'orientation du champ statique, du fait de la forte anisotropie du tenseur gyromagnétique $\bar{\gamma}$. Pour l'orientation optimisant le rapport de branchement, le splitting varie quasiment linéairement avec l'angle Θ (voir (1.6) du premier chapitre), avec une pente élevée. La réalité du cristal entraîne un certain nombre de défauts cristallins, modifiant localement l'angle Θ perçu par l'ion Tm³⁺ considéré. Ce petit écart selon Θ se répercute de manière beaucoup plus prononcée sur l'éclatement des niveaux Zeeman du fait de la haute sensibilité à Θ de Δ_g : c'est là le mécanisme expliquant l'élargissement inhomogène dans notre cristal Tm³⁺:YAG, pour l'orientation du cristal jusqu'à présent.

On cherche alors une orientation du champ statique B_s , c'est à dire un point (Θ, Φ) , telle que la dérivée partielle de Δ_g par rapport à Θ et Φ s'annulent simultanément. En ce point extremum, l'élargissement inhomogène sera minimal. On cherche donc les points vérifiant :

$$\begin{cases} \partial_{\Theta} \Delta_{B_s}(\Theta, \Phi) = 0 \\ \partial_{\Phi} \Delta_{B_s}(\Theta, \Phi) = 0 \end{cases} \quad (4.14)$$

Le calcul direct serait fastidieux en raison des expressions complexes des coordonnées du champ statique dans le repère local d'un site. On utilise donc une résolution graphique du problème en traçant le splitting Δ_g pour les différents sites en fonction des deux angles Θ et Φ . Ils sont représentés sur les figures (4.3) et (4.4).

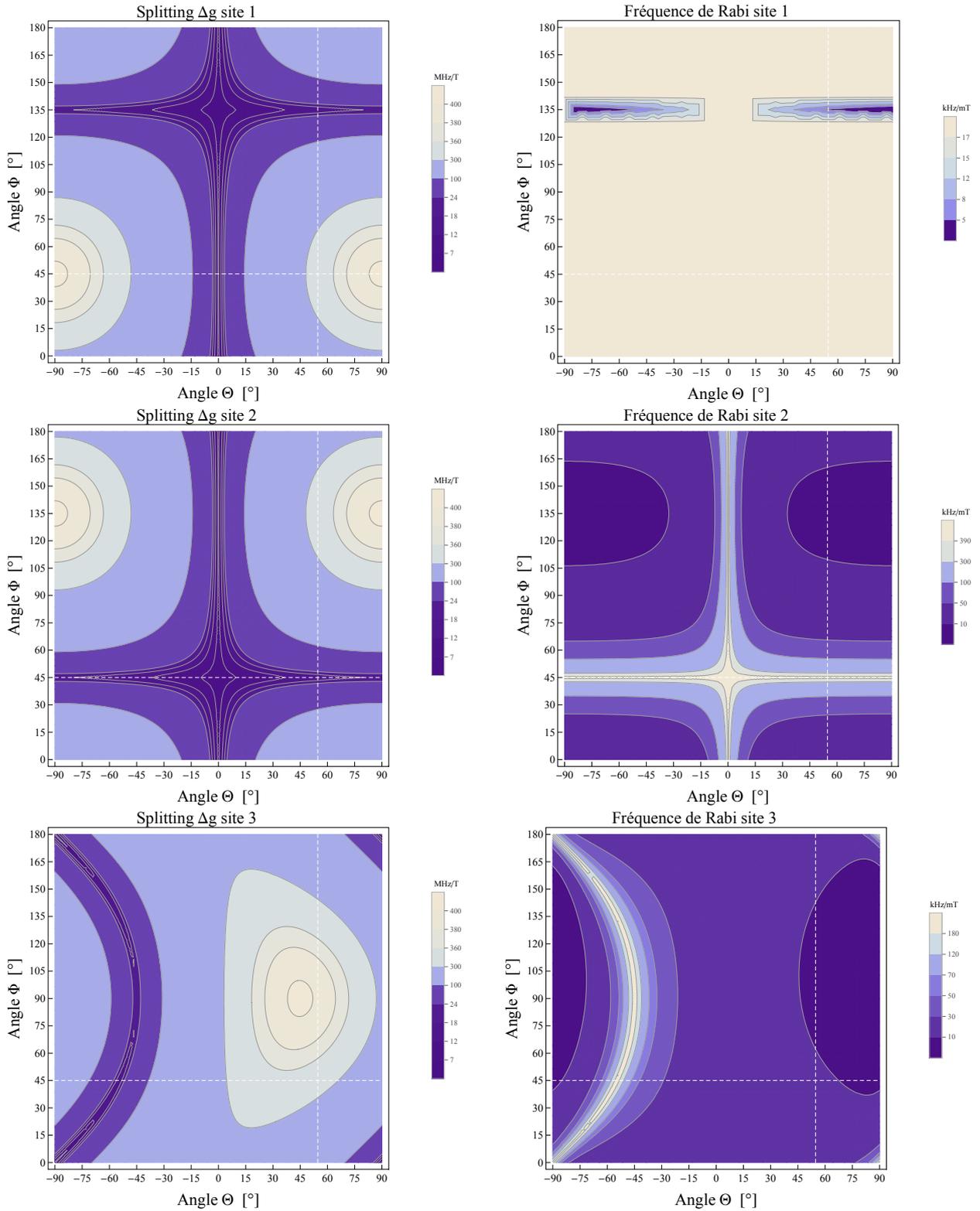


FIGURE 4.3 – Splitting Δg en fonction de Θ et Φ , pour les sites 1, 2 et 3. Les régions les plus foncées correspondent au minima, les régions les plus claires, au maxima.

On note que pour chaque graphique, les minima correspondent à une configuration où

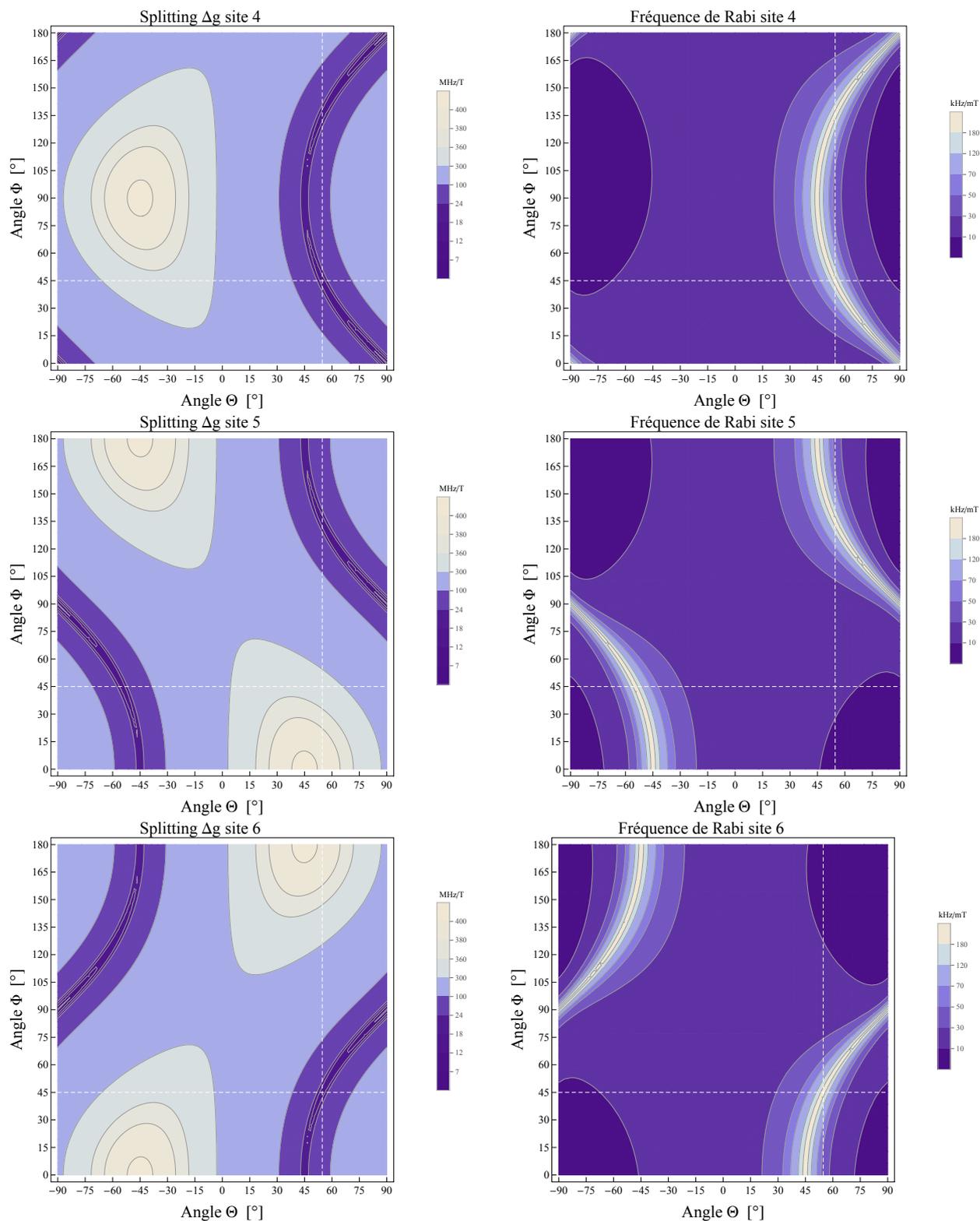


FIGURE 4.4 – Splitting Δ_g en fonction de Θ et Φ , pour les sites 4, 5 et 6. Les régions les plus foncées correspondent au minima, les régions les plus claires, au maxima.

la composante selon y du champ effectif est minimal. En effet, de par la forte anisotropie $\gamma_{g,y} \gg \gamma_{g,x}, \gamma_{g,z}$, réduire le splitting est quasiment similaire à réduire par un choix convenable

de Θ et Φ la composante du champ effectif suivant y . Les maxima correspondent, à l'inverse, à une composante selon y du champ effectif maximale.

De par le clivage de notre cristal, l'angle Φ est fixé à 45° . Le faisceau optique doit attaquer la face d'entrée perpendiculairement, car c'est l'orientation qui convient à la fois pour sélectionner les sites par polarisation et en toucher le plus possible. Le clivage de notre cristal fixe alors l'angle Φ à 45° . Il faut donc trouver un extremum du splitting telle que $\Phi = 45^\circ$.

Les orientations possibles sont alors :

- 2 maxima pour $\Theta = \pm 90^\circ$ et un minimum à $\Theta = 0^\circ$ pour le site 1
- une plage de minima $-10^\circ \leq \Theta \leq 10^\circ$ pour le site 2
- un minima à $\Theta = -54.7^\circ$ pour le site 3 et 5
- un minima à $\Theta = 54.7^\circ$ pour les sites 4 et 6, symétriques des sites 3 et 5

Or comme nous l'avons mentionné plus haut, il est nécessaire d'avoir une fréquence de Rabi appréciable, ce qui exclut le site 1 pour lequel, Ω ne dépasse pas 20 kHz/mT. Pour toutes les expériences suivantes, nous avons opté pour les sites 4 et 6 et l'orientation $(\Theta, \Phi) = (54.7^\circ, 45^\circ)$. On s'attend alors à un splitting de l'ordre de 15 MHz/T, et une fréquence de Rabi par unité de champ magnétique de l'ordre de 200 kHz/mT. Notons que les sites 3 et 5 avec l'orientation $(\Theta, \Phi) = (-54.7^\circ, 45^\circ)$ étaient également de bons candidats. Pour l'angle $\Phi = 45^\circ$, nous avons montré au premier chapitre que les ions des sites 3, 5 et 4, 6 jouaient un rôle symétrique.

4.3.2 Premiers résultats

Creusement de trou spectral et oscillations de Rabi

N'ayant jusqu'à maintenant jamais travaillé dans cette configuration du cristal, il était nécessaire de réaliser quelques expériences préliminaires afin de vérifier les prédictions théoriques, notamment la valeur du splitting et de la fréquence de Rabi.

Le résultat des expériences de creusement de trou spectral et d'oscillations de Rabi sont présentées sur la figure (4.5). La position des trous et anti-trous est conforme avec les prédictions attendues. Par ailleurs, l'absence d'anti-trou à $\pm(\Delta_g + \Delta_e)$ confirme qu'on se trouve bien sur configuration du champ statique où le rapport de branchement est très faible. La largeur à mi-hauteur de l'anti-trou à la fréquence $\pm\Delta_g$ du trou central que l'on mesure de manière abrupte est de ≈ 105 kHz. Cependant, pour obtenir la véritable valeur de Δ_{inh} , il faut lui soustraire la largeur du trou central. Ce dernier ayant une largeur de ≈ 93 kHz, on a alors Δ_{inh} de l'ordre de 10 kHz pour cette configuration du cristal. La réduction de l'élargissement inhomogène est donc bien réalisée grâce à notre stratégie, et conforme à nos attentes.

La figure 4.5b révèle une fréquence de Rabi de 264 kHz. Cette valeur est quasiment identique à celles obtenues au troisième chapitre. Cependant, il existe une différence notable. La tension pic à pic initiale du signal radio-fréquence était de 200 mV_{pp} , alors que pour cette expérience, il n'a fallu qu'une tension de 94 mV_{pp} . La fréquence de Rabi Ω atteint 952 kHz pour une tension initiale de 230 mV_{pp} . Toutes ces valeurs sont en très bon accord avec la figure (3.4) du troisième chapitre.

Nous avons réussi à diminuer suffisamment Δ_{inh} et à optimiser Ω par un choix approprié de l'orientation du champ statique. On se trouve maintenant dans la situation où $\Delta_{inh} < \Omega$. Les impulsions radio-fréquence utilisées par la suite lors d'échos de spins seront de forme carrée, et d'une durée de $1.8 \mu\text{s}$.

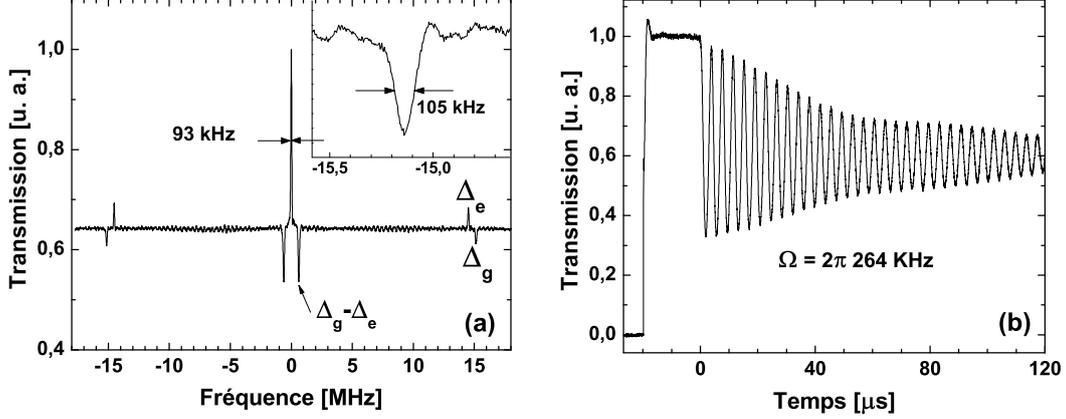


FIGURE 4.5 – (a) Expérience de creusement de trou spectral. Les transitions à Δ_g , Δ_e et $\Delta_g - \Delta_e$ sont observées par rapport au trou central. La largeur à mi-hauteur de l’anti-trou à Δ_g donne $\Delta_{\text{inh}} = 10 \text{ kHz}$, après correction de la largeur du trou central. (b) L’expérience d’oscillations de Rabi donne $\Omega/(2\pi) = 264 \text{ kHz}$.

Mesure du T_2 via la technique des échos standards

Comme précédemment, on réalise une première mesure du T_2 dans le cas où la séquence de rephasage se résume à un simple écho de spins standard. La courbe expérimentale est présentée à la figure (4.6).

L’aimantation transversale normalisée est obtenue à partir de l’efficacité η (Eq. 3.68), où cette fois-ci l’intensité de référence I_{ref} correspond à une différence de population nulle. On note tout d’abord le caractère non-linéaire de la courbe expérimentale, très prononcé au début, c’est à dire pour des courtes échelles de temps. Le processus de décroissance de l’aimantation transversale n’est donc pas exponentiel, ou du moins pas tant que le temps total τ_{seq} de la séquence est inférieur à environ $600 \mu\text{s}$. Nous avons vu au troisième chapitre (section 3.5) qu’une décroissance exponentielle de \mathbf{A}_\perp se manifestait lorsque $\tau_{es} \gg \tau_c$. Lorsqu’on est hors de ce régime, il devient nécessaire d’établir un modèle afin de simuler le mieux possible les données expérimentales. Nous en avons développé un capable de déterminer l’amplitude de l’aimantation transversale à l’issue d’une séquence de rephasage d’échos standards multiples. Ce modèle qui s’inspire de [62] sera présenté à la fin de ce chapitre. Ce modèle décrit les fluctuations aléatoires par un processus à la fois stationnaire, Markovien et gaussien et utilise deux paramètres déjà définis plus haut, le temps de corrélation τ_c et la dispersion des fluctuations σ_c de Δ_g autour de sa valeur moyenne. Ce modèle est tracé en rouge sur la figure (4.6), la formule étant :

$$A_\perp(t) = A_\perp(0)e^{-\Gamma(t)} \quad (4.15)$$

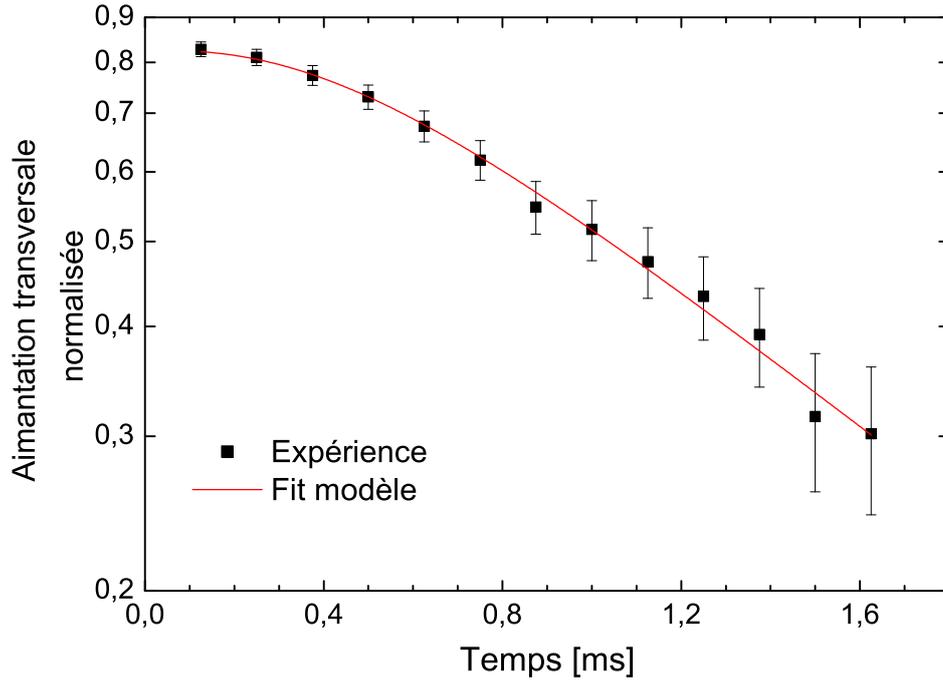


FIGURE 4.6 – Décroissance de l'aimantation nucléaire transversale en fonction de la durée totale de l'écho de spin. Les carrés noirs représentent les points expérimentaux. La courbe rouge représente le modèle théorique (Eq. 4.16).

où $\Gamma(t)$ vaut :

$$\Gamma(t) = (\sigma_c \tau_c)^2 \left(\frac{t}{\tau_c} + 4e^{-\frac{t}{2\tau_c}} - e^{-\frac{t}{\tau_c}} - 3 \right) > 0 \quad (4.16)$$

L'accord avec les points expérimentaux est très bon. Notamment, le caractère non exponentiel des premiers points expérimentaux se retrouve théoriquement. En effet, pour $t \ll \tau_c$, on a une dépendance en t^3 de Γ :

$$\Gamma(t) = \frac{2}{3} (\sigma_c \tau_c)^2 \left(\frac{t}{2\tau_c} \right)^3 \quad (4.17)$$

Ce modèle permet d'extraire :

$$\tau_c = 172 \pm 30 \mu s \quad \frac{\sigma_c}{2\pi} = 2.3 \pm 0.2 \text{ kHz} \quad (4.18)$$

Ce sont deux données très importantes qui décrivent quantitativement l'environnement local, ou plus exactement ses effets sur la transition de spin nucléaire. En outre, en se plaçant au temps longs, c'est à dire dans le régime où $t \gg \tau_c$, ces deux données permettent d'estimer la valeur de T_2 du système à travers la relation :

$$\frac{1}{T_2} = \sigma_c^2 \tau_c \quad (4.19)$$

On obtient donc :

$$T_2 = 1.01 \text{ ms} \quad (4.20)$$

Cette valeur est un peu plus de deux fois supérieure à celle mesurée au chapitre 3 pour une orientation $(\Theta, \Phi) = -49.4^\circ, 45^\circ$. Cet allongement de la durée de vie de l'aimantation transversale résulte de la technique mise en œuvre pour réduire Δ_{inh} .

En effet, nous avons choisi une orientation qui minimisait le splitting. Cette technique a été utilisée plus généralement dans les cristaux dopés aux ions de terres rares dans une optique tout autre. En effet, nous avons vu plus haut comment les ions voisins perturbaient les ions actifs à travers un champ magnétique local fluctuant modifiant aléatoirement le splitting de la transition de spin. Il est possible de réduire les effets de ces fluctuations en choisissant convenablement le champ magnétique statique. Pour ce faire, l'opération consiste à ce que les dérivées de Δ_g selon toutes les composantes du champ statique soient nulles. Cela s'écrit :

$$\nabla_{B_s} \Delta_g = 0 \quad (4.21)$$

Alors, les ions de terres rares seront insensibles au premier ordre aux variations aléatoires de champ magnétique (en module et en orientation). Cette technique porte le nom d'effet ZEFOZ, pour ZERo First Order Zeeman [63, 64, 65].

Dans les systèmes présentant une structure hyperfine à champ nul, il est possible de trouver une configuration où le gradient du splitting est rigoureusement nul. Dans le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ cependant, il est nécessaire d'en appliquer un pour lever la dégénérescence des niveaux Zeeman du fondamental. C'est la raison pour laquelle seul un ZEFOZ partiel est réalisable. Mais, comme le montre les résultats expérimentaux, il suffit déjà à réduire considérablement les effets des fluctuations de l'environnement, puisque le temps de vie de l'aimantation transversale est plus que doublée.

4.4 Impulsions π et séquence de Carr-Purcell-Meiboom-Gill

Historiquement, les premières expériences de RMN ont été réalisées dans les liquides. Les échos de Hahn ont permis de compenser le déphasage inhomogène des spins nucléaires dû à l'inhomogénéité du champ statique produisant l'effet Zeeman. Cependant, le phénomène de diffusion des entités constituant l'échantillon (molécules, protons, ...) conduisait à des déphasages supplémentaires non refocalisés par les échos de Hahn.

En 1954, Carr et Purcell ont mis au point une séquence d'impulsions capable de réduire considérablement ces effets aléatoires. Le principe général a déjà été exposé plus haut. Ici, plus particulièrement, après une impulsion d'aire $\pi/2$ créant une aimantation transversale dans le milieu, une série d'impulsions d'aire π rapprochées dans le temps est envoyée au système. Meiboom et Gill ont amélioré quelques années plus tard cette technique, notamment en alternant la phase des impulsions π afin de compenser les erreurs dues à l'imperfection des impulsions. La séquence porte ainsi le nom de CPMG, rendant ainsi hommage aux quatre chercheurs.

Bien que les processus soient différents, nous sommes également confrontés dans notre cristal, aux fluctuations aléatoires de la transition de spin nucléaire, non refocalisable par un simple écho de Hahn. Nous avons adapté les conditions de l'expérience (minimisation de Δ_{inh} et optimisation de Ω afin de tester une séquence CPMG sur notre système. Plus précisément, elle consiste (voir figure 4.7) :

- application d'une impulsion $\pi/2$ créant une aimantation transversale dans le milieu

- application d'une impulsion π au temps $(2j + 1)\tau/2$, de phase $(1 + (-1)^{j+1})\pi/2$, j étant un entier allant de 0 à $n - 1$
- application d'une impulsion $\pi/2$ de phase $(1 + (-1)^j)\pi/2$ après un temps $\tau/2$ reconvertissant l'aimantation transversale restante en population

La séquence totale de rephasage n'est autre qu'une succession de n échos de Hahn. Ainsi, un écho de spins est généré au temps $j\tau$, j entier strictement positif.

Nous avons mis en lumière également l'importance d'avoir des impulsions π suffisamment rapprochées dans le temps. En effet, on s'attend à ce que la préservation de l'aimantation transversale soit plus nette encore dès lors que le temps τ entre deux impulsions π soit plus court que τ_c , le temps de corrélation des fluctuations. Cette condition a été établie plus haut. Ainsi, à nombre n identique, des impulsions plus resserrées temporellement devraient conduire à un signal plus élevé à l'issue de la séquence.

Nous présentons deux expériences préliminaires confirmant ces suppositions, après avoir introduit succinctement le modèle qui nous a permis d'estimer les paramètres du champ fluctuant.

4.4.1 Modèle de relaxation

Nous avons développé un modèle afin de décrire au mieux nos résultats expérimentaux. Il détermine l'évolution de l'aimantation transversale durant une séquence CPMG composée de n impulsions espacées d'un temps τ , en prenant en compte les fluctuations du splitting Δ_g autour de sa valeur moyenne. On retrouvera plus de détails dans la référence [66]. On modélise alors les fluctuations aléatoires par un processus stationnaire, Markovien et gaussien, ce qui permet de les décrire via deux paramètres désormais bien connus, τ_c et σ_c . Surtout, l'évolution de l'aimantation transversale s'écrit alors simplement

$$A_{\perp}(n, \tau) = A_{\perp}(0)e^{-\Gamma(n, \tau)} \quad (4.22)$$

avec un exposant $\Gamma(n, \tau)$ à déterminer.

Les calculs fournissent alors l'expression :

$$\Gamma(n, \tau) = (\sigma_c \tau_c)^2 \left\{ \left[\frac{1}{\tau_c} - \frac{2}{\tau} \tanh \left(\frac{\tau}{2\tau_c} \right) \right] t - \left[1 + (-1)^{n+1} e^{-\frac{t}{\tau_c}} \right] \left[1 - \operatorname{sech} \left(\frac{\tau}{2\tau_c} \right) \right] \right\} \quad (4.23)$$

avec

$$t = n\tau \quad (4.24)$$

4.4.2 Expériences préliminaires de séquences CPMG

Une première expérience consistait à réaliser des séquences CPMG de temps total fixe $\tau_{seq} = n\tau = 2$ ms, mais avec un nombre d'impulsions n différents. La deuxième expérience conservait un nombre d'impulsions fixe $n = 4$ pour les séquences CPMG, mais l'intervalle de temps τ entre deux impulsions π variait. Elles sont présentées sur la figure (4.7).

La figure (4.7)(b) montre bien que A_{\perp} augmente lorsque n augmente. Le modèle théorique qui sera détaillé à la fin de ce chapitre est en très bon accord avec les données expérimentales. La formule utilisée pour Γ est :

$$\Gamma(t) = (\sigma_c \tau_c)^2 \left\{ \left[\frac{1}{\tau_c} - \frac{2}{\tau} \tanh \left(\frac{\tau}{2\tau_c} \right) \right] t - \left[1 + (-1)^{n+1} e^{-\frac{t}{\tau_c}} \right] \left[1 - \operatorname{sech} \left(\frac{\tau}{2\tau_c} \right) \right] \right\} \quad (4.25)$$

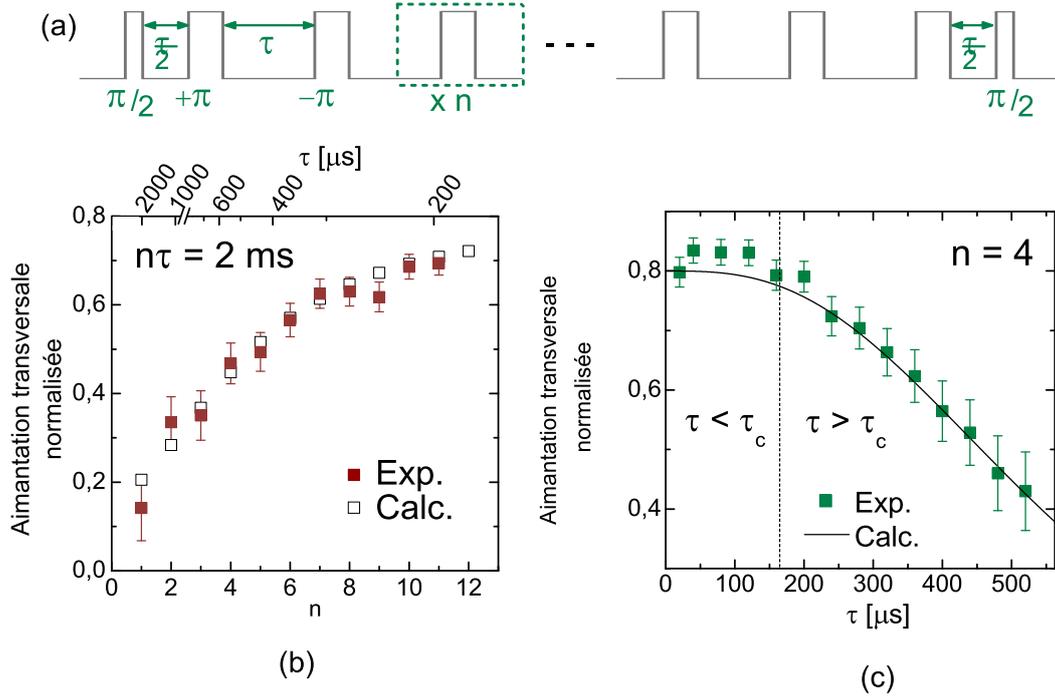


FIGURE 4.7 – (a) Schéma de la séquence CPMG. Les signes + et - indiquent la phase de l'impulsion ; 0 et π respectivement. n et τ désignent respectivement, le nombre d'impulsion π de la séquence CPMG et l'intervalle de temps entre deux impulsions π . Les figures (b) et (c) rapportent l'aimantation transversale récupérée à l'issue des séquences CPMG lorsque $\tau_{seq} = n\tau$ est fixé (b), et lorsque τ est fixé (c). Le modèle théorique, dans lequel ont été utilisées les valeurs $\tau_c = 172 \mu\text{s}$ et $\sigma_c = 2.3 \text{ kHz}$, épouse convenablement les points expérimentaux.

avec

$$t = n\tau \quad (4.26)$$

Pour le fit des données expérimentales, on a utilisé les valeurs de τ_c et σ_c déterminées plus haut :

$$\tau_c = 172 \mu\text{s} \quad \sigma_c = 2.3 \text{ kHz} \quad (4.27)$$

On devine, toujours sur la figure (b) l'existence d'un plateau lorsqu'on continue à augmenter n . L'aimantation transversale semble ainsi atteindre une valeur seuil. Ce seuil n'est pas égal à l'unité, ce qui peut s'expliquer par un mauvais pompage initial des ions Tm^{3+} , ou encore une imperfection au niveau du calibrage des impulsions radio-fréquence. Ce seuil se fait sentir alors que l'intervalle τ entre les impulsions π est de $200 \mu\text{s}$, soit similaire à la valeur de τ_c .

Ce comportement stationnaire de l'aimantation transversale est mieux visible sur la figure (4.7)(c). Il apparaît clairement pour des expériences de séquence CPMG pour lesquelles $\tau < \tau_c$. Ces expériences de séquence CPMG pour des durées τ différentes révèlent clairement la présence de deux régimes bien distinct, séparés par la droite en pointillée. Lorsque $\tau > \tau_c$, l'aimantation transversale augmente linéairement au fur et à mesure que τ diminue. Dans ce régime, le temps d'évolution libre des échos standards est encore suffisamment long pour que les fluctuations de la transition de spin nucléaire soient encore significatives. Au contraire, lorsque

$\tau < \tau_c$, l'aimantation transversale récupérée se stabilise. Chaque écho standard composant la séquence CPMG refocalise correctement les spins nucléaires : l'aimantation transversale est ainsi préservée tout le long de la séquence.

Ces expériences préliminaires valident l'efficacité de la séquence CPMG, et montrent surtout qu'on peut maintenir l'aimantation initiale dans le milieu en refocalisant les spins nucléaires suffisamment régulièrement. On parle de découplage dynamique des spins nucléaires de leur environnement, puisque ceux-ci sont remis en phase sur une échelle de temps plus courte que τ_c : l'effet des fluctuations aléatoires est donc moindre, voire disparaît.

4.4.3 Extension de la durée de vie de l'aimantation transversale

On réalise désormais une nouvelle mesure de T_2 , en exploitant les séquences CPMG. Pour ce faire, on fixe la valeur de τ de telle manière qu'elle soit inférieure à τ_c . Pour une même valeur de τ , chaque point expérimental est obtenu en fixant un nombre d'impulsions πn , puis en mesurant le n^e écho (soit le dernier) de la séquence. La durée totale de la séquence est alors $\tau_{seq} = n\tau$.

On effectue cette expérience de mesure de T_2 pour différentes valeurs de τ : 150, 100, 10 et 3 μs . Les résultats sont affichés sur la figure (4.8).

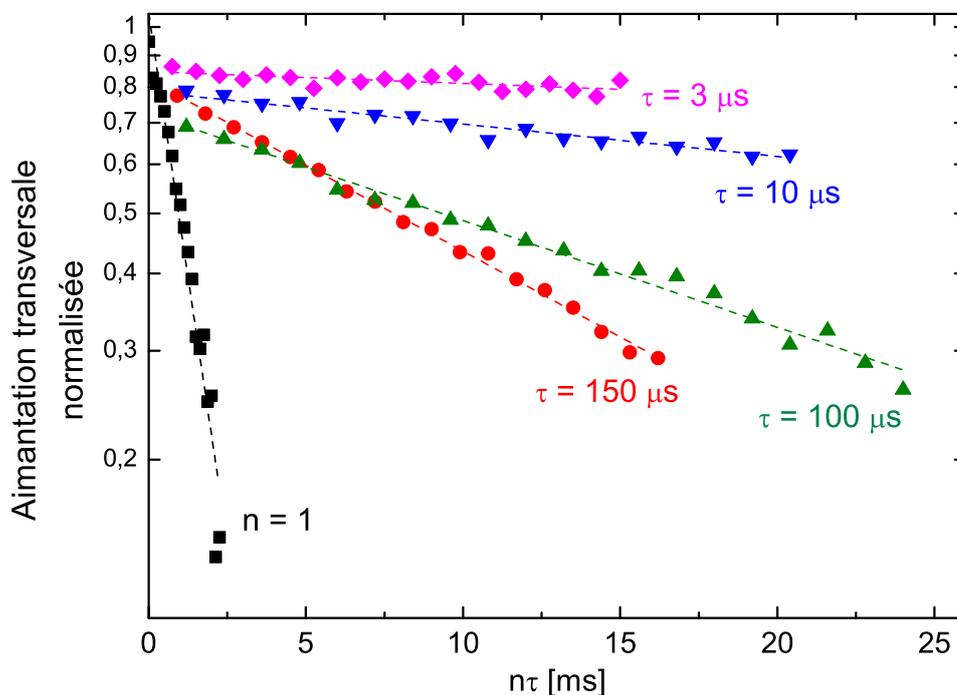


FIGURE 4.8 – Mesure du T_2 pour différentes valeurs de τ de la séquence CPMG. Les données expérimentales référencées par leur valeur de τ , $\tau = 150, 100, 10, 3 \mu\text{s}$ ont été réalisées en gardant cette valeur de τ fixe et en augmentant le nombre n d'impulsions de la séquence. La courbe référencée $n = 1$ correspond à une expérience d'écho de Hahn et est identique à (4.6). Les lignes tiretées correspondent à un fit linéaire.

Les données expérimentales, représentées en échelle logarithmique, ont toutes un comportement linéaire. Cela vient du fait qu'on regarde le signal pour des temps t grands devant τ_c . Le terme de relaxation est alors proportionnel au nombre d'écho standard composant la séquence totale de rephasage, donc à n comme on peut le déduire des expressions (4.25) et (4.26). La pente, qui n'est autre que l'inverse de T_2 décroît significativement lorsqu'on diminue τ . On obtient les valeurs de T_2 suivantes :

$$\tau = 150 \mu\text{s} \qquad n = 100 \qquad T_2 = 13 \pm 1 \text{ ms} \qquad (4.28)$$

$$\tau = 100 \mu\text{s} \qquad n = 240 \qquad T_2 = 25 \pm 1 \text{ ms} \qquad (4.29)$$

$$\tau = 10 \mu\text{s} \qquad n = 2040 \qquad T_2 = 83 \pm 6 \text{ ms} \qquad (4.30)$$

$$\tau = 3 \mu\text{s} \qquad n = 5000 \qquad T_2 = 230 \pm 30 \text{ ms} \qquad (4.31)$$

A chaque fois, on réussit à allonger la durée de vie de l'aimantation transversale. Pour une séquence CPMG avec $\tau = 3 \mu\text{s}$, on atteint une valeur de $230 \pm 30 \text{ ms}$, soit plus de 200 fois la valeur précédemment obtenue pour une orientation du champ statique $(\Theta, \Phi) = (-49.4^\circ, 45^\circ)$.

Ces résultats semblent bien confirmer le mécanisme de relaxation de A_\perp , l'influence des ions voisins conduisant à une fluctuation aléatoire de la transition de spin nucléaire. Ces fluctuations sont notamment décrites par le temps de corrélation τ_c . La connaissance de ce dernier est importante, et conditionne l'efficacité de la séquence CPMG. Ainsi, en réduisant suffisamment l'intervalle de temps entre deux impulsions successives, on réussit à limiter fortement les effets des fluctuations aléatoires sur le signal mesuré. On réalise ainsi un découplage dynamique des spins nucléaires de leur environnement local.

4.5 Analyse

4.5.1 Pertinence du modèle de relaxation

L'évolution de l'aimantation transversale est clairement non-exponentielle. Cependant, dans la limite $t \gg \tau_c$ ou bien lorsque $\tau \ll \tau_c$, on retrouve un comportement exponentiel, et alors la constante de temps s'exprime à travers la relation :

$$\frac{1}{T_2(\tau)} = \sigma^2 \tau_c \left[1 - \frac{2\tau_c}{\tau} \tanh\left(\frac{\tau}{2\tau_c}\right) \right] \qquad (4.32)$$

On note que cette constante de temps est fonction de l'intervalle de temps τ entre les impulsions π . On retrouve ainsi de manière théorique, et qualitativement un effet observé expérimentalement. Cependant, ce modèle, qui a été performant pour approcher au mieux les résultats des expériences préliminaires (figure 4.7), présente un écart conséquent avec les expériences de mesure du T_2 . Ceci est clairement illustré sur la figure (4.9) où le modèle n'arrive pas à prédire correctement la constante de temps.

Plus précisément, le modèle est en accord avec les données expérimentales et semble prédire relativement correctement T_2 , pour des petites valeurs de n et/ou pour le régime $\tau_c < \tau$. Cet écart à l'expérience pour les grandes valeurs de T_2 peut s'expliquer simplement par la simplicité du modèle. En effet, nous avons opté pour un processus très simple des fluctuations aléatoires.

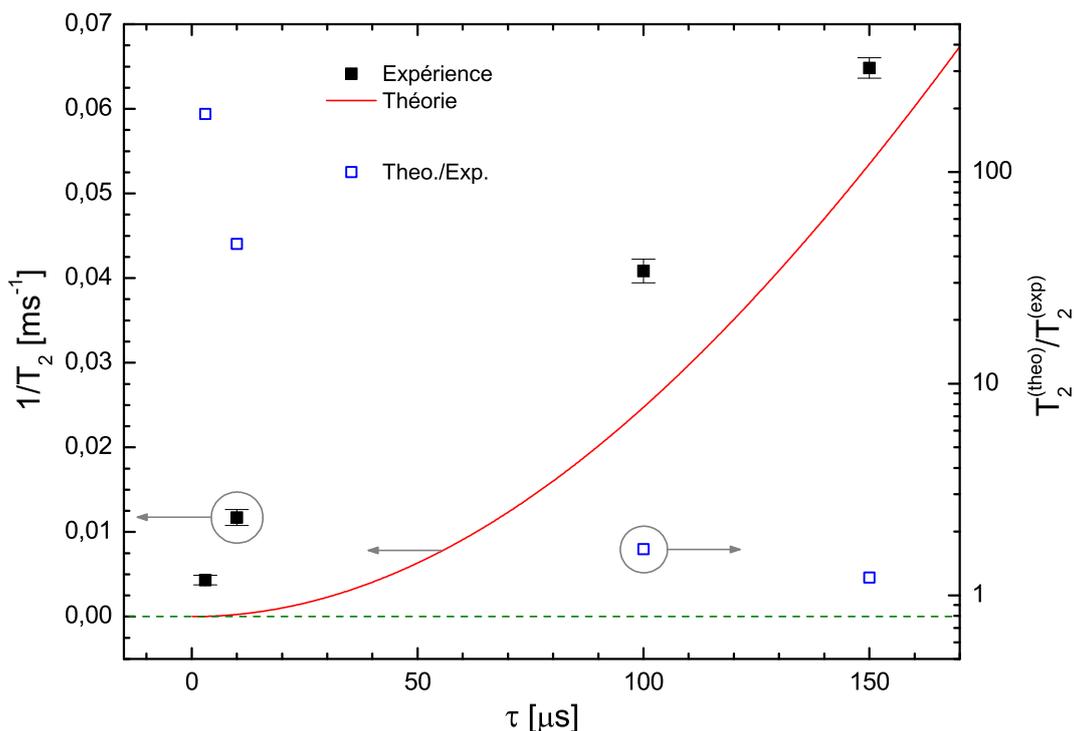


FIGURE 4.9 – Extension du T_2 via séquence CPMG, en fonction de l'intervalle de temps τ entre les impulsions π . Les données expérimentales (carrés pleins noirs) sont obtenus à partir des fits de la figure (4.8). Le modèle théorique (ligne rouge) est obtenu via l'expression (4.32). La limite $T_{2max} = 2T_1$ est également représentée (ligne verte tireté). On affiche également le rapport entre les valeurs théoriques et expérimentales (carrés vides bleus), lisible sur l'ordonnée de droite.

Alors qu'il semble raisonnable de considérer les interactions des ions Tm^{3+} avec les ions voisins stationnaire et markovien, le caractère gaussien est lui purement invoqué pour la facilité des calculs. Par ailleurs, pour des échelles de temps aussi longues (centaine de ms et au-delà), il faudrait sans doute prendre en compte la décroissance en T_1 de l'aimantation longitudinale, qui affecte directement les populations de spins nucléaires. Cet effet est plausible ; nous avons mesuré un T_1 de l'ordre d'une minute, comme illustré sur la figure (4.10). Enfin, il est à rappeler que d'autres sources de relaxation n'ont pas été prise en compte, telle par exemple la diffusion spectrale instantanée.

Cependant, ce modèle a été très fécond pour la compréhension générale du mécanisme principal de la relaxation de l'aimantation transversale, et a permis de fournir une description intéressante de l'environnement local à travers les estimations de τ_c et σ_c .

4.5.2 Nature de la relaxation dans $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$

Nous avons opté au début de ce chapitre pour une description semi-classique des effets de l'environnement. Nous avons alors élaboré une stratégie tenant compte de cette description. Les séquences CPMG ont été utilisées afin de préserver le plus longtemps possible l'aimantation nucléaire transversale dans le milieu. L'objectif avoué de cette technique est de rephaser en

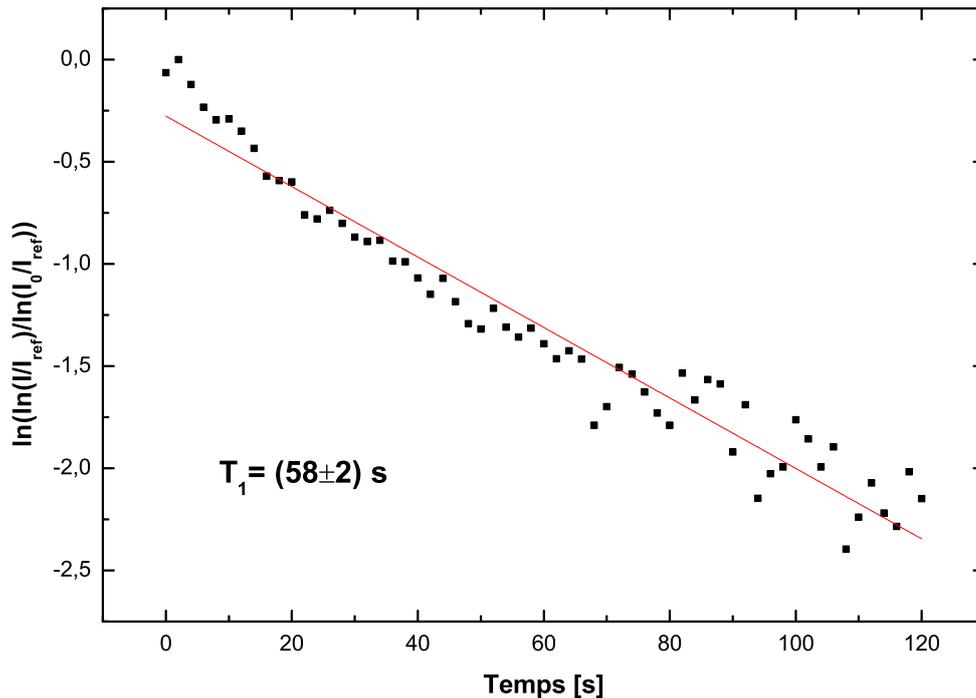


FIGURE 4.10 – Mesure du T_1 . L'expérience consiste à creuser un trou dans le milieu jusqu'à le blanchir. L'anti-trou à Δ_g du trou central a alors une profondeur maximale. Puis, on mesure la profondeur de cet anti-trou après un temps t que l'on fait varier pour chaque point expérimental. On obtient un temps de vie de 58 ± 2 s.

fréquemment les spins nucléaires, quasiment en permanence.

Compte-tenu de l'extension considérable du T_2 obtenue, il paraît raisonnable d'attribuer la réduction de l'aimantation transversale dans $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ à un déphasage aléatoire des spins nucléaires.

4.6 conclusion

Nous avons mis en évidence au cours de ce chapitre un mécanisme principal de décroissance de l'aimantation nucléaire transversale : l'interaction des ions Tm^{3+} avec leurs voisins Al^{3+} conduisant à un déphasage aléatoire, indéterministe, des spins nucléaires entre eux. A la lueur des résultats expérimentaux, on peut affirmer que la préservation de l'aimantation nucléaire transversale sur des temps longs, supérieurs à la milliseconde, s'est effectué en deux étapes :

- réduire la sensibilité des ions Tm^{3+} aux fluctuations de l'environnement. Une technique inspirée du ZEFOZ, consistant à se placer sur un extremum du splitting Zeeman permet d'annuler au premier ordre ces fluctuations aléatoires. C'est une méthode statique ; tout se passe comme si on écrantait les ions Tm^{3+} . Elle permet, simultanément de réduire considérablement l'élargissement inhomogène de la transition Zeeman, et d'optimiser la fréquence de Rabi du système, autorisant ainsi l'utilisation de courtes impulsions π .
- échantillonner le temps d'évolution libre des spins nucléaires. On exploite alors les séquences

CPMG, composées d'un grand nombre n d'impulsions π qui permettent de réduire la décroissance de l'aimantation nucléaire. Cette fois, on agit régulièrement sur le système : au lieu de précesser tranquillement autour de son vecteur de contrôle, le vecteur de Bloch associé à un spin nucléaire est sans cesse basculé. Ces basculements très rapprochés est la clé du découplage dynamique des ions Tm^{3+} de leur environnement.

On arrive ainsi à atteindre des durées de vie de l'ordre de 230 ms, soit un gain de près de 3 ordres de grandeur par rapport aux précédentes mesures pour une configuration du champ magnétique différente.

Chapitre 5

Étude des cohérences optiques dans le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$

Les protocoles de stockage de la lumière font nécessairement intervenir une interaction entre le signal optique à enregistrer et le système matériel. Ce signal excite une certaine transition électronique du système. Dans le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$, c'est une transition dipolaire électrique mettant en jeu deux niveaux Stark ${}^3H_4(0)$ et ${}^3H_6(0)$. Selon le protocole utilisé, le signal lumineux peut être directement converti en aimantation nucléaire. C'est le cas par exemple des protocoles basés sur la lumière lente. Romain Lauro a démontré lors de sa thèse la marche à suivre pour les mettre en œuvre dans $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ [38]. D'autres protocoles consistent à convertir le signal incident en cohérences optiques. Puis éventuellement, à convertir ces dernières en cohérences de spin nucléaire, pour profiter du temps de vie plus long de l'aimantation nucléaire transversale ainsi créée.

Préserver les cohérences optiques le plus longtemps possible est également essentiel pour les protocoles basés sur les échos de photon. Notre groupe a d'ailleurs proposé récemment un nouveau protocole baptisé ROSE, pour Revival Of Silenced Echo [67]. Ainsi, allonger le T_2 optique permettrait bien sûr d'augmenter le temps de stockage, mais également d'améliorer le caractère multimode du ROSE [68].

La durée de vie des cohérences optiques est plus courte que celle des cohérences de spins nucléaire dans le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$, du fait de processus radiatifs et non radiatifs qui dégrade rapidement les populations des ions Tm^{3+} . Nous avons mentionné au premier chapitre que la durée de vie du niveau excité optique (3H_4) était de l'ordre de $800 \mu\text{s}$, ce qui conduit à une durée de vie des cohérences optiques maximale de l'ordre de 1.6 ms.

Une cohérence optique d'un système à deux niveaux se décrit théoriquement de manière analogue à celle d'une cohérence de spin nucléaire. Notamment, le même formalisme de la sphère de Bloch peut être utilisé, et associer ainsi une transition dipolaire électrique entre les niveaux Stark ${}^3H_6(0)$ et ${}^3H_4(0)$ à un vecteur de Bloch. La transition électronique présente un large élargissement inhomogène, de l'ordre de 20 GHz, qui peut cependant être compensé par la technique des échos de Hahn adaptée : les échos de photons. Le déphasage accumulé après un certain temps d'évolution entre les différentes cohérences optiques initialement en phase de l'ensemble d'ions Tm^{3+} sera compensé. Cependant, la fréquence de transition électronique fluctue également aléatoirement à l'instar de la transition de spin nucléaire : en effet, sous champ magnétique, nous avons vu au premier chapitre que les niveaux d'énergie propre issus de 3H_6

ne variaient pas de la même manière que ceux issus de 3H_4 en fonction du champ magnétique statique du fait de la différence des tenseurs gyromagnétiques. Or ce champ magnétique est localement fluctuant du fait de l'activité des ions Al^{3+} voisins.

Au chapitre précédent, nous avons vu que la stratégie consistant à trouver un extremum de l'éclatement entre niveaux Zeeman permettait d'être insensible au premier ordre aux fluctuations de l'environnement : stratégie nommée ZEFOZ. Cependant, pour la transition de spin nucléaire entre les niveaux E_2 et E_1 , on ne pouvait réaliser qu'un ZEFOZ partiel ; c'est à dire minimiser le gradient du splitting uniquement selon deux composantes sur les trois du champ magnétique statique. La raison était que les ions Tm^{3+} ne présentaient pas de structure hyperfine sans champ magnétique. Nous allons voir ci-dessous qu'il est possible de réaliser cette stratégie ZEFOZ totalement sur les transitions optiques, en exploitant un terme du Hamiltonien de spin du premier chapitre jusqu'alors laissé de côté : le terme de déplacement Zeeman quadratique. Cette stratégie a été proposée initialement par McAuslan [69], et expérimentée malheureusement sans succès dans un cristal de $\text{Pr}^{3+}:\text{YAG}$.

5.1 Déplacement Zeeman quadratique et ZEFOZ optique

5.1.1 Expression du splitting optique avec prise en compte du déplacement Zeeman quadratique

On rappelle l'expression du Hamiltonien de spin d'un ion Tm^{3+} inséré en matrice cristalline (1.16) :

$$\hat{H}_{spin} = -A_J^2 \hat{\mathbf{I}} \cdot \Lambda \cdot \hat{\mathbf{I}} - \left(\frac{2g_J \mu_B A_J}{\hbar} \mathbf{B} \cdot \Lambda \cdot \hat{\mathbf{I}} - \hat{H}_{Zn} \right) - g_J^2 \mu_B^2 \mathbf{B} \cdot \Lambda \cdot \mathbf{B} \quad (5.1)$$

Nous avons vu que le premier terme, correspondant au terme d'interaction pseudo-quadrupolaire, était nul pour l'ion Tm^{3+} de spin nucléaire 1/2. Sachant que

$$\Lambda = \frac{\hbar}{2A_J g_J \mu_B} (\bar{\gamma} - \gamma_n \mathbb{1}) \quad (5.2)$$

on a alors :

$$\hat{H}_{spin} = - \left(\frac{2g_J \mu_B A_J}{\hbar} \mathbf{B} \cdot \Lambda \cdot \hat{\mathbf{I}} - \hat{H}_{Zn} \right) - g_J^2 \mu_B^2 \mathbf{B} \cdot \Lambda \cdot \mathbf{B} \quad (5.3)$$

$$= -\mathbf{B} \cdot \bar{\gamma} \cdot \hat{\mathbf{I}} - \frac{\hbar g_J \mu_B}{2A_J} \mathbf{B} \cdot (\bar{\gamma} - \gamma_n \mathbb{1}) \cdot \mathbf{B} \quad (5.4)$$

On pose alors :

$$D_g = \frac{g_J \mu_B}{2A_J} \left[(\gamma_{g,x} - \gamma_n) B_x^2 + (\gamma_{g,y} - \gamma_n) B_y^2 + (\gamma_{g,z} - \gamma_n) B_z^2 \right] \quad (5.5)$$

$$D_e = \frac{g_J \mu_B}{2A_J} \left[(\gamma_{e,x} - \gamma_n) B_x^2 + (\gamma_{e,y} - \gamma_n) B_y^2 + (\gamma_{e,z} - \gamma_n) B_z^2 \right] \quad (5.6)$$

qui sont les termes de déplacement Zeeman quadratique dans ${}^3H_6(0)$ et ${}^3H_4(0)$; tracés pour les différents sites sur les figures (5.1) et (5.2) respectivement.

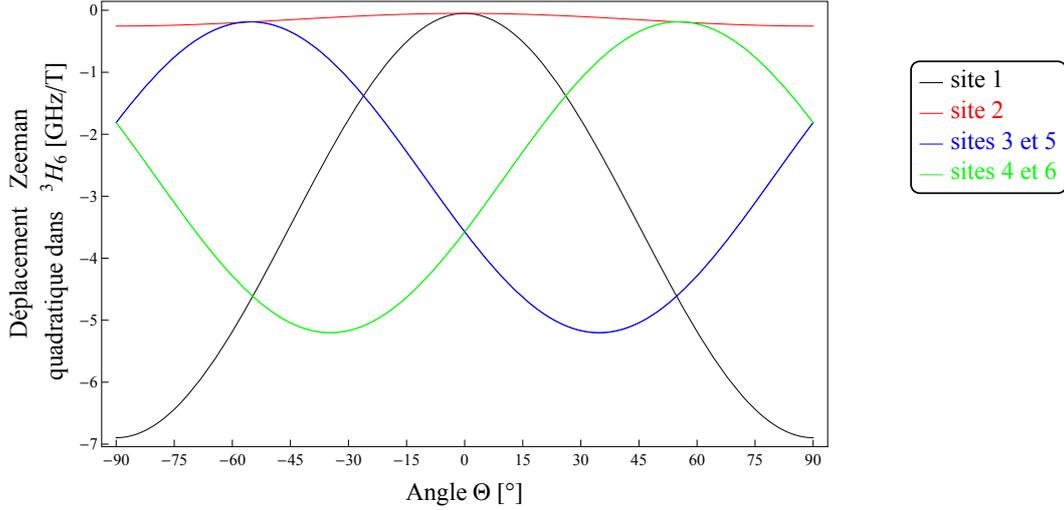


FIGURE 5.1 – Déplacement Zeeman quadratique dans le fondamental pour les différents sites, en fonction de l'angle Θ et pour $\Phi = 45^\circ$.

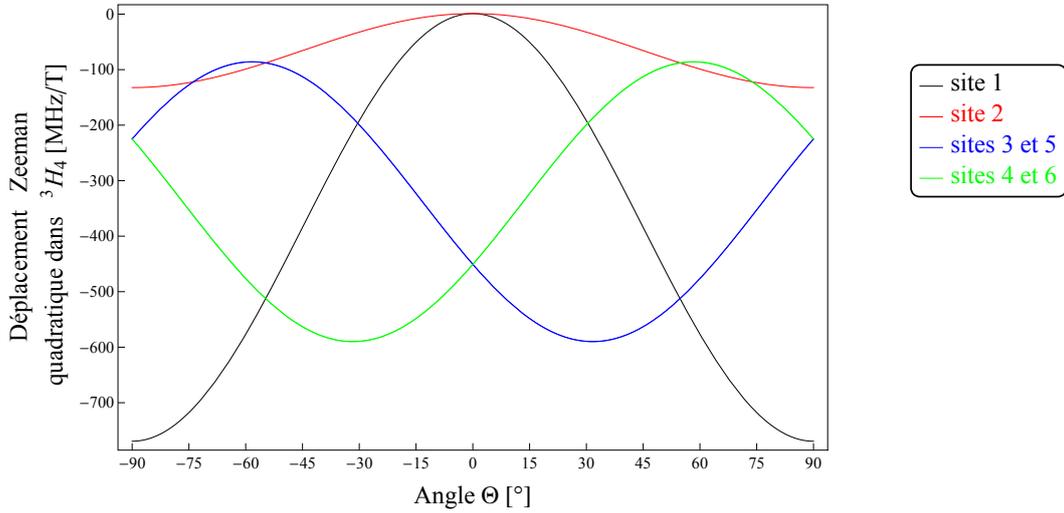


FIGURE 5.2 – Déplacement Zeeman quadratique dans l'excité pour les différents sites, en fonction de l'angle Θ et pour $\Phi = 45^\circ$.

Les énergies propres sont simplement obtenues en rajoutant le terme de déplacement Zeeman quadratique aux expressions de (1.46) :

$$E_1 = -\frac{\hbar\Delta_g}{2} + \hbar D_g \qquad E_2 = +\frac{\hbar\Delta_g}{2} + \hbar D_g \qquad (5.7)$$

$$E_3 = -\frac{\hbar\Delta_e}{2} + \hbar D_e \qquad E_4 = +\frac{\hbar\Delta_e}{2} + \hbar D_e \qquad (5.8)$$

On ne s'intéresse qu'aux transitions fortes, c'est à dire les transitions $|1\rangle\text{--}|3\rangle$ et $|2\rangle\text{--}|4\rangle$. Les splittings optiques ¹s'expriment alors :

1. Ce ne sont pas véritablement les splittings optiques, car il faudrait rajouter un offset d'environ 378 THz correspondant à l'écart entre les deux niveaux Stark ${}^3H_6(0)$ et ${}^3H_4(0)$.

$$\Delta_{13} = \frac{E_3 - E_1}{\hbar} = (D_e - D_g) - \frac{\Delta_e - \Delta_g}{2} \quad \Delta_{24} = \frac{E_4 - E_2}{\hbar} = (D_e - D_g) + \frac{\Delta_e - \Delta_g}{2} \quad (5.9)$$

5.1.2 Calcul des points ZEFOZ

Les points ZEFOZ s'obtiennent en annulant le gradient du splitting optique par rapport au champ magnétique B_s :

$$\nabla_{B_s} \Delta_{13} = 0 \quad \nabla_{B_s} \Delta_{24} = 0 \quad (5.10)$$

Le gradient peut se calculer dans le système de coordonnées cartésien, soit avec les composantes B_x , B_y et B_z . Mais on peut également choisir le système de coordonnées sphérique, utilisé de manière implicite dès les premiers chapitres de ce manuscrit : B_s , Θ et Φ . Les splittings optiques dépendent donc de ces trois variables. Les points ZEFOZ optiques seront obtenus pour des champs magnétiques vérifiant l'une des deux conditions suivantes :

$$\frac{\partial \Delta_{13}}{\partial B_s} = \frac{\partial \Delta_{13}}{\partial \Theta} = \frac{\partial \Delta_{13}}{\partial \Phi} = 0 \quad (5.11)$$

$$\frac{\partial \Delta_{24}}{\partial B_s} = \frac{\partial \Delta_{24}}{\partial \Theta} = \frac{\partial \Delta_{24}}{\partial \Phi} = 0 \quad (5.12)$$

Les splittings nucléaires Δ_g et Δ_e sont proportionnels au module du champ magnétique B_s . Confirmé par l'expérience à travers la technique de creusement de trou spectral, ce résultat se retrouve aisément à partir de (1.35) et de (1.42). Les déplacements Zeeman quadratique sont eux proportionnels au carré du module du champ magnétique. On peut alors récrire les splittings optiques :

$$\Delta_{13} = \alpha(\Theta, \Phi) B_s^2 - \beta(\Theta, \Phi) B_s \quad \Delta_{24} = \alpha(\Theta, \Phi) B_s^2 + \beta(\Theta, \Phi) B_s \quad (5.13)$$

où

$$\alpha(\Theta, \Phi) = \frac{D_e - D_g}{B_s^2} \quad (5.14)$$

$$\beta(\Theta, \Phi) = \frac{\Delta_e - \Delta_g}{2B_s} \quad (5.15)$$

où $\alpha(\Theta, \Phi)$ est en $\text{MHz} \cdot \text{T}^{-2}$ et $\beta(\Theta, \Phi)$ en $\text{MHz} \cdot \text{T}^{-1}$. Ces deux quantités ne dépendent plus de B_s .

Les expressions des splittings optiques sont donc des polynômes du second degré. L'extremum d'une telle fonction se détermine aisément. Pour (5.13), on obtient :

$$B_{extr,13}(\Theta, \Phi) = \frac{\beta(\Theta, \Phi)}{2\alpha(\Theta, \Phi)} \quad B_{extr,24}(\Theta, \Phi) = -\frac{\beta(\Theta, \Phi)}{2\alpha(\Theta, \Phi)} \quad (5.16)$$

Cette expression de cet extremum selon B_s correspond à la condition :

$$\frac{\partial \Delta_{13}}{\partial B_s} = 0 \quad \frac{\partial \Delta_{24}}{\partial B_s} = 0 \quad (5.17)$$

Cet extremum selon B_s dépend des variables Θ et Φ . On cherche alors les angles qui minimisent ou maximisent cet extremum. Une résolution graphique de $B_{extr,24}(\Theta, \Phi)$ pour chaque site permettra alors de trouver les points qui vérifient la condition triple (5.12).

Comme on peut le remarquer, seule une des deux transitions pour chaque site présentera un extremum physique, étant donnée que l'amplitude du champ magnétique est par définition positive. Les représentations graphiques sont représentées sur la figure (5.3).

Étant toujours contraint par la valeur de l'angle Φ de par le clivage de notre cristal, nous avons opté pour la direction $(\Theta, \Phi) = (90^\circ, 45^\circ)$ du champ magnétique statique, qui minimise la valeur de l'extremum pour le site 1. Cet extremum est obtenu pour un module du champ magnétique $B_s = 13$ mT (Fig 5.4) : le splitting optique des ions placés sur les sites 1 présente alors un minimum, à la fois selon B_s , Θ et Φ . Les fluctuations du splitting optique Δ_{24} sont alors nulles au premier ordre pour les ions Tm^{3+} placés sur les sites 1 ; pour un champ (dit ZEFOZ) de paramètres :

$$B_s = 13 \text{ mT} \qquad \Theta = 90^\circ \qquad \Phi = 45^\circ \qquad (5.18)$$

On s'attend donc à une meilleure préservation des cohérences optiques pour les ions des sites 1, soit à un allongement du T_2 optique.

Qu'en est-il pour les autres sites ? L'analyse ci-dessus montre qu'il existe toujours une transition optique présentant un extremum selon le module du champ magnétique, car la fréquence de transition optique s'écrit comme un polynôme du second degré en B_s . Ainsi, il existe une valeur du module du champ magnétique pour laquelle les fluctuations de B_s n'auront pas d'effets (au premier ordre) sur les ions localisés sur ces sites. La variation de la fréquence de transition Δ_{24} en fonction de B_s des sites 2 à 6 est représentée sur les figures (5.4) et (5.5), pour la configuration angulaire du champ $(\Theta, \Phi) = (90^\circ, 45^\circ)$.

La présence d'un maximum de la transition optique pour ces sites laisse présager un possible allongement du T_2 .

5.2 Démonstration expérimentale du ZEFOZ optique

Le principe de la mesure consiste à choisir une valeur initiale de l'amplitude du champ magnétique, et à réaliser une première expérience de creusement de trou spectral. Une fois le trou creusé à la fréquence du faisceau pompe, on mesure le spectre de transmission au voisinage du trou creusé, pour différentes valeurs du champ magnétique. Un tel changement modifie les fréquences des transitions optiques du $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$, et ce changement doit se répercuter sur la position des trous (de certains du moins). Ainsi, en notant la position des trous et/ou anti-trou du spectre en fonction de l'amplitude du champ magnétique, il sera possible de mettre en évidence un effet ZEFOZ.

En pratique, la variation du champ magnétique devait se faire lentement afin de garantir la reproductibilité des mesures. La vitesse de balayage du champ magnétique était typiquement de l'ordre de $0.05 \text{ mT}\cdot\text{s}^{-1}$. Or la durée de vie des trous et anti-trous est limitée, de l'ordre de la minute : il était donc impossible de réaliser une courbe en une seule fois. L'astuce a consisté à choisir une valeur du champ référence B_{ref} à laquelle on réalisait un creusement de trou spectral, puis à choisir une seconde valeur du champ B_{mes} et à enregistrer le spectre obtenu. On réinitialisait ensuite le système et on recommençait la manœuvre avec la même référence B_{ref} mais une autre valeur B_{mes} .

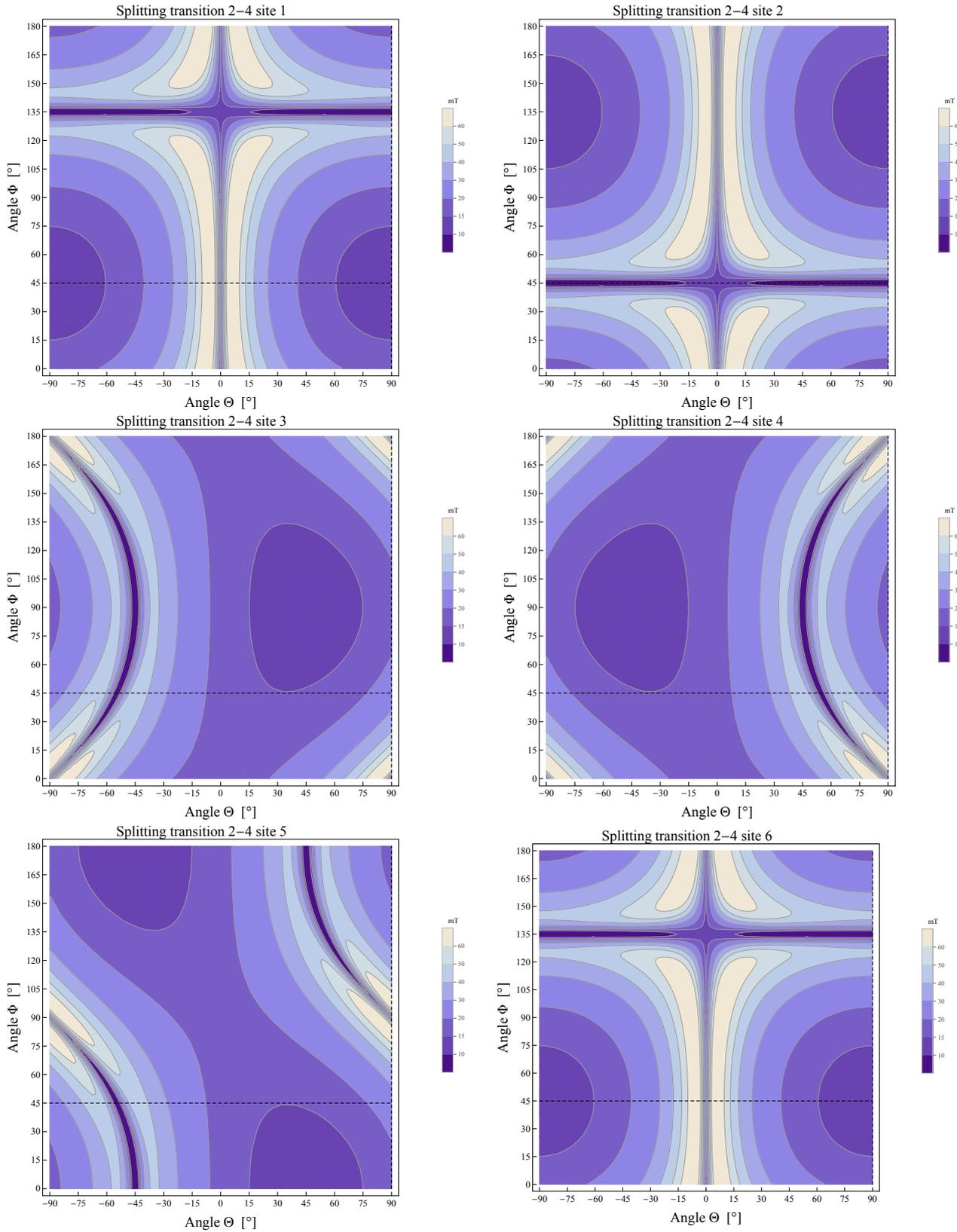


FIGURE 5.3 – Extremum du splitting de la transition optique $|2\rangle-|4\rangle$ en fonction de Θ et Φ , pour les différents sites. Les régions les plus foncées correspondent au minima, les régions les plus claires, au maxima. Les deux angles Θ et Φ choisis pour l’expérience, correspondant à un point ZEFOZ pour les ions des sites 1, sont repérés par une ligne tireté verticale et horizontale respectivement.

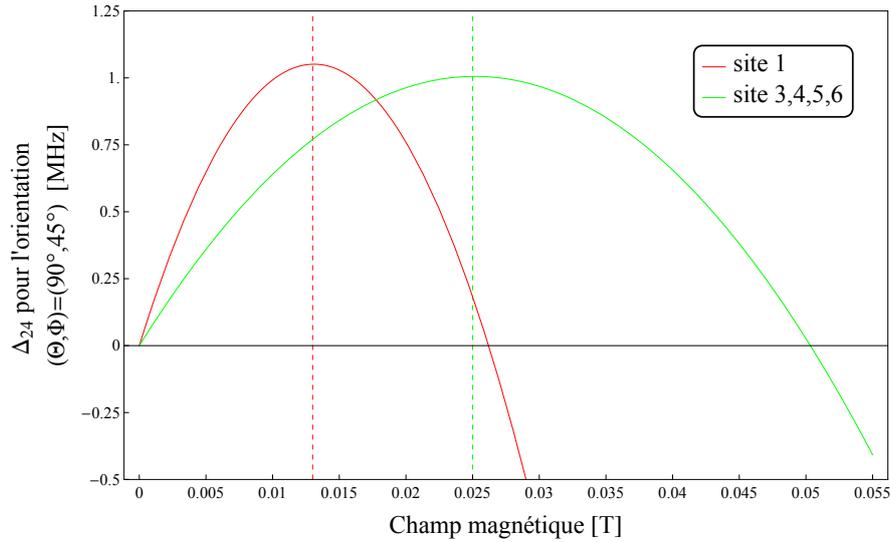


FIGURE 5.4 – Variation de la fréquence de transition 2–4 en fonction du module du champ magnétique B_s , pour le site 1 (rouge) et les sites 3–6 (vert), pour une orientation du champ magnétique donnée par les angles $\Theta = 90^\circ$ et $\Phi = 45^\circ$.

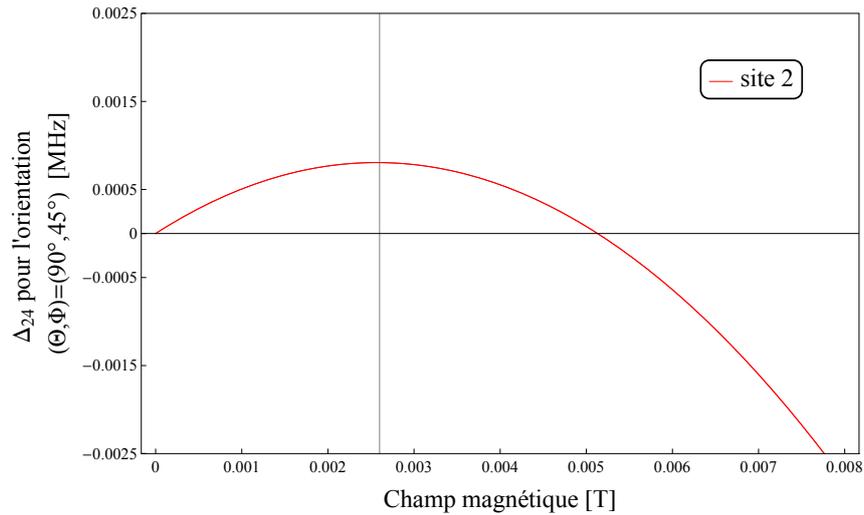


FIGURE 5.5 – Variation de la fréquence de transition 2–4 en fonction du module du champ magnétique B_s , pour le site 2, pour une orientation du champ magnétique donnée par les angles $\Theta = 90^\circ$ et $\Phi = 45^\circ$.

Lorsque la polarisation du champ optique était selon [110], seuls les ions occupant les sites 2 ne participaient pas aux expériences. Pour cette configuration du champ magnétique statique, les ions des sites 1 ont un terme Zeeman nucléaire exacerbé deux fois plus important que celui des ions des sites 3, 4, 5 et 6, qui sont magnétiquement équivalents. Les résultats expérimentaux obtenus pour cette polarisation du champ optique sont représentés sur la figure (5.6).

Sur la figure (5.6)(a), on a représenté les spectres de creusement de trou spectral obtenus pour différentes valeurs du champ magnétique. Ces dernières sont notées à droite et permettent d'identifier les différents tracés. On peut s'apercevoir que les deux anti-trous à gauche, ainsi qu'un des trous subissent une déviation monotone en fonction du champ magnétique, tandis qu'on devine une courbure pour le dernier anti-trou de droite. Le graphique (b) est un agrandissement

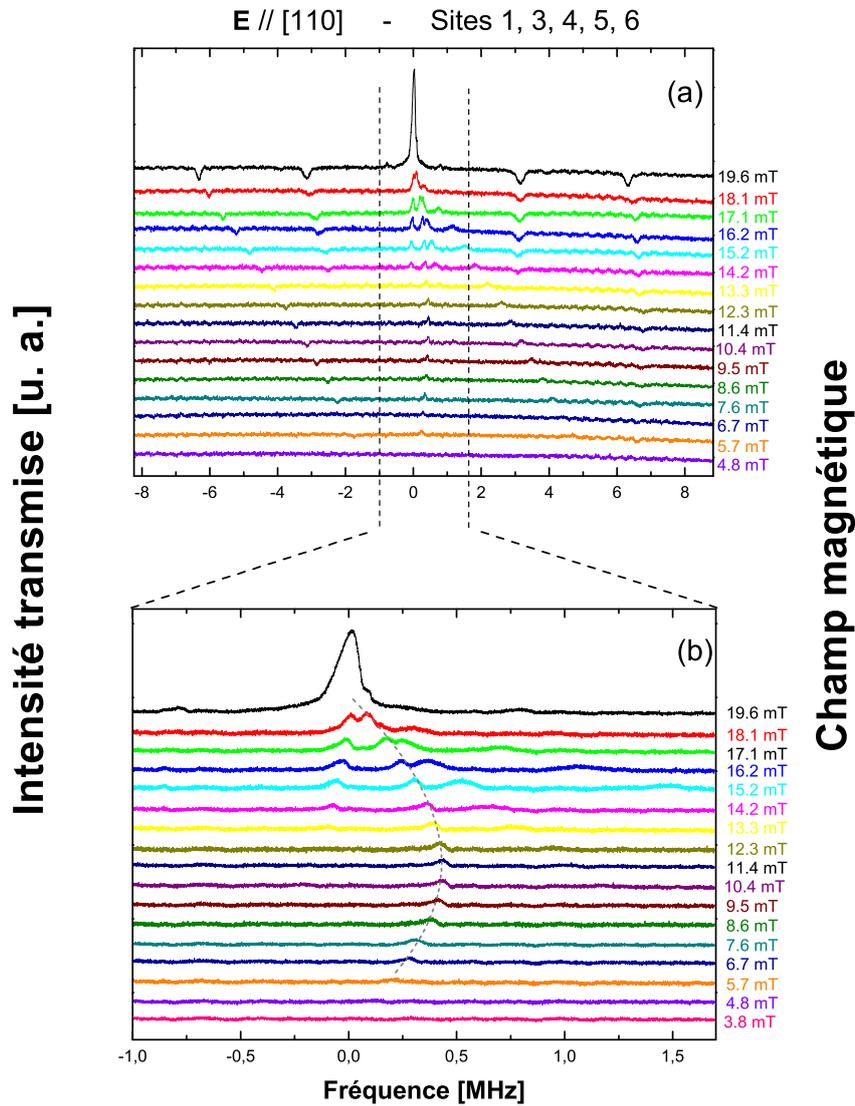


FIGURE 5.6 – (a) Mise en évidence de l’effet ZEFOZ d’une transition optique. Grâce à des expériences de creusement de trou spectral, on mesure l’évolution de la position des différents trous et anti-trous en fonction de l’amplitude du champ magnétique. L’orientation $[110]$ du champ optique rendait les ions des sites 1, 3, 4, 5 et 6 actifs (b) centre de la figure (a), représentée avec une plus grande résolution de façon à montrer le déplacement du trou spectral.

de (a) autour des fréquences proches de zéro. On note clairement que les positions prises par le trou central se déplacent d’abord vers les fréquences positives lorsque le champ diminue, mais qu’elles se déplacent ensuite vers les fréquences négatives après une valeur seuil d’environ 12 mT. Cette valeur est en très bon accord avec la valeur théorique de 13 mT annoncée plus haut pour le site 1. Cette courbure est matérialisée sur la figure (b) par des pointillées. Ceci est la preuve qu’une transition optique passe par un extremum. Il faut maintenant s’assurer que ce dernier correspond bien aux ions Tm^{3+} du site 1.

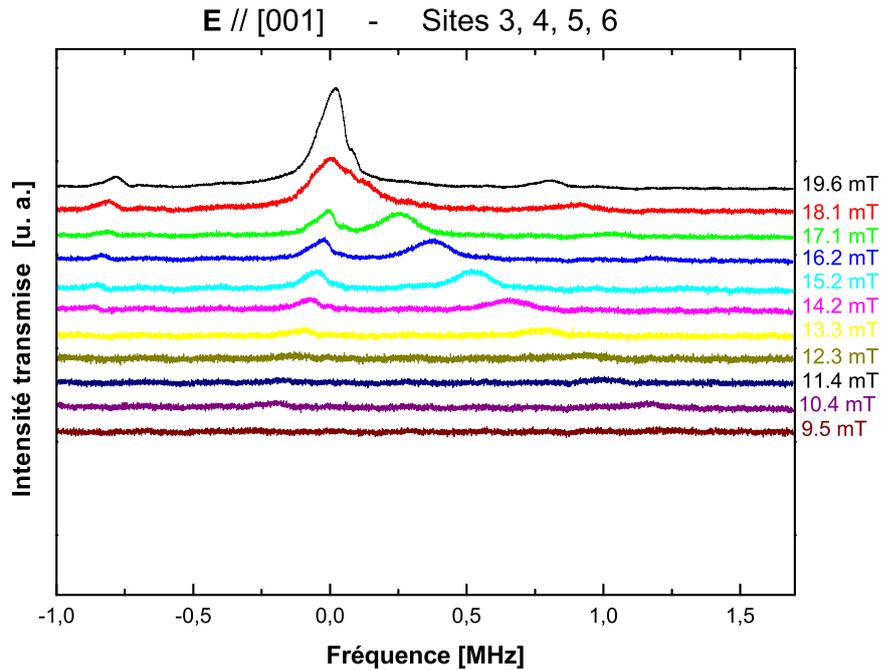


FIGURE 5.7 – Même principe expérimental décrit dans la légende de la figure (5.6). Cette fois-ci seuls les ions des sites 3, 4, 5 et 6 étaient actifs.

Pour ce faire, on réalise la même expérience mais en orientant cette fois-ci la polarisation du champ lumineux selon la direction $[001]$: seuls les ions des sites 3, 4, 5 et 6 sont actifs. Les résultats expérimentaux sont représentés sur la figure (5.7). On n'observe pas de courbure en fonction du module du champ magnétique, sur une plage comprise entre 9 mT et 20 mT. On peut donc conclure que le champ magnétique de paramètres $(B_s, \Theta, \Phi) = (0.012\text{mT}, 90^\circ, 45^\circ)$ est un champ ZEFOZ pour les ions des sites 1.

5.2.1 ZEFOZ optique partiel pour les sites 3, 4, 5 et 6

L'orientation du champ magnétique statique choisie dans ce chapitre n'est pas une direction permettant de satisfaire la condition ZEFOZ pour ces sites. Cependant, nous avons montré (théoriquement) plus haut qu'il peut exister une dérivée partielle nulle d'une des deux transitions optiques : une dérivée selon l'amplitude du champ magnétique. Pour vérifier expérimentalement ce résultat, on se place tout d'abord dans une configuration où seuls les ions des sites 3 à 6 sont actifs : le champ lumineux est donc une nouvelle fois orienté selon la direction $[001]$. On réalise alors l'expérience décrite précédemment, mais sur une plage plus grande, des modules du champ magnétique plus élevés.

Sur la figure (5.8), on a reporté la position d'un des trous en fonction de l'amplitude du champ magnétique. La courbe présente bien un extremum et est parfaitement modélisée par un polynôme du second degré. On obtient cette fois-ci un maximum pour un champ de 20 mT, relativement proche de la valeur théorique calculée précédemment.

Ce résultat indique qu'une des transitions optiques fortes est moins sensible aux fluctuations

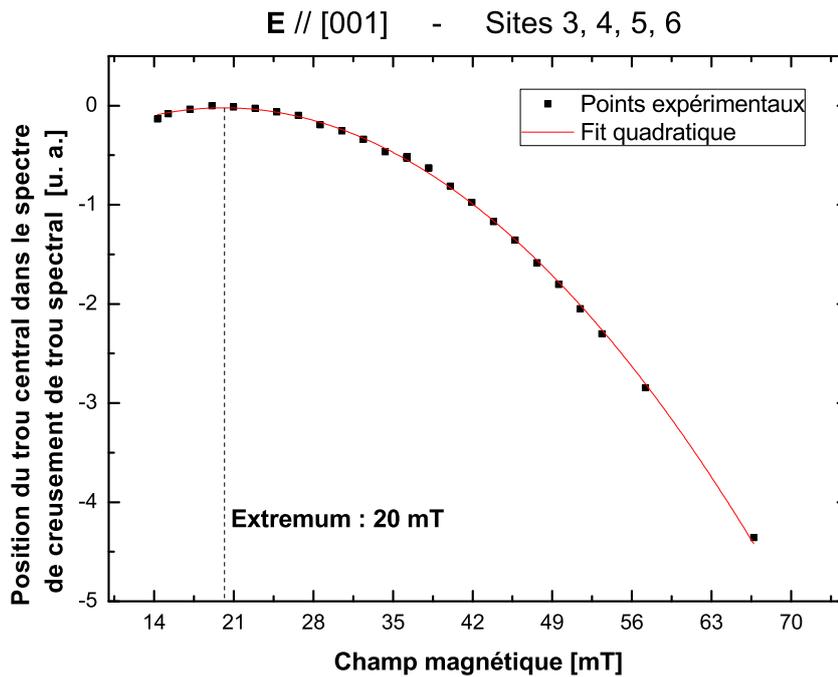


FIGURE 5.8 – Déplacement Zeeman quadratique dans l’excité pour les différents sites, en fonction de l’angle Θ et pour $\Phi = 45^\circ$.

de l’environnement. Il serait alors possible de voir un certain allongement de la durée de vie des cohérences optiques.

5.3 Extension du temps de vie des cohérences optiques

5.3.1 Résultats expérimentaux

Nous nous sommes placés sur le point ZEFOZ du champ magnétique statique à 13 mT, et sur le point ZEFOZ partiel à 20 mT. On s’attend alors à ce que les effets des fluctuations de l’environnement soient plus ou moins fortement réduits. L’expérience consiste à mesurer la durée de vie d’un ensemble de cohérences optiques via des échos de photons à deux impulsions.

L’écho de photons à deux impulsions est à l’optique, ce que les échos de Hahn sont en RMN. Dans nos expérience, la première impulsion optique d’aire $\pi/2$ approximativement crée une cohérence optique macroscopique dans le milieu. Puis après un certain temps d’évolution libre τ , une impulsion optique d’aire π de rephasage est appliquée au système. On mesure le signal d’écho émis directement après un temps 2τ .

Les résultats des expériences sont présentés sur les figures (5.9) pour les sites 1, 3, 4, 5 et 6, et (5.10) pour les sites 2, 3, 4, 5 et 6.

On a réalisé des mesures de relaxation des cohérences optiques pour différentes valeurs du champ magnétique. Sur la figure (5.9)(a), On note un ralentissement progressif de la relaxation lorsqu’on augmente l’amplitude du champ. Puis à partir d’un champ de l’ordre de 15 mT, les

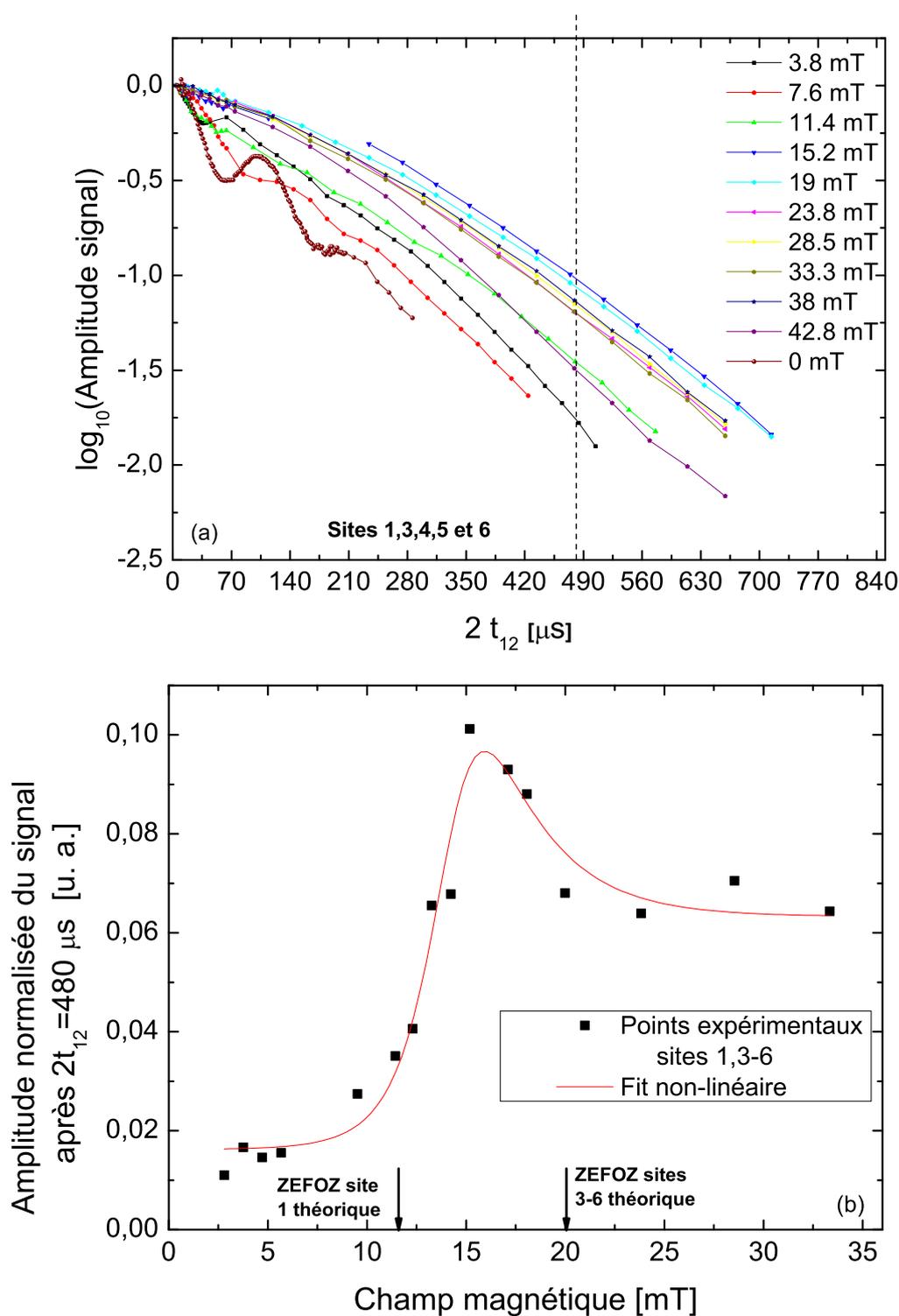


FIGURE 5.9 – (a) Expériences d'échos de photons à deux impulsions en fonction du temps d'évolution libre $2t_{12}$, pour les sites 1, 3, 4, 5 et 6. Chaque tracé correspond à une valeur fixée de l'amplitude du champ magnétique. (b) coupe réalisée à $2t_{12} = 480 \mu\text{s}$. La courbe en rouge est un fit non-linéaire qui sert avant tout de support visuel pour mieux apprécier l'allure des données expérimentales, et mettre en valeur l'asymétrie par rapport au pic central.

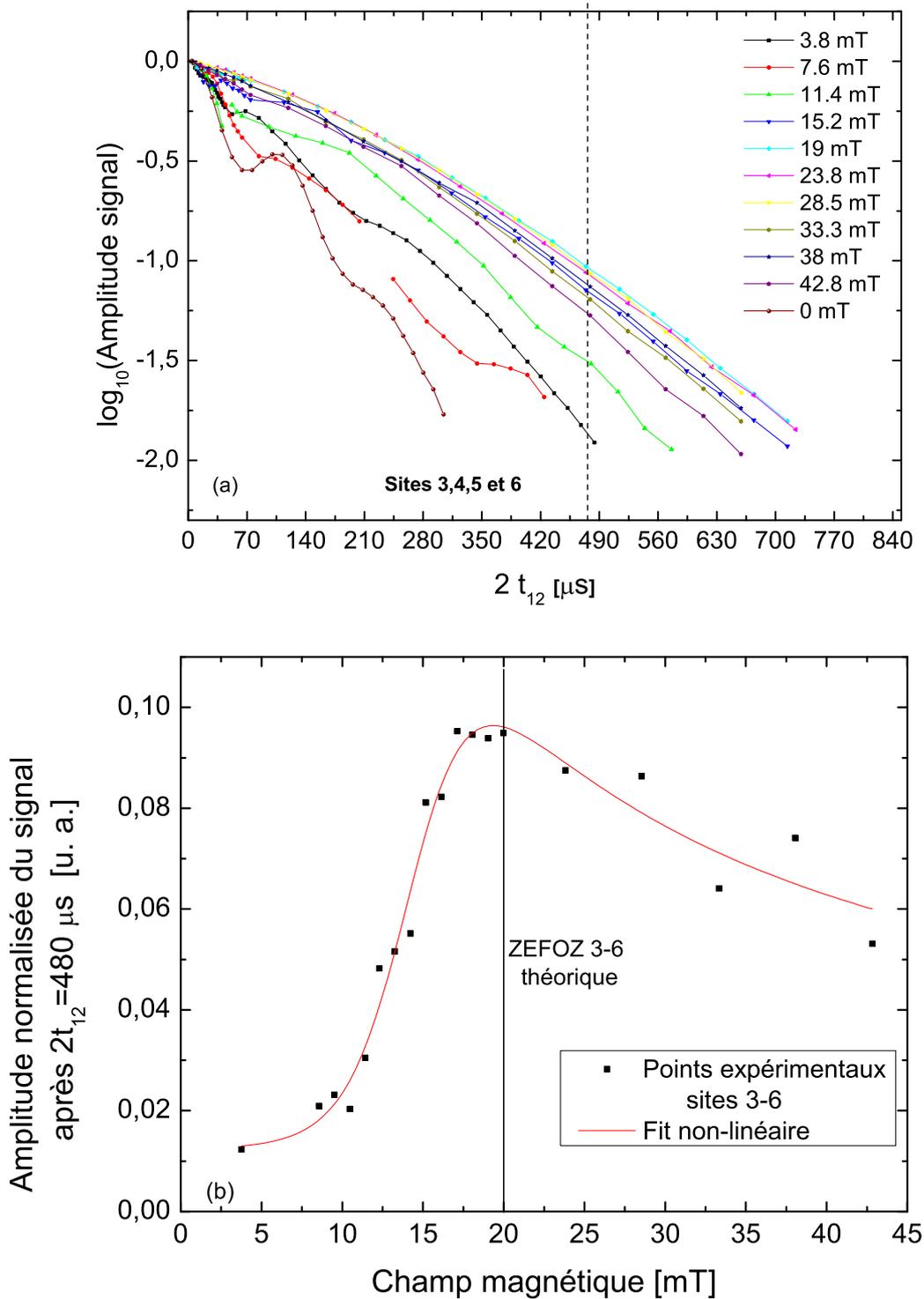


FIGURE 5.10 – (a) Expériences d’échos de photons à deux impulsions en fonction du temps d’évolution libre $2t_{12}$, pour les sites 3, 4, 5 et 6. Chaque tracé correspond à une valeur fixée de l’amplitude du champ magnétique. (b) coupe réalisée à $2t_{12} = 480 \mu\text{s}$. La courbe en rouge est un fit non-linéaire qui sert avant tout de support visuel pour mieux apprécier l’allure des données expérimentales, et mettre en valeur l’asymétrie par rapport au pic central.

tracés expérimentaux décroissent plus rapidement, signe que le temps de vie de l'ensemble des cohérences optiques diminue. Cette évolution est plus claire sur la figure (5.9)(b) qui représente une coupe à un temps $2t_{12} = 480 \mu\text{s}$. La valeur du champ pour laquelle on préserve le plus longtemps ces cohérences optiques est donc de l'ordre de 15 mT, ce qui est en accord avec la valeur du champ ZEFOZ pour le site 1, de l'ordre de 12 mT comme mesuré un peu plus haut.

C'est une démonstration de l'effet ZEFOZ ; les cohérences optiques sont plus robustes car moins sensibles aux fluctuations de l'environnement.

La figure (5.10) montre également un effet de ZEFOZ partiel. En effet, on observe une préservation maximale des cohérences optiques pour un champ de l'ordre de 20 mT, en accord également avec les résultats expérimentaux de (5.8).

5.3.2 Analyse

Nous remarquons sur les deux dernières figures que les courbes expérimentales n'ont pas un comportement exponentiel. Plus encore, pour des champs faibles, inférieurs à une dizaine de mT, une modulation apparaît sur les tracés. Ces modulations sont par ailleurs très marquées à champ nul, et ce quel que soit le site étudié. Par ailleurs, sur les coupes à $2t_{12} = 480 \mu\text{s}$, on note une asymétrie des courbes par rapport à l'axe passant par la valeur du champ magnétique optimisant le signal transmis qu'on ne sait pas interpréter.

Nous n'avons pas de modèle à ce jour permettant d'expliquer correctement le mécanisme de décroissance des cohérences optiques. Il devient ainsi délicat d'estimer le temps de vie de l'ensemble des cohérences optiques. De manière phénoménologique, on peut définir un temps de mémoire T_M des cohérences optiques [15] et tenter un premier fit des données expérimentales, par une fonction de type :

$$f(t) = f(0)e^{-\frac{t}{T_M^p}} \quad (5.19)$$

On trouve alors pour les champs ZEFOZ, un temps de mémoire de l'ordre de $260 \mu\text{s}$ avec une puissance $p = 1.4$. On aurait alors une augmentation significative de la durée de vie des cohérences optiques, comparé à la valeur de $105 \mu\text{s}$ mesurée par McFarlane [21].

Conclusion générale

La préservation des cohérences de spins nucléaires dans le $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ a été le fil conducteur de ce manuscrit, mais aussi pendant ces trois années de thèse. Elle a permis de mieux cerner les différents mécanismes de relaxation du spin. Le premier correspond au déphasage inhomogène des spins nucléaires, déterministe. Il est lié au fait que les ions Tm^{3+} n'ont pas rigoureusement la même fréquence de transition de spin. Une solution pour préserver les cohérences réside dans la remise en phase des spins nucléaires, réalisée expérimentalement par des échos de Hahn exploitant un double passage adiabatique. Le deuxième mécanisme a pour origine l'interaction des ions Tm^{3+} avec leur environnement local. En adoptant un point de vue semi-classique, on décrit ce mécanisme encore comme un déphasage, cette fois-ci aléatoire, indéterministe. Cette fois-ci, une solution possible pour préserver les cohérences repose sur le découplage dynamique des fluctuations de l'environnement : le rephasage des spins nucléaires se fait sur une durée inférieure au temps caractéristique des fluctuations, avec l'aide d'une séquence CPMG. On arrive ainsi à atteindre un T_2 de 230 ms, avec une séquence contenant 5000 impulsions.

Plusieurs perspectives sont envisageables. La compréhension de la relaxation de l'aimantation nucléaire transversale est à affiner, le modèle proposé montrant quelques limites. Nous avons vu par ailleurs deux descriptions possibles : l'une semi-classique et l'autre purement quantique. Une réflexion me semble nécessaire pour faire la jonction entre ces deux visions, d'autant que l'expérience ne permet pas pour l'instant pas de trancher, du fait de la technique de détection employée.

La robustesse de la séquence CPMG sur notre système est remarquable puisqu'on peut utiliser aisément plusieurs milliers d'impulsions. Ces dernières ne peuvent être rigoureusement parfaites lors d'une expérience, et donc l'accumulation d'erreurs devrait rapidement (après quelques dizaines d'impulsions) limiter les mesures de T_2 : or ce n'est pas le cas. Utiliser d'autres séquences d'impulsion (sécante hyperbolique, impulsions composites) permettrait peut-être d'en savoir davantage.

Au cours du quatrième chapitre, nous avons démontré que l'orientation du champ magnétique influençait la sensibilité des ions Tm^{3+} aux fluctuations de l'environnement. Cela est directement lié à l'anisotropie magnétique du cristal évoqué au premier chapitre. L'orientation $(\Theta, \Phi) = (-54.7^\circ, 45^\circ)$ correspond à un minimum pour le splitting hyperfin, et permet de doubler la durée de vie de l'aimantation nucléaire transversale, passant de l'ordre de 500 μs à 1 ms. Il serait intéressant de poursuivre l'étude, en étudiant une possible dépendance du T_2 avec le module du champ magnétique. En effet, ce dernier fixe l'écart énergétique entre les deux niveaux hyperfins. Anne Louchet [17] avait montré lors de sa thèse que le T_1 augmentait avec le module du champ.

L'étude des cohérences optiques dans $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$ est prometteuse. On a montré comment

exploiter le déplacement Zeeman quadratique pour réaliser la technique du ZEFOZ, et favoriser ainsi l'insensibilité des ions Tm^{3+} aux fluctuations de l'environnement altérant les transitions optiques. Un nombre important de données expérimentales (non présentées dans ce manuscrit) ont été prises, et révèle la complexité du système quant aux mécanismes de relaxation des cohérences optiques. Plusieurs pistes doivent être approfondies simultanément :

- d'une part, une cristallographie poussée du $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$, avec notamment la position des ions voisins Al^{3+} autour d'un ion Tm^{3+} , afin de mieux décrire leurs interactions (interactions spin-spin et quadrupolaire nucléaire de Al^{3+}). Elle donnerait un meilleur bagage théorique pour appréhender une structure super-hyperfine expérimentalement observée à travers certains spectres de creusement de trou spectral, et ce pour différentes orientations du champ magnétique, et qui selon moi joue un rôle important dans les processus de relaxation à bas champ (entre 0 et 50 mT pour l'orientation $(\Theta, \Phi) = (90^\circ, 45^\circ)$). Une réflexion est en cours.
- d'autre part, une analyse expérimentale plus précise du T_2 optique, selon qu'on se trouve dans la situation où les fluctuations du splitting optique sont minimisées simultanément dans les trois directions de l'espace, ou non. Dans ce dernier cas, il faudrait en outre étudier les différences selon qu'on se trouve sur un extremum selon le module du champ ou selon un des deux angles.

On arrive probablement à un moment important dans nos recherches sur $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$. Cinq thèses maintenant ont permis d'accumuler un grand nombre de données sur ce cristal, tant sur la structure des niveaux d'énergie, que sur la manipulation des cohérences de spin ou optique à diverses fins ; le tout en gardant une description simple du système. Pour aller plus loin, il me semble désormais primordial d'effectuer une synthèse générale des connaissances et d'intégrer de la complexité dans la description de notre système.

Première annexe

Détermination du terme de couplage C

On reprend les notations du premier chapitre. Par définition des deux vecteurs unitaires \mathbf{b}_{eff} et $\mathbf{b}_{\perp eff}$, on a

$$m^2 + n^2 + l^2 = m_{\perp}^2 + n_{\perp}^2 + l_{\perp}^2 = 1 \quad (20)$$

On rappelle l'expression du terme de couplage C :

$$C = \langle 2|\hat{H}|1\rangle = \Delta_{\perp} \frac{m_{\perp}(ml - jn) + n_{\perp}(nl + jm) - l_{\perp}(m^2 + n^2)}{\sqrt{m^2 + n^2}} \quad (21)$$

$$\begin{aligned} &= \Delta_{\perp} \frac{m_{\perp}ml + n_{\perp}nl + l_{\perp}l^2 - l_{\perp} + j(n_{\perp}m - m_{\perp}n)}{\sqrt{m^2 + n^2}} \\ &= \Delta_{\perp} \frac{(\mathbf{b}_{eff} \cdot \mathbf{b}_{\perp eff})l - l_{\perp} + j(n_{\perp}m - m_{\perp}n)}{\sqrt{1 - l^2}} \end{aligned} \quad (22)$$

On a alors le module carré :

$$|C|^2 = \Delta_{\perp}^2 \frac{(\mathbf{b}_{eff} \cdot \mathbf{b}_{\perp eff})^2 l^2 + l_{\perp}^2 - 2(\mathbf{b}_{eff} \cdot \mathbf{b}_{\perp eff})ll_{\perp} + n_{\perp}^2 m^2 + m_{\perp}^2 n^2 - 2mm_{\perp}nn_{\perp}}{1 - l^2} \quad (23)$$

Or en remarquant que :

$$n_{\perp}^2 m^2 = n_{\perp}^2 (1 - n^2 - l^2) = n_{\perp}^2 - n_{\perp}^2 n^2 - n_{\perp}^2 l^2 \quad (24)$$

$$m_{\perp}^2 n^2 = m_{\perp}^2 (1 - m^2 - l^2) = m_{\perp}^2 - m_{\perp}^2 m^2 - m_{\perp}^2 l^2 \quad (25)$$

On obtient

$$\begin{aligned} |C|^2 &= \Delta_{\perp} \frac{(\mathbf{b}_{eff} \cdot \mathbf{b}_{\perp eff})^2 l^2 - 2(\mathbf{b}_{eff} \cdot \mathbf{b}_{\perp eff})ll_{\perp} + (m_{\perp} + n_{\perp} + l_{\perp}) - (mm_{\perp} + nn_{\perp})^2 - l^2 + l^2 l_{\perp}^2}{1 - l^2} \\ &= \Delta_{\perp} \frac{(\mathbf{b}_{eff} \cdot \mathbf{b}_{\perp eff})^2 l^2 - 2(\mathbf{b}_{eff} \cdot \mathbf{b}_{\perp eff})^2 ll_{\perp} + 1 - ((\mathbf{b}_{eff} \cdot \mathbf{b}_{\perp eff}) - ll_{\perp})^2 - l^2 + l^2 l_{\perp}^2}{1 - l^2} \\ &= \Delta_{\perp} \frac{(\mathbf{b}_{eff} \cdot \mathbf{b}_{\perp eff})^2 l^2 + 1 - (\mathbf{b}_{eff} \cdot \mathbf{b}_{\perp eff})^2 - l^2}{1 - l^2} \\ &= \Delta_{\perp} \frac{(1 - l^2) + (\mathbf{b}_{eff} \cdot \mathbf{b}_{\perp eff})^2 (l^2 - 1)}{1 - l^2} = \Delta_{\perp} (1 - (\mathbf{b}_{eff} \cdot \mathbf{b}_{\perp eff})^2) \end{aligned} \quad (26)$$

Alors on obtient bien :

$$C = |C| e^{j\phi_C} = \Delta_{\perp} \sqrt{1 - (\mathbf{b}_{eff} \cdot \mathbf{b}_{\perp eff})^2} e^{j\phi_C} \quad (27)$$

A titre indicatif, on donne également une expression de la phase du facteur de couplage :

$$\tan(\phi_C) = \frac{-n_{\perp}m + m_{\perp}n}{(\mathbf{b}_{eff} \cdot \mathbf{b}_{\perp eff})l - l_{\perp}} = \frac{(\mathbf{b}_{eff} \times \mathbf{b}_{\perp eff})_z}{l \left((\mathbf{b}_{eff} \cdot \mathbf{b}_{\perp eff}) - \frac{l_{\perp}}{l} \right)} \quad (28)$$

Seconde annexe

Équation d'évolution et vecteur de Bloch

Un système à deux niveaux est complètement décrit par son opérateur d'état $\hat{\rho}$:

$$\hat{\rho} = \begin{bmatrix} \rho_{22} & \rho_{21} \\ \rho_{12} & \rho_{11} \end{bmatrix} \quad (29)$$

$$= \frac{1}{2} \begin{bmatrix} \rho_{11} + \rho_{22} & 0 \\ 0 & \rho_{11} + \rho_{22} \end{bmatrix} + \frac{1}{2} \begin{bmatrix} \rho_{22} - \rho_{11} & 2\Re(\rho_{21}) + 2i\Im(\rho_{21}) \\ 2\Re(\rho_{21}) - 2i\Im(\rho_{21}) & \rho_{11} - \rho_{22} \end{bmatrix} \quad (30)$$

$$= \frac{1}{2} (\mathbb{1} + \mathbf{b} \cdot \hat{\boldsymbol{\sigma}}) \quad (31)$$

où l'on a exploité le fait que la trace d'un opérateur d'état vaut l'unité. Le vecteur $\hat{\boldsymbol{\sigma}}$ correspond au vecteur de Pauli, avec pour composantes les matrices de Pauli σ_x , σ_y et σ_z . Le vecteur \mathbf{b} est le vecteur de Bloch, de composantes :

$$\mathbf{b} = \begin{bmatrix} 2\Re(\rho_{21}) \\ -2\Im(\rho_{21}) \\ \rho_{22} - \rho_{11} \end{bmatrix} \quad (32)$$

Le Hamiltonien du système à deux niveaux H s'exprime également en fonction des matrices de Pauli. On a de manière similaire :

$$H = \begin{bmatrix} H_{22} & H_{21} \\ H_{12} & H_{11} \end{bmatrix} = \frac{1}{2} ((H_{11} + H_{22})\mathbb{1} + \mathbf{c} \cdot \hat{\boldsymbol{\sigma}}) \quad (33)$$

où le vecteur \mathbf{c} s'écrit :

$$\mathbf{c} = \begin{bmatrix} 2\Re(H_{21}) \\ -2\Im(H_{21}) \\ H_{22} - H_{11} \end{bmatrix} \quad (34)$$

L'équation d'évolution d'un opérateur d'état est donnée par :

$$i\hbar \frac{d}{dt} \hat{\rho}(t) = [H, \rho(t)] \quad (35)$$

Le premier membre de l'équation devient :

$$i\hbar \frac{d}{dt} \hat{\rho}(t) = \frac{1}{2} i\hbar \frac{d}{dt} (\mathbb{1} + \mathbf{b}(t) \cdot \hat{\boldsymbol{\sigma}}) \quad (36)$$

$$= \frac{1}{2} i\hbar \frac{d}{dt} (\mathbf{b}(t) \cdot \hat{\boldsymbol{\sigma}}) = \frac{1}{2} i\hbar \left(\frac{d}{dt} \mathbf{b}(t) \right) \cdot \hat{\boldsymbol{\sigma}} \quad (37)$$

Le commutateur se réécrit comme suit :

$$[H, \rho(t)] = \left[\frac{1}{2} ((H_{11} + H_{22})\mathbb{1} + \mathbf{c} \cdot \hat{\boldsymbol{\sigma}}), \frac{1}{2} (\mathbb{1} + \mathbf{b}(t) \cdot \hat{\boldsymbol{\sigma}}) \right] \quad (38)$$

$$= \left[\frac{1}{2} \mathbf{c} \cdot \hat{\boldsymbol{\sigma}}, \frac{1}{2} \mathbf{b}(t) \cdot \hat{\boldsymbol{\sigma}} \right] = \frac{1}{4} (\mathbf{c} \cdot \hat{\boldsymbol{\sigma}}) (\mathbf{b}(t) \cdot \hat{\boldsymbol{\sigma}}) - \frac{1}{4} (\mathbf{b}(t) \cdot \hat{\boldsymbol{\sigma}}) (\mathbf{c} \cdot \hat{\boldsymbol{\sigma}}) \quad (39)$$

$$= \frac{1}{2} \imath (\mathbf{c} \times \mathbf{b}) \cdot \hat{\boldsymbol{\sigma}} \quad (40)$$

où l'on a utilisé pour obtenir la dernière égalité, la propriété valable pour deux vecteurs quelconques \mathbf{u} et \mathbf{v} :

$$(\mathbf{u} \cdot \hat{\boldsymbol{\sigma}}) (\mathbf{v} \cdot \hat{\boldsymbol{\sigma}}) = \mathbf{u} \cdot \mathbf{v} + \imath (\mathbf{u} \times \mathbf{v}) \cdot \hat{\boldsymbol{\sigma}} \quad (41)$$

On obtient alors :

$$\frac{i\hbar}{2} \left(\frac{d}{dt} \mathbf{b}(t) \right) \cdot \hat{\boldsymbol{\sigma}} = \frac{\imath}{2} (\mathbf{c} \times \mathbf{b}) \cdot \hat{\boldsymbol{\sigma}} \Leftrightarrow \left(\frac{d}{dt} \mathbf{b}(t) - \frac{1}{\hbar} \mathbf{c} \times \mathbf{b} \right) \cdot \hat{\boldsymbol{\sigma}} = 0 \quad (42)$$

Les matrices de Pauli formant une famille libre d'éléments, l'équation ci-dessus est équivalente à :

$$\frac{d}{dt} \mathbf{b}(t) = \mathbf{C} \times \mathbf{b} \quad (43)$$

C'est une précession du vecteur de Bloch \mathbf{b} autour du vecteur de contrôle $\mathbf{C} = \mathbf{c}/\hbar$.

Critère d'adiabaticité pour un spin dans un champ radio-fréquence

L'équation de Schrödinger décrit l'évolution d'un système quantique $|\Psi(t)\rangle$:

$$i\hbar \frac{d}{dt} |\Psi(t)\rangle = \hat{H}(t) |\Psi(t)\rangle \quad (44)$$

Dans le cas le plus général, ce Hamiltonien dépend du temps. A tout moment, le système possède un jeu de valeurs propres $E_n(t)$ et de vecteurs propres $|\psi_n(t)\rangle$, dits instantanés :

$$\hat{H}(t) |\psi_n(t)\rangle = E_n(t) |\psi_n(t)\rangle \quad (45)$$

Les valeurs propres sont supposées discrètes et non-dégénérées, pour éviter les cas particuliers. L'ensemble des $|\psi_n(t)\rangle$ constitue la base propre instantanée \mathcal{E}_{ins} du système. La matrice de passage $P(t)$ de \mathcal{E} à \mathcal{E}_{ins} permet de diagonaliser le Hamiltonien :

$$\hat{H}(t) = P(t) \hat{D}(t) P^{-1}(t) \quad (46)$$

On peut alors réécrire l'équation de Schrödinger comme suit :

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{d}{dt} |\Psi\rangle &= P \hat{D}(t) P^{-1} |\Psi\rangle \\ i\hbar (P^{-1} \frac{d}{dt} |\Psi\rangle) &= \hat{D} |P^{-1} \Psi\rangle \\ i\hbar \frac{d}{dt} (|P^{-1} \Psi\rangle) - i\hbar \frac{dP^{-1}}{dt} |\Psi\rangle &= \hat{D} |P^{-1} \Psi\rangle \\ i\hbar \frac{d}{dt} (|P^{-1} \Psi\rangle) &= \hat{D} |P^{-1} \Psi\rangle + i\hbar \frac{dP^{-1}}{dt} P |P^{-1} \Psi\rangle \end{aligned} \quad (47)$$

En passant dans la base instantanée, l'évolution du système est régie par deux termes. Alors que le premier est diagonal et donne lieu à une phase dynamique (généralisation du concept de phase lors d'un Hamiltonien indépendant du temps), le second peut coupler les états propres instantanés entre eux. Les éléments non-diagonaux de $M = \frac{dP^{-1}(t)}{dt}P(t)$ auront un effet négligeable sur les énergies propres instantanées si leur produit est largement inférieur au carré des demi-splitting instantanés, soit que pour tout m différent de n et à tout instant t :

$$\hbar^2 \left| \langle \psi_m(t) | \frac{dP^{-1}(t)}{dt} P(t) | \psi_n(t) \rangle \langle \psi_n(t) | \frac{dP^{-1}(t)}{dt} P(t) | \psi_m(t) \rangle \right| \ll \frac{|E_n(t) - E_m(t)|^2}{4} \quad (48)$$

on peut alors considérer la matrice M comme diagonale ; l'évolution de $|\Psi(t)\rangle$ peut alors s'écrire :

$$|\Psi(t)\rangle = \sum_n c_n(t_0) e^{-i\phi_n(t)} e^{i\chi_n(t)} |\psi_n(t)\rangle \quad (49)$$

où

$$\phi_n(t) = \frac{1}{\hbar} \int_{t_0}^t E_n(t') dt', \quad \chi_n(t) = \hbar \langle \psi_n(t) | \frac{dP^{-1}(t)}{dt} P(t) | \psi_n(t) \rangle \quad (50)$$

On retrouve la phase dynamique $\phi_n(t)$. Les éléments diagonaux de M donnent lieu à la phase géométrique $\chi_n(t)$.

Le résultat important est que, moyennant l'hypothèse (48), la probabilité de présence dans un état propre reste constante au cours du temps :

$$|c_n(t)| = |c_n(t_0) e^{-i\phi_n(t)} e^{-i\chi_n(t)}| = |c_n(t_0)| \quad (51)$$

Une telle évolution est dite adiabatique. Adaptons dès à présent ces calculs à nos moments magnétiques nucléaires.

Le Hamiltonien d'un spin en interaction avec un champ statique \mathbf{B}_s et un champ oscillant dans le temps \mathbf{B}_o tel décrit au chapitre 2 s'écrit :

$$\hat{H} = -\hbar\gamma (\mathbf{B}_s + \mathbf{B}_o) \cdot \hat{\mathbf{I}} \quad (52)$$

En se plaçant dans le référentiel tournant, on a pu s'affranchir des oscillations rapides du champ $\mathbf{A}_{o\perp}$. Cependant le Hamiltonien $\hat{H}'(t)$ d'un spin nucléaire dans ce référentiel dépend encore du temps à travers $\Omega_r(t)$ et $\dot{\phi}(t)$. Les valeurs propres instantanées de ce Hamiltonien sont :

$$E_+(t) = \frac{\Omega_g(t)}{2} = \frac{1}{2} \sqrt{\Omega^2(t) + (\delta_\omega - \dot{\phi}(t))^2}, \quad E_-(t) = -\frac{\Omega_g(t)}{2} = -\frac{1}{2} \sqrt{\Omega^2(t) + (\delta_\omega - \dot{\phi}(t))^2} \quad (53)$$

associé aux vecteurs propres non normés

$$|+, t\rangle = \begin{bmatrix} \Omega_g(t) + (\delta_\omega - \dot{\phi}(t)) \\ \Omega_r(t) \end{bmatrix}, \quad |-, t\rangle = \begin{bmatrix} -(\Omega_g(t) - (\delta_\omega - \dot{\phi}(t))) \\ \Omega_r(t) \end{bmatrix} \quad (54)$$

On peut alors déterminer la matrice de passage dans la base instantanée P , puis son inverse :

$$P = \begin{bmatrix} \Omega_g + (\delta_\omega - \dot{\phi}) & -(\Omega_g - (\delta_\omega - \dot{\phi})) \\ \Omega_r & \Omega_r \end{bmatrix}, \quad P^{-1} = \frac{1}{2\Omega_r\Omega_g} \begin{bmatrix} \Omega_r & \Omega_g - (\delta_\omega - \dot{\phi}) \\ -\Omega_r & \Omega_g + (\delta_\omega - \dot{\phi}) \end{bmatrix} \quad (55)$$

On en déduit la dérivée de P^{-1} :

$$\frac{d}{dt}P^{-1} = \frac{1}{2\Omega_r^2\Omega_g^2} \begin{bmatrix} -\Omega_r^2\dot{\Omega}_g & -\Omega_g^2\dot{\Omega}_r + [(\delta_\omega - \dot{\phi})\Omega_g\dot{\Omega}_r + (\delta_\omega - \dot{\phi})\Omega_r\dot{\Omega}_g + \Omega_r\Omega_g\ddot{\phi}] \\ \Omega_r^2\dot{\Omega}_g & -\Omega_g^2\dot{\Omega}_r - [(\delta_\omega - \dot{\phi})\Omega_g\dot{\Omega}_r + (\delta_\omega - \dot{\phi})\Omega_r\dot{\Omega}_g + \Omega_r\Omega_g\ddot{\phi}] \end{bmatrix} \quad (56)$$

On pose

$$X = \Omega_g^2\dot{\Omega}_r, \quad Y = (\delta_\omega - \dot{\phi})\Omega_g\dot{\Omega}_r + (\delta_\omega - \dot{\phi})\Omega_r\dot{\Omega}_g + \Omega_r\Omega_g\ddot{\phi}, \quad Z = \Omega_r^2\dot{\Omega}_g \quad (57)$$

La matrice M a l'origine de la phase de géométrie vaut alors :

$$M = \frac{dP^{-1}}{dt}P \quad (58)$$

$$= \frac{1}{2\Omega_r\Omega_g} \begin{bmatrix} -Z(\Omega_g + \delta_\omega - \dot{\phi}) + \Omega_r(-X + Y) & Z(\Omega_g - (\delta_\omega - \dot{\phi})) + \Omega_r(-X + Y) \\ Z(\Omega_g + \delta_\omega - \dot{\phi}) - \Omega_r(X + Y) & -Z(\Omega_g - (\delta_\omega - \dot{\phi})) - \Omega_r(X + Y) \end{bmatrix} \quad (59)$$

Pour que le système évolue adiabaticquement, on doit avoir d'après (48) :

$$|M_{+-}(t)M_{-+}(t)| \ll \frac{\left| \frac{\Omega_g(t)}{2} - \frac{(-\Omega_g(t))}{2} \right|^2}{4} \quad (60)$$

Or

$$M_{+-}M_{-+} = -\frac{((\delta_\omega - \dot{\phi})\dot{\Omega}_r + \Omega_r\ddot{\phi})^2}{4\Omega_g^4} \quad (61)$$

On obtient donc le critère d'adiabaticité :

$$\left| \frac{(\delta_\omega - \dot{\phi})\dot{\Omega}_r + \Omega_r\ddot{\phi}}{\Omega_g^3} \right|^2 \ll 1 \quad (62)$$

On peut écrire ce critère d'adiabaticité de manière plus souple, il devient alors en explicitant la fréquence de Rabi généralisée :

$$\left| \frac{(\dot{\Omega}_r(t)(\delta_\omega - \dot{\phi}(t)) + \Omega_r(t)\ddot{\phi}(t))}{(\Omega_r^2(t) + (\delta_\omega - \dot{\phi}(t))^2)^{\frac{3}{2}}} \right| < 1, \quad \forall t \quad (63)$$

Bibliographie

- [1] I. D. Abella, N. A. Kurnit, and S. R. Hartmann. Photon echoes. *Phys. Rev.*, 141(1) :391–406, Jan 1966.
- [2] Jérôme Ruggiero, Jean-Louis Le Gouët, Christoph Simon, and Thierry Chanelière. Why the two-pulse photon echo is not a good quantum memory protocol. *Phys. Rev. A*, 79 :053851, 2009.
- [3] G. Liu and B. Jacquier. *Spectroscopic properties of rare earths in optical materials*, volume 853 of *Materials Sciences*. Springer, 2005.
- [4] V. Crozatier, F. De Sèze, 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.
- [5] Yong-Nian Xu and W. Y. Ching. Electronic structure of yttrium aluminium garnet ($\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$). *Phys. Rev. B*, 59 :10530, 1999.
- [6] Ferdinand Euler and Jane A. Bruce. Oxygen coordinates of compounds with garnet structure. *Acta Cryst*, 19 :971, 1965.
- [7] A. Abragam and B. Bleaney. *Résonance paramagnétique électronique des ions de transition*. Bibliothèque des sciences et techniques nucléaires, 1970.
- [8] S. Geller and M. A. Gilleo. The crystal structure and ferrimagnetism of yttrium-iron garnet, $\text{Y}_3\text{Fe}_2(\text{FeO}_4)_3$. *J. Phys. Chem. Solids Pergamon Press*, 3 :30–36, 1957.
- [9] Michel Le Bellac. *Physique quantique*. EDP Sciences - CNRS Editions, 2007.
- [10] R. D. Shannon. Revised effective ionic radii and systematic studies of interatomic distances in halides and chalcogenides. *Acta Cryst*, A32 :751, 1976.
- [11] J. A. Koningstein. Crystal-field studies of trivalent thulium in yttrium aluminium garnet. *Theoret. chim. Acta (Berl.)*, 5 :327–335, 1966.
- [12] John B. Gruber, Marian E. Hills, Roger M. MacFarlane, Clyde A. Morrison, Gregory A. Turner, Gregory J. Quarles, Gregory J. Kintz, and Leon Esterowitz. Spectra and energy levels of $\text{Tm}^{3+}:\text{YAG}$. *Phys. Rev. B*, 40 :9464, 1989.
- [13] 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.
- [14] J. F. Dillon and L. R. Walker. Ferrimagnetic resonance in rare-earth doped yttrium iron garnet. ii. terbium substitution. *Phys. Rev.*, 124(5) :1401, 1961.
- [15] 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 :15 443, 2000.

- [16] J. F. Nye. *Physical properties of crystals*. Oxford University Press, 1960.
- [17] Anne Louchet. *Manipulation optique d'une cohérence de spin nucléaire dans l'ion thulium en matrice cristalline*. PhD thesis, Laboratoire Aimé Cotton, 2008.
- [18] 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 tm^{3+} : YAG under a magnetic field. *Phys. Rev. B*, 75 :035131, Jan 2007.
- [19] G. Armagan, A. M. Buoncristiani, and B. Di Bartolo. Excited state dynamic of thulium ions in yttrium aluminium garnets. *Opt. Mat.*, 1 :11–20, 1992.
- [20] 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 :241–253, 1996.
- [21] R. M. MacFarlane. Photon-echo measurement on the trivalent thulium ion. *Opt. Lett.*, 18 :1958–1960, 1993.
- [22] 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 a tm^{3+} : YAG crystal. *Phys. Rev. B*, 77 :195110, May 2008.
- [23] S. R. Hartmann. Photon, spin, and raman echoes. *IEEE J. Quantum Electron.*, 4 :802, 1968.
- [24] I. I. Rabi, J. R. Zacharias, S. Millman, and P. Kusch. A new method of measuring nuclear magnetic moment. *Phys. Rev.*, 53 :318, 1938.
- [25] I. I. Rabi, S. Millman, P. Kusch, and J. R. Zacharias. The molecular beam resonance method for measuring nuclear magnetic moments. the magnetic moment of ${}_3\text{Li}^6$, ${}_3\text{Li}^7$ and ${}_9\text{F}^{19}$. *Phys. Rev.*, 55 :526–535, 1939.
- [26] Felix Bloch. Nuclear induction. *Phys. Rev.*, 70 :460–474, 1946.
- [27] F. Bloch, W. W. Hansen, and M. Packard. The nuclear induction experiment. *Phys. Rev.*, 70 :474–485, 1946.
- [28] E. M. Purcell, H. C. Torrey, and R. V. Pound. Resonance absorption by nuclear magnetic moments in a solid. *Phys. Rev.*, 69 :37–38, 1946.
- [29] E. L. Hahn. Spin echoes. *Phys. Rev.*, 80 :580, 1950.
- [30] Keith Holliday, Mauro Croci, Eric Vauthey, and Urs P. Wild. Spectral hole burning and holography in an $\text{y}_2\text{si}_5\text{:pr}^{3+}$ crystal. *Phys. Rev. B*, 47 :14741–14752, Jun 1993.
- [31] 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 :R11825, Nov 1998.
- [32] Tosio Kato. On the adiabatic theorem of quantum mechanics. *J. Phys. Soc. Jpn.*, 5 :435–439, 1950.
- [33] F. Bloch and A. Siegert. Magnetic resonance for nonrotating fields. *Phys. Rev.*, 57 :522, 1940.
- [34] J. Winter. Spectroscopie hertzienne – étude de transitions faisant intervenir plusieurs quanta entre deux niveaux atomiques. *C. R. Acad. Sci.*, 241 :375, 1955.
- [35] J. Margerie and J. Brossel. Spectroscopie hertzienne – transitions à plusieurs quanta électronique. *C.R. Acad. Sci*, 241 :373, 1955.

- [36] A. Abragam. *Les principes du magnétisme nucléaire*. Presses Universitaires de France, 1961.
- [37] Michael Garwood and Lance DelaBarre. The return of the frequency sweep : Designing adiabatic pulses for contemporary nmr. *J. Magn. Reson.*, 153 :155–157, 2001.
- [38] Romain Lauro. *Protocoles adiabatiques pour le ralentissement et le stockage de la lumière dans un cristal de TmYAG*. PhD thesis, Laboratoire Aimé Cotton, 2010.
- [39] T.M. Hard. Laser wavelengh selection and output coupling by a grating. *Appl. Opt.*, 9 :1825, 1970.
- [40] Guillaume Gorju. *Analysespectrale : études théoriques et expérimentales de l'analyseur à photographie spectrale*. PhD thesis, Laboratoire Aimé Cotton, 2007.
- [41] R. W. P. Drever, J. L. Hall, F. V. Kowalsky, J. Hough, G. M. Ford, A. J. Munley, and H. Ward. Laser phase and frequency stabilisation using an optical resonator. *Applied Physics B : Lasers and Optics*, 31(2) :97, 1983.
- [42] L. Ménager, L. Cabaret, I. Lorgeré, and J.-L. Le Gouët. Diode laser extended cavity for broad-range fast ramping. *Opt. Lett.*, 25 :1246, 2000.
- [43] L. Levin. Mode-hop-free electro-optically tuned diode laser. *Opt. Lett.*, 27 :237, 2002.
- [44] Satoru Kabayashi. Magnetic hysteresis scaling in thulium : Implication of irreversibility-related scaling for soliton wall motion in a ising system. *J. Magn. Magn. Mater.*, 329 :84–87, 2013.
- [45] H.J. Mattaush J. Weizenecker, H. Winter and E. Dormann. ^{169}tm nuclear magnetic resonance and magnetic susceptibility of the ssingle ground state compound thulium dideutride. *J. Magn. Magn. Mater.*, 152 :183–190, 1996.
- [46] D.D. Davis and R.M. Bozorth. Magnetic properties of thulium metal. *Phys. Rev.*, 118 :1543, 1960.
- [47] E. Purcell N. Bloembergen and R. Pound. Relaxation effects in nuclear magnetic resonance absorption. *Phys. Rev.*, 73 :679, 1948.
- [48] R. McFarlane, W. Bennet, and W. Lamb. Single mode tuning dip in the power output of an he-ne optical maser. *Appl. Phys. Lett*, 2 :189, 1963.
- [49] A. Szabo. Observation of hole-burning and cross-relaxation effects in ruby. *Phys. Rev.*, B11 :4512, 1975.
- [50] R. Lauro, T. Chanelière, and J. L. Le Gouët. Adiabatic refocusing of nuclear sspin in $\text{tm}^{3+}:\text{yag}$. *Phys. Rev. B*, 83 :035123, 2011.
- [51] M.F. Pascual-Winter, R.-C. Tongning, R. Lauro, A. Louchet-Chauvet, T. Chanelière, and J.-L. L. Gouët. Adiabatic passage and spin locking in $\text{tm}^{3+}:\text{yag}$. *Phys. Rev B*, 86 :064301, 2012.
- [52] R.V. Pound. Nuclear spin relaxation times in single crystals of lif. *Phys. Rev*, 81 :156, 1951.
- [53] E.M. Purcell and R.V. Pound. A nuclear spin system at negative temperature. *Phys. Rev*, 81 :279, 1951.
- [54] A. Abragam and W.G. Proctor. Spin temperature. *Phys. Rev*, 109 :1441, 1958.
- [55] A.G. Redfield. Nuclear magnetic resonance saturation and rotary saturation in solids. *Phys. Rev*, 98 :1787, 1955.

- [56] G. Massimo Palma, Kalle-Antti Suominen, and Artur K. Ekert. Quantum computers and dissipation. *Proc. Roy. Soc. London*, 452 :567, 1996.
- [57] Gopalakrishnan Balasubramanian, Philipp Neumann, Daniel Twitchen, Matthew Markham, Roman Kolesov, Norikazu Mizuochi, Junichi Isoya, Jocelyn Achard, Johannes Beck, Julia Tissler, Vincent Jacques, Philipp R. Hemmer, Fedor Jelezko, and Jörg Wrachtrup. Ultralong spin coherence time in isotopically engineered diamond. *Nat. Mater.*, 8 :383–387, 2009.
- [58] C. A. Ryan, J. S. Hodges, and D. G. Cory. Robust decoupling techniques to extend quantum coherence in diamond. *Phys. Rev. Lett.*, 105 :200402, 2010.
- [59] B. Naydenov, F. Dolde, L. T. Hall, C. Shin, H. Fedder, L. C. L. Hollenberg, F. Jelezko, and J. Wrachtrup. Dynamical decoupling of a single-electron spin at room temperature. *Phys. Rev. B*, 83 :081201, 2011.
- [60] D. J. Szwer, S. C. Webster, A. M. Steane, and D. M. Lucas. Keeping a single qubit alive by experiment dynamic decoupling. *J. Phys. B : At., Mol. Opt. Phys.*, 44 :025501, 2011.
- [61] Shi Yu, Peng Xu, Xiaodong He, Min Liu, Jin Wang, and Mingsheng Zhan. Suppressing phase decoherence of a single atom qubit with cpmg sequence. *QuantPhys1306.5423*, 2013.
- [62] Herzog and Hahn. Transient nuclear induction and double nuclear resonance in solids. *Phys. Rev*, 103 :148, 1956.
- [63] E. Fraval, M.J. Sellars, and J.J. Longdell. Method of extend hyperfine coherence times in $\text{pr}^{3+} : \text{y}_2\text{sio}_5$. *Phys. Rev. Lett.*, 92 :077601, 2004.
- [64] M. Lovrić, P. Glasenapp, D. Suter, B. Tumino, A. Ferrier, P. Goldner, M. Sabooni, L. Rippe, and S. Kröll. Hyperfine characterization and spin coherence lifetime extension in $\text{pr}^{3+} : \text{la}_2(\text{wo}_4)_3$. *Phys. Rev.*, 84 :104417, 2011.
- [65] Georg Heinze, Christian Hubrich, and Thomas Halfmann. Stopped light and image storage by electromagnetically induced transparency up to the regime of one minute. *Phys. Rev. Lett.*, 111 :033601, 2013.
- [66] M.F. Pascual-Winter, R.-C. Tongning, T. Chanelière, and J.-L. L. Gouët. Spin coherence lifetime extension in $\text{tm}^{3+} : \text{yag}$ through dynamical decoupling. *Phys. Rev B*, 86 :184301, 2012.
- [67] V. Damon, M. Bonarota, A. Louchet-Chauvet, T. Chanelière, and J.-L. L. Gouët. Revival of silenced echo and quantum memory for light. *New J. Phys*, 13 :093031, 2011.
- [68] M. Bonarota. *Optimisation de la programmation d'un cristal dopé aux ions de terres rares, opérant comme processeur analogique d'analyse spectrale RF, ou de stockage d'information quantique*. PhD thesis, Laboratoire Aimé Cotton, 2012.
- [69] D.L. McAuslan, J. G. Bartholomew, M. J. Sellars, and J. J. Longdell. Reducing decoherence in optical and spin transition in rare-earth-metal-ion doped materials. *Phys. Rev A*, 85 :032339, 2012.

