HAL
open science

Vers l'enregistrement d'un signal quantique dans des ions de terre rare en matrice cristalline

Frédéric de Seze

To cite this version:

Frédéric de Seze. Vers l'enregistrement d'un signal quantique dans des ions de terre rare en matrice cristalline. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Paris Sud - Paris XI, 2005. Français. NNT : . tel-00011966

HAL Id: tel-00011966

https://theses.hal.science/tel-00011966v1

Submitted on 16 Mar 2006

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.

UNIVERSITÉ DE PARIS-SUD
U.F.R. SCIENTIFIQUE D'ORSAY

THESE

présentée pour obtenir

Le GRADE de DOCTEUR EN SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ PARIS XI ORSAY

par

Frédéric de Seze

Sujet :

Vers l'enregistrement d'un signal quantique dans des ions de terre rare en matrice cristalline

Soutenue le vendredi 8 juillet 2005 devant la commission d'examen composée de :

Mr Daniel Bloch (Rapporteur)

Mr Philippe Boucaud (Examinateur)

Mr Claude Fabre (Président)

Mr Jean-Louis Le Gouët (Directeur de thèse)

Mme Fabienne Pellé (Rapporteur)

A Constantin Georgoulis,

avec toute mon amitié

Un grand merci…

Il est d'usage de commencer un manuscrit de thèse en remerciant les différentes personnes qui ont accompagné le doctorant tout au long de ce chemin de trois ans. J'ai eu moi-même la chance de croiser de très nombreuses personnes durant cette période, dont chacune me fut, à sa façon, d'une très grande aide.

Les remerciements sont un paragraphe d'autant plus important que c'est en général le seul qui est lu par tous ces gens à qui l'on offre fièrement notre thèse, dont le titre leur semble écrit dans une langue particulièrement étrangère. Merci à eux de me rappeler au quotidien qu'il existe bien d'autres langages que celui des mathématiques.

Au laboratoire …

Je remercie tout particulièrement mon Directeur de Thèse, Jean-Louis Le Gouët, pour son enthousiasme et la passion contagieuse qu'il met dans tout ce qu'il fait. Je le remercie également pour sa compréhension et sa patience à mon égard. J'ai beaucoup appris à son contact, qui fut très enrichissant, et je ne saurais trop le remercier d'avoir su me parler et me remotiver dans les moments difficiles. Je lui souhaite une très bonne continuation sur cette longue route.

Je suis ravi d'avoir compté Ivan Lorgeré dans le groupe dans lequel j'ai effectué ma thèse. Sa bonne humeur quotidienne fut un vrai rayon de soleil au cours de ces années. Merci aussi à Fabien Bretenaker pour ses sourires, ses nombreux conseils scientifiques et les apéros du mardi sur sa terrasse ensoleillée.

J'ai eu la chance d'avoir auprès de moi un grand frère de manip, qui m'a pris en charge lorsque j'arrivais au labo comme jeune stagiaire. Merci à Vincent Lavielle pour ses doigts de fée, son joyeux caractère, nos longues discussions sur la science et sur le reste, et pour ses bouquins sur les Ovnis que je vais enfin avoir le temps d'ouvrir. Je souhaite aussi une très bonne continuation aux p'tits jeunes, Vincent Crozatier, Guillaume et Anne, et je les remercie pour le bol d'air qu'ils apportent et pour leur sourire au quotidien. J'ai également une pensée particulière pour tous les autres doctorants du labo, en particulier pour mes contemporains Aurélie et Nassim. Bon courage et bonne chance à eux pour la suite.

Je remercie aussi toutes les équipes techniques et administratives du laboratoire. Merci en particulier à Amanda, à Patrice Leroy et à Henry Pézard pour leur gentillesse, leur disponibilité et leur très grande compétence.

Merci aussi aux membres des différentes équipes avec lesquelles nous avons collaboré au cours de cette thèse, en particulier à Olivier Guillot-Noël et à Philippe Goldner, pour ces moments partagés.

Je remercie enfin les différents membres de mon jury : Daniel Bloch et Fabienne Pellé qui ont accepté la lourde tâche d'être rapporteur, ainsi que Claude Fabre et Philippe Boucaud, pour leur disponibilité et l'intérêt qu'ils ont bien voulu porter à ce travail de thèse.

… en dehors …

J'ai eu l'occasion d'effectuer au cours de ces trois années de thèse un monitorat d'initiation à l'enseignement supérieur à l'IUT d'Orsay. Cette expérience fut très sympathique et enrichissante, et a confirmé ma passion de toujours pour l'enseignement. Je remercie très vivement François Périnet et toute l'équipe d'optique de l'IUT, pour leur accueil chaleureux et enthousiaste. Merci en particulier à ma tutrice, Mireille Gadenne, pour la liberté totale qu'elle m'a laissé, sa confiance, ses conseils avisés, sa désorganisation notoire, son humour et son amitié qui m'ont donné la sensation de me sentir pleinement chez moi à l'IUT.

Un monitorat se couple avec des stages d'initiation à l'enseignement supérieur proposés par le CIES. Merci pour tous ces moments instructifs, et notamment aux moniteurs et aux encadrants des stages théâtre Pwettt et Sharkspalace, qui ont contribué à faire naître ma nouvelle passion pour le théâtre. Merci aussi à Nouari et Alain, les grands gourous du CIES, pour leur présence à la fois instructive et très sympathique, et leur légendaire bonne humeur.

Merci également à tous les membres de la Ludi-Idf, pour cette année partagée dans la joie et la franche rigolade. Merci en particulier à Fayçal, Abass, Marie, Fafa, Charlotte, Lucie, Romain, Yves, Ingrid, Manu, Nico, Nolwen, Clément, Julie, Violaine, Etienne, Guillaume, qui sont les personnes que j'ai eu le plus le temps de rencontrer cette année. Merci aussi à nos chers profs Laurent, Pacal, Cathy, JC et Karine. Après tout ça, parler en public ne sera plus jamais pareil, même en tant que prof.

Un très grand merci à mon fidéle ami Eric Collignon, qui m'accompagne avec joie, enthousiasme et confiance depuis de nombreuses années. Sa présence, son écoute, ses conseils et son sourire à la vie sont un joyau très précieux pour moi sur mon chemin.

Je remercie aussi la famille de Besmaux, si loin mais très proche, pour sa bonne humeur qui fait toujours du bien au moral. Merci à Lucie, Fany, John, Guillaume, Manu, Christiane, Guy, Fabrice, Joël … et tous les autres.

Enfin, merci très profondément à ma famille, à mes parents géniaux qui m'ont toujours soutenu malgré mes nombreuses frasques, et à mes frères et sœurs adorés Bastien, Maïlys et Marine.

… et à la maison.

J'ai eu la très grande chance d'habiter à la Fondation Hellénique de la Cité Universitaire au cours de ces trois années de thèse. J'ai eu l'occasion d'y croiser de très nombreuses personnes, de tous les pays et de toutes les cultures. Je tiens à toutes les remercier de ce qu'elles m'ont apporté, de connaissances et de rires, de soirées sans fin et de bouteilles de vin, de chansons, d'apprentissages, et tout simplement d'échanges. Les citer toutes ici serait impossible, mais je garde une place pour chacun d'entre eux dans un coin de ma tête et de mon cœur.

Je remercie particulièrement mes potes francophones, Alexis et Benoît, pour toutes ces soirées chanson française et « Jean - Luc Pouteau ». Merci aussi à tout le groupe Diaspora, Johan, Hugo, Anastassia, Maddalena, Lore, Melina, pour cette année géniale passée ensemble et les nombreuses virées Chez Georges.

Merci à tous les amis que j'ai eu l'occasion de côtoyer pendant ces années, pour leur présence, leur accueil chaleureux et leur sourire quotidien. Sans pouvoir tous les citer, j'ai une pensée particulière pour Anestis, Rallou, Fabio, les Ioannis et les Giorgos, Vassilis, Kostas, Dyonisis, Pagona, Eleni, Yacine, Giorgia, Ileana, Danai, Anna, Sofia, Ismini, Regina, Angeliki, Alkis, Gina, Lida et Iota, Natassa, Liza, sans oublier Jean-Claude, l'ineffable Mme Prat et Choupette.

Enfin, un très grand merci à Mme Maria Gravari-Barbas pour sa gentillesse, son sourire, ses éclats de rire et son hospitalité bienveillante. Et un merci qui vient du fond du cœur pour Mr Constantin Georgoulis, qui est un homme formidable. Le cœur sur la main et la chanson paillarde sur la langue. Cette thèse lui est dédiée, avec toute mon amitié.

« A poil là-dedans »

Eddy Mitchell,

Le bonheur est dans le pré

« Ressuciter, c'est cool »

Robert H. Ziegler,

Philosophe allemand contemporain

« Puisqu'on ne peut échapper au Présent,

pourquoi ne pas l'accueillir, s'en faire un ami ? »

Eckhart Tolle

Table des matières

1 Introduction 1

2 Ions de terre rare en matrice cristalline 9
2.1 Présentation générale 10
2.2 Propriétés physico-chimiques des ions de terre rare 11
2.3 Niveaux d'énergie des ions en matrice cristalline 12
2.4 Elargissement homogène et inhomogène 21
2.5 Choix du matériau et de la matrice 26
2.6 L'ion Tm^{3+} :YAG 28

3 L'ion Tm^{3+} :YAG en champ magnétique 33
3.1 Introduction 34
3.2 Conséquences de la symétrie D_2 des sites de l'Yttrium 36
3.3 Effet de l'orientation du champ magnétique appliqué 42
3.4 Conditions expérimentales 53
3.5 Résultats expérimentaux 59

4 Préparation du système à trois niveaux 71
4.1 Introduction 72
4.2 Conséquences de l'élargissement inhomogène 73
4.3 Pompage optique entre sous-niveaux hyperfins 74
4.4 Pompage optique vers le niveau métastable 77
4.5 Manipulation cohérente 80

5 Excitation cohérente optique « Sécante Hyperbolique Complexe » 83
5.1 Introduction 84
5.2 Excitation par une impulsion CHS de durée infinie 84
5.3 Limitations et optimisation de l'efficacité du processus 92
5.4 Résultats expérimentaux de transfert de population 103
5.5 Conclusion 107

Conclusion 109

Annexe 1 : Equations de Bloch et représentation du vecteur de Bloch 113
A_1.1 Atome à deux niveaux soumis à un champ électrique 114
A_1.2 Equations de la matrice densité 115
A_1.3 Représentation du vecteur de Bloch 117

Annexe 2 : Transfert de population dans les systèmes à deux niveaux 121
A_2.1 Introduction 122
A_2.2 Excitation incohérente d'un système à deux niveaux 122

A_2.3 Oscillations de Rabi 124
A_2.4 Passage adiabatique rapide 126

Annexe 3 **133**
“ Chirped pulse generation of a narrow absorption line in a Tm^{3+}:YAG crystal”

Annexe 4 **145**
“Coherent driving of Tm^{3+}:YAG ions using a Complex Hyperbolic Secant optical field”

CHAPITRE 1

INTRODUCTION

Ce mémoire présente des travaux théoriques et expérimentaux destinés à ouvrir la voie à l'enregistrement d'un signal quantique dans des ions de terre rare insérés en matrice cristalline. Les mémoires quantiques sont en effet un élément essentiel de tout processus de traitement quantique de l'information, que ce soit dans le domaine du calcul quantique en réseau [1], dans celui de la cryptographie quantique [2], ou plus généralement dans le domaine des communications quantiques à longue distance, comme la téléportation quantique [3].

Les photons sont les meilleurs vecteurs pour le transport de l'information. Il sont à la fois rapides et n'interagissent pas entre eux. Ils sont ainsi utilisés dans tous les processus de communication quantique à longue distance. Ils sont par contre très difficiles à stocker et à localiser. Les systèmes atomiques sont beaucoup plus appropriés pour réaliser des mémoires où enregistrer l'information. De plus, du fait des fortes interactions entre les atomes et du développement des lasers qui permet la manipulation cohérente de leur état quantique, ils représentent les meilleurs systèmes pour réaliser le traitement des données enregistrées (donc les opérations de calcul quantique). Le meilleur schéma de processeur quantique consiste donc en un réseau dans lequel les nœuds sont constitués par des systèmes matériels, dans lesquels on va enregistrer et traiter l'information. La communication entre les différents nœuds du réseau est réalisée en utilisant des photons comme vecteurs de l'information. Les transitions Raman représentent un mécanisme intéressant pour réaliser le couplage lumière-matière nécessité par ce dispositif, car elles sont insensibles à la décohérence par émission spontanée. La lumière et ses propriétés quantiques peuvent donc être enregistrées et traitées dans les cohérences atomiques Raman aussi longtemps que la durée de vie de ces cohérences le permet.

La première situation envisagée consiste à stocker les propriétés quantiques de la lumière dans une mémoire quantique constituée par un système individuel. Des techniques permettant le transfert cohérent de l'état quantique de la lumière à un atome isolé ont été développées [1]. Des expériences démontrant la possibilité d'un tel transfert entre un photon unique et un système individuel ont été réalisées, notamment dans le groupe de S. Haroche sur un atome de Rydberg en cavité [4], dans le groupe de C. Monroe sur un ion piégé [5-6], et dans les groupes de G. Rempe et H. J. Kimble sur un atome neutre en cavité [7-8]. Ce type de

mémoires nécessite néanmoins d'utiliser des cavités en régime de couplage fort, ce qui peut être évité par l'usage d'assemblées d'atomes en lieu et place de particules uniques.

La deuxième situation envisagée consiste donc à réaliser des mémoires quantiques constituées par un ensemble *macroscopique* d'atomes. Différents schémas d'interaction lumière-matière ont été proposés. Certains d'entre eux visent à stocker des *paquets de photons individuels* et s'appuient sur le principe de la transparence électromagnétiquement induite [9]. Ce phénomène, qui survient dans les systèmes atomiques à trois niveaux (**Figure 1.1**), a notamment donné lieu aux fameuses expériences de ralentissement de la lumière [10]. Un mécanisme d'interaction a été proposé par R. Grobe et al. [11] pour stocker l'information dans la modulation spatiale d'excitation du milieu matériel. Une autre proposition a été faite par M. D. Lukin et al. [12-16] pour stopper complètement l'impulsion lumineuse dans le milieu atomique. Il s'agit de créer une excitation couplée présentant une composante photonique et une composante atomique, appelée *polariton noir*. Lorsqu'on coupe le champ électrique de contrôle, la composante photonique s'annule et l'impulsion lumineuse est alors stockée dans les cohérences Raman de l'assemblée d'atomes. Des premières réalisations expérimentales ont été effectuées dans des gaz d'atomes froids de sodium [17] et dans des vapeurs atomiques de Rubidium [18], dans lesquelles des impulsions lumineuses classiques ont été stockées pendant des temps de l'ordre de quelques centaines de microsecondes.

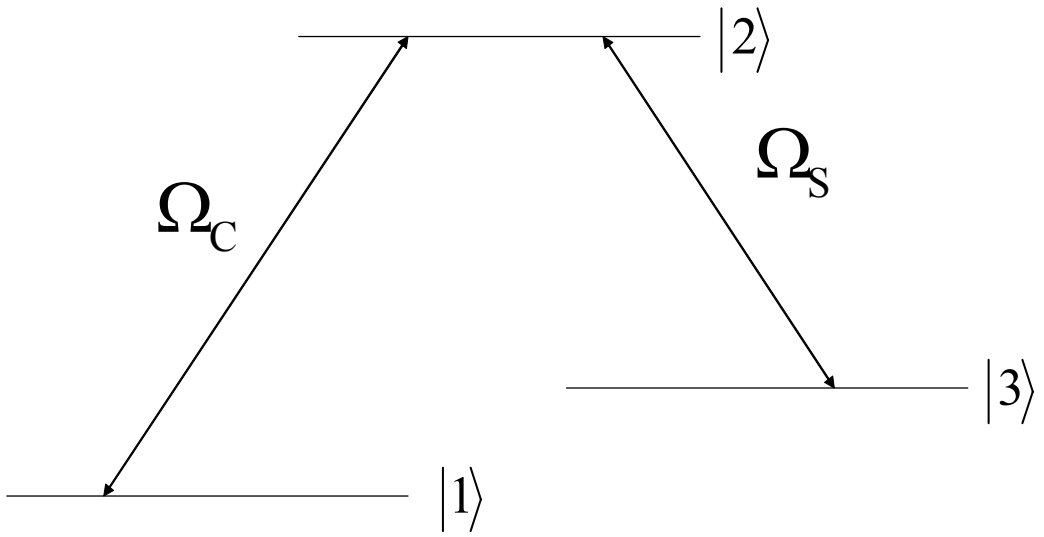

Figure 1.1 : Système à trois niveaux en Λ. Ω_C et Ω_S représentent les fréquences de Rabi respectivement associées aux transitions $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$ (champ de contrôle, classique) et $|3\rangle \rightarrow |2\rangle$ (champ signal, classique ou quantique).

D'autres schémas d'interaction ont été proposés dans le but d'observer des effets quantiques dans un ensemble macroscopique d'atomes. Ils mettent également en jeu des

systèmes atomiques à trois niveaux et visent à stocker des propriétés quantiques d'un *champ électrique continu* dans les cohérences atomiques Raman. Ces schémas d'excitation collective s'appuient sur les phénomènes de la rotation de Faraday induite par excitation non résonante [19-20] ou de diffusion Raman spontanée [25]. Des expériences ont été réalisées dans des vapeurs atomiques ou des gaz d'atomes froids, notamment par les groupes de E. S. Polzik [21-23] et de H. J. Kimble [24-25]. Elles ont démontré la possibilité de stockage de propriétés quantiques de la lumière dans un échantillon macroscopique, ainsi que la possibilité d'intrication *par la lumière* de variables collectives de différents ensembles macroscopiques d'atomes.

Les ions de terre rare en matrice cristalline apparaissent également comme de bons candidats pour réaliser de telles opérations démontrant des effets quantiques sur des ensembles macroscopiques d'ions. Ils offrent des propriétés similaires aux vapeurs atomiques avec l'avantage de ne pas présenter de phénomène de diffusion, de la même manière qu'un nuage d'atomes froids. La mise en œuvre d'expériences avec des ions de terre rare est néanmoins plus simple car elle ne nécessite pas de montage complexe pour ralentir optiquement les atomes. Les niveaux hyperfins des ions de terre rare sont utilisés pour réaliser des opérations de spectroscopie de haute résolution, comme le creusement de trou spectral (*Spectral Hole Burning*) [26] et les échos de photons [27]. La durée de vie de ces niveaux hyperfins peut être extrêmement longue (de l'ordre de plusieurs heures à $T < 4\ \mathrm{K}$). A ces températures, la durée de vie des cohérences optiques peut atteindre plusieurs millisecondes et celle des cohérences hyperfines plusieurs dizaines de millisecondes [28]. Ces très longues durées de vie de cohérence ouvrent la voie à un façonnage et à un contrôle des impulsions excitatrices par l'électronique rapide, avec l'excellente stabilité et l'excellente précision qui lui sont associées. Ces matériaux présentent par contre de faibles densités optiques, ce qui nécessite de travailler à résonance

Les premières expériences réalisées en ce sens dans le groupe de M. S. Shahriar et P. R. Hemmer ont permis de mettre en évidence dans un échantillon de $Pr^{3+}:Y_2SiO_5$ les phénomènes de transparence électromagnétiquement induite [29], de conjugaison de phase [30], de réduction de la vitesse de la lumière jusqu'à 45 m/s et de stockage d'impulsion lumineuse classique [31].

Pour réaliser des mémoires quantiques dans ces matériaux, le fait de devoir travailler à résonance implique de devoir contrôler à la fois les cohérences optiques et les cohérences Raman avec précision. Pour contrôler effectivement les cohérences atomiques, il faut disposer d'un laser plus fin spectralement que la raie d'absorption d'un ion (typiquement de l'ordre de

quelques dizaines de kHz à $T < 4K$). La longueur d'onde d'absorption du Praséodyme, autour de 606 nm, se situe dans un domaine de longueur d'onde accessible uniquement par des lasers à colorants. Ces lasers sont difficiles à stabiliser en dessous du MHz sur des durées de l'ordre de quelques milisecondes à cause du bruit à haute fréquence généré par le jet de colorant. Seuls très peu de lasers à colorant dans le monde offrent un temps de cohérence et un jitter sub-kHz [32-34], nécessaires pour tirer parti des durées de vie de cohérence de l'ordre de la centaine de µs ou de la ms offertes par les ions. Une solution envisageable serait de se tourner vers d'autres sources lumineuses, du type Oscillateur Paramétrique Optique. Cette direction est actuellement en cours d'investigation au Laboratoire Aimé Cotton, dans le groupe *Optique et matériaux pour le traitement de l'information* où j'ai réalisé mon travail de thèse. Une autre voie, qui est celle que nous avons suivie et que nous présentons dans ce manuscrit, consiste à se tourner vers des ions de terre rare dont la longueur d'onde d'absorption est compatible avec un laser plus facilement stabilisable.

Parmi les ions de terre rare, ceux qui présentent un nombre pair d'électrons (appelés ions *non-Kramers* car ne présentant pas la dégénérescence de Kramers) présentent les plus grandes durées de vie de cohérence [35]. On ajoute la condition que l'on cherche des ions possédant un écart énergétique entre les sous-niveaux hyperfins de l'ordre du MHz. Cet écart doit en effet être à la fois grand devant la largeur homogène des niveaux et suffisamment petit pour être balayé de façon rapide et reproductible par un laser stabilisé. Seuls restent alors à notre disposition les ions Europium Eu^{3+}, Praséodyme Pr^{3+} et Thulium Tm^{3+}. Les ions Europium, comme les ions Praséodyme, ont une longueur d'onde d'absorption qui tombe dans le domaine des lasers à colorant. Dans ce travail de thèse, on s'est donc concentré sur l'ion Thulium Tm^{3+}. Cet ion absorbe à 793 nm, qui est une longueur d'onde facilement accessible par une diode laser. Un laser stabilisé a été réalisé dans le groupe *Optique et matériaux pour le traitement de l'information*. Ce laser offre une largeur de l'ordre de 250 Hz sur un intervalle de temps d'une dizaine de ms [36].

L'ion Thulium Tm^{3+} inséré dans une matrice $Y_3Al_50_{12}$ (YAG) ne présente pas de structure hyperfine en l'absence de champ magnétique, contrairement aux ions Europium et aux ions Praséodyme. Il est donc nécessaire d'appliquer un champ magnétique extérieur pour créer le système à trois niveaux requis. Le seul isotope naturel du Thulium, ^{169}Tm, possède un spin nucléaire $I = 1/2$. L'application d'un champ magnétique extérieur lève la dégénérescence de spin nucléaire et sépare les niveaux électroniques en deux composantes hyperfines. A priori, ceci ne suffit pas pour construire un système à trois niveaux. En effet, une transition optique ne

peut pas renverser le spin nucléaire. Les deux sous niveaux de spin nucléaire $M_I = \pm 1/2$ de l'état fondamental $^3H_6$ ne peuvent donc pas être connectés par une transition optique au *même* sous niveau nucléaire de l'état excité $^3H_4$. Néanmoins, il a été montré que l'effet couplé de l'interaction Zeeman électronique et de l'interaction hyperfine mélange les états de spin nucléaire, ce qui autorise les basculement de spin lors d'une transition optique et permet de construire le système à trois niveaux désiré [37]. On présentera dans ce mémoire les idées théoriques sur lesquelles repose la construction de ce système dans l'ion Tm^{3+}:YAG en champ magnétique. On exposera également les résultats expérimentaux de spectroscopie qui permettent d'avoir une première idée sur le système à trois niveaux effectivement réalisé.

A l'aide du laser stabilisé à 793 nm construit au laboratoire, on a pu réaliser des opérations de manipulation cohérente de l'état quantique des ions Thulium sur des durées de quelques dizaines de µs en n'étant limités que par la durée de vie de cohérence de nos échantillons. La première technique de manipulation cohérente consiste à réaliser un transfert efficace de tous les ions appartenant à un intervalle spectral donné d'un niveau à un autre du système. Dans ce but, nous avons réalisé une étude théorique et expérimentale de l'excitation *Sécante Hyperbolique Complexe*, qui est une variante intéressante des processus de passage adiabatique rapide. Elle peut être utile dans le cadre des manipulations de q-bits associées au calcul quantique et peut également être employée pour préparer et manipuler les systèmes à trois niveaux dans la perspective de la réalisation de mémoires quantiques.

Ce mémoire est organisé de la façon suivante : le Chapitre 2 présente de façon détaillée les ions de terre rare insérés dans une matrice cristalline, et en particulier l'ion Tm^{3+}:YAG sur lequel on a choisi de travailler. Le Chapitre 3 expose la possibilité d'y construire un système à trois niveaux efficace en appliquant un champ magnétique extérieur. On y présentera également les premiers résultats expérimentaux de spectroscopie de l'ion Tm^{3+}:YAG en champ magnétique. Le Chapitre 4 détaille les techniques de préparation du système à trois niveaux, dans le but d'éliminer l'effet de l'élargissement inhomogène aux deux fréquences de transition sélectionnées. Le Chapitre 5 présente l'étude théorique et expérimentale de la procédure d'excitation *Sécante Hyperbolique Complexe*. L'optimisation et les limitations de l'efficacité de cette technique de transfert dans des conditions d'expérience réelle y seront discutées.

On trouvera en Annexe 1 un rappel du formalisme de Bloch permettant de décrire de façon simple et intuitive les processus d'interaction matière-rayonnement dans l'approche

semi-classique. L'Annexe 2 est consacrée à la présentation générale des techniques de transfert de population dans les systèmes à deux niveaux. On y détaille en particulier le principe du passage adiabatique rapide. Enfin, on trouvera les principales publications associées à ces travaux en Annexe 3 et 4.

Références

[1] J. I. Cirac, P. Zoller, H. J. Kimble, H. Mabuchi, Phys. Rev. Lett. **78**, 3221 (1997)

[2] H. J. Briegel, W. Dür, J. I. Cirac, P. Zoller, Phys. Rev. Lett. **81**, 5932 (1998)

[3] L. M. Duan, J. I. Cirac, P. Zoller, E. S. Polzik, Phys. Rev. Lett. **85**, 5643 (2000)

[4] X. Maître, E. Hagley, G. Nogues, C. Wunderlich, P. Goy, M. Brune, J.M. Raimond, S. Haroche, Phys. Rev. Lett. **79**, 769 (1997)

[5] D. L. Moehring, M. J. Madsen, B. B. Blinov, C. Monroe, Phys. Rev. Lett. **93**, 90410 (2004)

[6] C. Monroe, Nature **428**, 153 (2004)

[7] A. Kuhn, M. Hennrich, G. Rempe, Phys. Rev. Lett. **89**, 67901 (2002)

[8] J. McKeer, A. Boca, A. D. Boozer, R. Miller, J. R. Buck, A. Kuzmich, H. J. Kimble, Science 26 mars 2004, pages 1992-1994

[9] S. E. Harris, Phys. Today **50**, 36 (1997)

[10] L. V. Hau, S. E. Harris, Z. Dutton, C. H. Behroozi Nature **397**, 594 (1999)

[11] J. R. Csesznegi, R. Grobe, Phys. Rev. Lett. **79**, 3162, (1997)

[12] M. D. Lukin, S. F. Yelin, M. Fleischhauer, Phys. Rev. Lett. **84**, 4232, (2000)

[13] M. Fleischauer, M. D. Lukin, Phys. Rev. Lett. **84**, 5094, (2000)

[14] M. D. Lukin, A. Imamoglu, Nature **413**, 273 (2001)

[15] M. Fleischhauer, M. D. Lukin, Phys. Rev. **A** 65, 22314 (2002)

[16] M. D. Lukin, Rev. Mod. Phys. **75**, 457 (2003)

[17] C. Liu, Z. Dutton, C. H. Behroozi, L. V. Hau, Nature **409**, 490 (2001)

[18] D. F. Philips, A. Fleischauer, A. Mair, R. L. Walsworth, M. D. Lukin, Phys. Rev. Lett **86**, 783 (2001)

[19] A. Kuzmich, K. Mølmer, E. S. Polzik, Phys. Rev. Lett. **79**, 4782 (1997)

[20] A. Kuzmich, E. S. Polzik, Phys. Rev. Lett. **85**, 5639 (2000)

[21] J. Hald, J. L. Sorensen, C. Schori, E. S. Polzik, Phys. Rev. Lett. **83**, 1319 (1999)

[22] C. Schori, B. Julsgaard, J. L. Sørensen, E. S. Polzik, Phys. Rev. Lett. **89**, 57903 (2002)

[23] B. Juulsgaard, A. Kozhekin, E. S. Polzik, Nature **413**, 400 (2001)

[24] A. Kuzmich, L. Mandel, N. P. Bigelow, Phys. Rev. Lett. **85**, 1594 (2000)

[25] A. Kuzmich, W. P. Bowen, A. D. Boozer, A. Boca, , C. W. Chou, L. M. Duan, H. J. Kimble, Nature **423**, 731 (2003)

[26] Y. Bay, T. Mossberg, Appl. Phys. Lett. **45**, 1269 (1984)

[27] R. M. Macfarlane, Opt. Lett. **18**, 1958 (1993)

[28] E. Fraval, M. J. Sellars, J. J. Longdell, Phys. Rev. Lett. **92**, 77601 (2004)

[29] B. S. Ham, P. R. Hemmer, M. S. Shahriar, Optics. Comm **144**, 227 (1997)

[30] B. S. Ham, P. R. Hemmer, M. S. Shahriar, Phys. Rev. A **59**, R2583 (1999)

[31] A. V. Turukhin, V. S. Sudarshanam, M. S. Sharhiar, J. A. Musser, B. S. Ham, P. R. Hemmer, Phys. Rev. Lett. **88**, 23602 (2002)

[32] M.Mitsunaga, N. Uesugi, K. Sugiyama, Opt. Lett. **18**, 1256 (1993)

[33] M. J. Sellars, R. S. Meltzer, P. T. H. Fisk, N. B. Manson, J. Opt. Soc. Am B **11**, 1468 (1994)

[34] R. Klieber, A. Michalowski, R. Neuhaus, D. Suter, Phys. Rev. B **67**, 184103 (2003)

[35] R. M. Macfarlane, J. Lumin **100**, 1 (2002)

[36] V. Crozatier, F. de Seze, L. Haals, F. Bretenaker, I. Lorgeré, J.-L. Le Gouët, Opt. Commun., **241**, 203 (2004)

[37] O. Guillot-Noël, Ph. Goldner, E. Antic-Fidancev, J.-L. Le Gouët, Phys. Rev. B **71**, 174409 (2005)

CHAPITRE 2

IONS DE TERRE RARE EN MATRICE CRISTALLINE

Nous présentons dans ce chapitre les principales caractéristiques des ions de terre rare insérés en matrice cristalline. Après avoir brièvement discuté des propriétés physico-chimiques de ces ions, nous détaillons les différentes interactions conduisant aux levées de dégénérescence successives des niveaux d'énergie, depuis l'ion libre jusqu'à l'ion inséré dans un solide. Nous présentons ensuite les causes d'élargissement homogène et inhomogène des raies associées aux transitions entre ces niveaux d'énergie. Nous discutons alors des choix d'ions et de matrices pertinents pour réaliser des opérations de stockage et de traitement de l'information. Nous présenterons en particulier les propriétés de l'ion Thulium inséré dans un cristal de YAG, sur lequel nous avons réalisés les travaux présentés dans ce manuscrit.

2.1 Présentation générale

Les ions de terre rare, ou *lanthanides,* représentent les 13 éléments qui suivent le lanthane dans la classification périodique des éléments. Ils ont été initialement découverts en très petite quantité dans des mélanges d'oxyde, ce qui leur a valu l'appellation de *terres rares*. Cette appellation est en réalité injustifiée car ils présentent une abondance naturelle comparable à celle de nombreux autres éléments tels l'iode, le mercure ou le cadmium [1]. Ces éléments ont longtemps fasciné les spectroscopistes par la finesse de leurs raies spectrales. Au milieu des années 1960, les meilleurs spectromètres étaient incapables de les résoudre et il a fallu attendre le début des années 1970 et le développement des lasers accordables en fréquence pour pouvoir mesurer les raies de ces éléments élargies de façon inhomogène [2]. Puis l'apparition de techniques de spectroscopie de haute résolution, comme le creusement de trou spectral (spectral hole burning) ou les échos de photons, ont permis d'atteindre et de mesurer des raies élargies de façon homogène de l'ordre de quelques kHz ou de quelques centaines de Hz à basse température [3]. Ces raies fines correspondent à des durées de vie élevées des cohérences atomiques. C'est pourquoi on trouve les ions de terre rare dans des domaines d'application aussi divers que le stockage d'information dans le domaine temporel [4] et fréquentiel [5], le contrôle de faisceau optique par filtrage spatio-temporel [6-7], l'analyse spectrale en temps réel de signaux radiofréquence large bande [8], les standards secondaires de fréquence basés sur un laser asservi sur un trou spectral [9-10], la transparence électromagnétiquement induite [11] et le calcul quantique [12-13]. Nous allons présenter les propriétés de ces éléments et les différentes interactions provoquant la levée de dégénérescence de leurs niveaux d'énergie avant de discuter des diverses causes d'élargissement homogène et inhomogène des raies associées aux transitions entre ces niveaux. Nous nous intéresserons ensuite au choix d'un matériau particulier pour y réaliser des opérations de stockage et de manipulation cohérente d'information.

2.2 Propriétés physico-chimiques des ions de terre rare

Les atomes de la famille des lanthanides sont caractérisés par une couche 4f partiellement remplie (**Figure 2.1**). Ils sont très fortement électropositifs et leurs liaisons peuvent être raisonnablement considérés comme purement ioniques. On les trouve principalement au degré d'oxydation +III (M^{3+}), qui est, à de rares exceptions près, leur seul état d'oxydation stable [2]. Seuls l'Europium Eu^{2+} et le Samarium Sm^{2+} présentent à leur degré d'oxydation +II des propriétés de stabilité et de finesse spectrale comparables [2,14-15]. La configuration des ions trivalents de ces éléments chimiques a pour formule générale: $5s^2\ 5p^6\ 4f^n$, où *n* varie de 1 pour le cérium à 13 pour l'ytterbium.

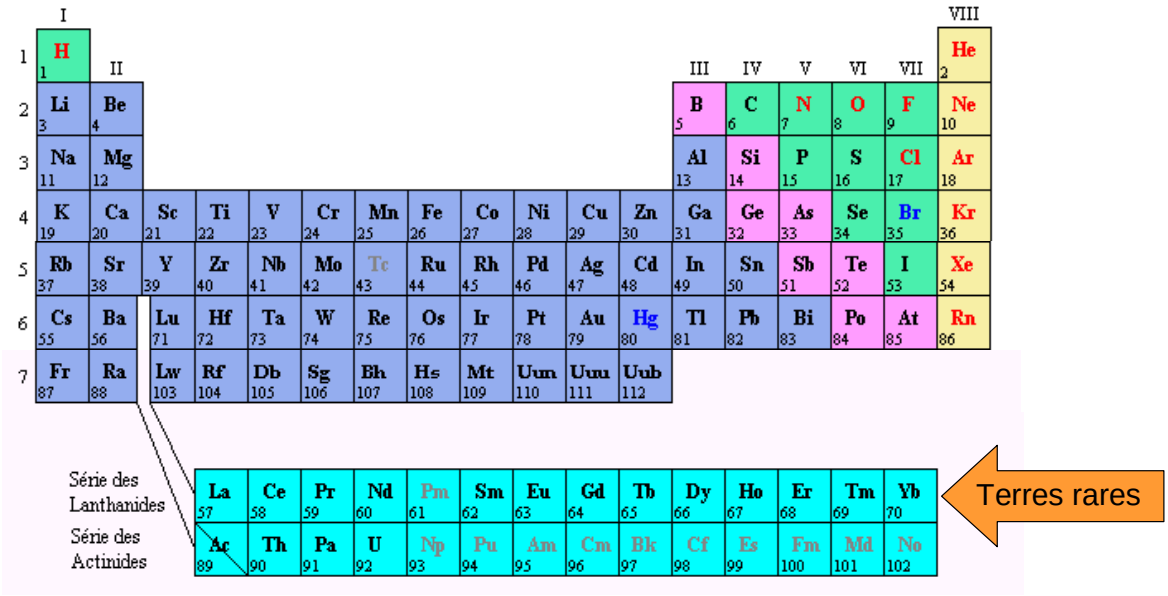

Figure 2.1 : Classification périodique des éléments. La famille des terres rares ou des lanthanides correspond aux éléments compris entre le lanthane et l'ytterbium, dont la couche 4f est partiellement remplie.

Si on considère les électrons de l'ion libre sans interaction et sans couplage spin-orbite, toutes les configurations possibles à l'intérieur de la couche $4f^n$ sont dégénérées. Nous allons discuter dans la section suivante des diverses causes de levée de dégénérescence de ces configurations à des degrés d'approximation successifs du Hamiltonien du système.

2.3 Niveaux d'énergie des ions en matrice cristalline

2.3.1 Hamiltonien du système

On peut écrire le Hamiltonien de l'ion inséré dans un cristal de la façon suivante [16]:

$$H = \left[H_{IL} + H_{CC}\right] + \left[H_{HF} + H_{Q} + H_{Ze} + H_{Zn}\right] \qquad (1.1)$$

Les deux premiers termes représentent respectivement le Hamiltonien de l'ion libre, contenant l'interaction spin-orbite, et celui du champ cristallin. Dans le calcul des niveaux d'énergie des ions dans des cristaux, ces deux premiers termes sont souvent diagonalisés à l'intérieur de la configuration 4f, et les termes suivants, qui ont des contributions très petites devant les deux premiers termes, sont traités en perturbation. Ils représentent, dans leur ordre d'apparition, le couplage hyperfin entre les électrons 4f et le noyau des ions terre rare, l'interaction quadrupolaire nucléaire électrique, non nulle pour les ions possédant un spin nucléaire $I \geq 1$, l'interaction Zeeman électronique et l'interaction Zeeman nucléaire.

Si l'on considère les électrons de la couche 4f d'un ion libre, soumis uniquement à un potentiel coulombien, toutes les configurations possibles à l'intérieur de la couche 4f sont dégénérées (**Figure 2.2(a)**). Cette dégénérescence est partiellement levée par les interactions électroniques, apparaissant dans l'Hamiltonien de l'ion libre H_{IL}. Elles divisent le niveau considéré en différentes configurations non-dégénérées, notées ^{2S+1}L. L'interaction spin-orbite, également contenue dans l'Hamiltonien de l'ion libre H_{IL}, est importante dans les terres rares à cause de leur position basse dans la classification périodique des éléments. Elle lève la dégénérescence en $J = L + S$ à l'intérieur d'une configuration ^{2S+1}L. Les niveaux restés dégénérés par les interactions électroniques sont séparés en différents multiplets $^{2S+1}L_J$ (**Figure 2.2(b)**). Comme J est conservé par l'interaction spin-orbite, il est un bon nombre quantique et les différents multiplets correspondant aux différentes valeurs de J sont $(2J+1)$ fois dégénérés. L'écart entre deux multiplets est typiquement de quelques milliers de cm^{-1}.

Les électrons $4f$ sont écrantés par les électrons $5s$ et $5p$. Du fait de cet écrantage, les interactions avec le champ cristallin, par effet Stark, sont en général très faibles devant l'interaction spin-orbite. Elles peuvent ainsi être traitées en perturbation dans la base dans laquelle celle-ci a été diagonalisée [16]. Autrement dit, l'interaction avec le champ cristallin mélange très peu les multiplets correspondant aux différentes valeurs de J et J reste un bon

nombre quantique. L'état fondamental $^3H_6$ des ions Tm^{3+} reste ainsi un état $^3H_6$ à plus de 99.5% lorsque l'ion est inséré dans une matrice YAG [17]. En revanche, le champ cristallin lève au moins partiellement la dégénérescence à l'intérieur d'un multiplet $^{2S+1}L_J$. Les états propres du hamiltonien de l'ion en matrice se développent sur la base $|LSJM_J\rangle$ des états propres de J_Z. Les multiplets sont séparés en sous niveaux Stark, qui correspondent à des combinaisons linéaires des différentes valeurs propres permises M_J (**Figure 2.2(c)**). L'écart entre les niveaux Stark à l'intérieur d'un multiplet est typiquement de quelques dizaines de cm^{-1}. Le fait que la dégénérescence en J soit partiellement ou totalement levée par l'effet du champ cristallin dépend du nombre d'électrons de l'ion et de la symétrie du site, comme nous allons le préciser dans la section suivante.

.

2.3.2 Symétrie par renversement du temps et dégénérescence de Kramers

La brève présentation de l'opération de renversement du temps que nous allons faire ici est décrite plus en détail dans les références [18] pages 567-581 et [19] pages 639-650. Cette discussion se place dans le cadre plus général des invariances et des lois de conservation qui leurs sont associées en physique, et en particulier en mécanique quantique.

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

Nous appellerons θ l'opérateur de renversement du temps. On peut montrer que θ est un opérateur antilinéaire et antiunitaire, et que $\theta^2 = \pm 1$ [18, 19]. La détermination de cet opérateur dépend de la base choisie. Pour une particule sans spin, en représentation $\vec{r}$, θ peut être identifié à l'opérateur de conjugaison complexe K_0, qui associe à une fonction d'onde son complexe conjugué :

$$\theta = K_0 \qquad (1.2)$$

$$\text{avec} \quad K_0\phi(\vec{r}) = \phi^*(\vec{r}) \tag{1.3}$$

Le spin étant un moment cinétique particulier, il est lui aussi inversé par l'opération de renversement du temps. Si on considère une particule avec un spin 1/2 dans la représentation standard dans laquelle les composantes s_x et s_z sont réelles et la composante s_y est imaginaire, l'opérateur de renversement du temps θ peut s'écrire [18, 19]:

$$\theta = i\sigma_y K_0 \tag{1.4}$$

avec σ_y la matrice de Pauli associée à la composante y dans la représentation standard. On vérifie alors aisément que $\theta^2 = -1$. Si on considère enfin un système de n particules de spin ½, comme n électrons, l'opérateur de renversement du temps sera le produit des opérateurs associés à chaque particule :

$$\theta = \prod_1^n \theta_p \tag{1.5}$$

et l'on aura donc $\theta^2 = (-1)^n$. Le signe de θ^2 (et donc la valeur de n) a une grande importance sur les propriétés magnétiques des ions. Considérons en effet que le Hamiltonien du système est invariant par renversement du temps, c'est-à-dire qu'il commute avec θ . Ceci est le cas en l'absence de champ magnétique car les énergies cinétique, potentielle, et les interactions spin-spin et spin-orbite sont invariantes par renversement du temps. Si Φ est un état propre de H, associé à la valeur propre E :

$$H(\theta|\Phi\rangle) = \theta(H|\Phi\rangle) = \theta(E|\Phi\rangle) = E(\theta|\Phi\rangle) \tag{1.6}$$

Le transformé de Φ par l'opération de renversement du temps est aussi valeur propre de H avec la même énergie. On notera ce transformé $\Psi = \theta|\Phi\rangle$ et on considère le produit scalaire $\langle\Phi,\Psi\rangle$. Puisque θ est antilinéaire :

$$\langle\Phi,\Psi\rangle = \langle\Phi,\theta\Phi\rangle = \langle\theta\Phi,\theta^2\Phi\rangle^* = \langle\theta^2\Phi,\theta\Phi\rangle = \langle\theta^2\Phi,\Psi\rangle \tag{1.7}$$

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

$$\langle\Phi,\Psi\rangle = -\langle\Phi,\Psi\rangle = 0 \tag{1.8}$$

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

Les ions possédant un nombre impair d'électrons 4f (Ce, Nd, Sm, Gd, Dy, Er, Yb) seront désignés par la suite comme des *ions de Kramers*. Pour ces ions, tant que le Hamiltonien commute avec l'opérateur de renversement du temps (c'est-à-dire en l'absence de champ magnétique), les niveaux électroniques sont doublement dégénérés. Ces doublets portent le nom de *doublets de Kramers*. Pour cette raison, l'effet Stark du champ cristallin ne peut lever complètement la dégénérescence en J et les multiplets sont alors séparés en au plus $(J+1/2)$ niveaux distincts. En revanche, les ions dits *non-Kramers*, possédant un nombre pair d'électrons (Eu, Pr, Tb, Ho, Tm), ne sont pas soumis à cette dégénérescence. Les dégénérescences électroniques peuvent alors être complètement levées par le champ cristallin et les niveaux d'énergie se présentent sous la forme de $(2J+1)$ singulets électroniques. Ceci a lieu dans les sites de basse symétrie, qui n'introduisent pas de dégénérescence additionnelle. C'est le cas par exemple des sites de l'Yttrium de symétrie D_2 dans la matrice de YAG. En revanche, dans les sites possédant une symétrie axiale ou plus, il peut exister des dégénérescences dues à la symétrie du site qui conduisent à des états électroniques dits *doublets non-Kramers*. Une telle dégénérescence d'ordre 2 existe, par exemple, dans un environnement de symétrie cubique.

La dégénérescence à l'intérieur d'un multiplet $^{2S+1}L_J$ est donc partiellement ou totalement levée par l'effet Stark du champ cristallin. Nous nous intéresserons seulement aux transitions entre les niveaux de plus basse énergie des différents multiplets Stark (**Figure 2.2(c)**). Les niveaux plus élevés de chaque multiplet relaxent en effet rapidement (avec des temps caractéristiques typiquement inférieurs à la microseconde) vers le niveau de plus basse énergie du multiplet sous l'effet de processus non radiatifs. Ces transitions entre les niveaux de plus basse énergie représentent les transitions optiques que l'on réalisera en utilisant des impulsions laser. Nous allons discuter dans la section 2.4 les diverses causes d'élargissement homogène et inhomogène des raies associées à ces transitions.

Le système à trois niveaux en Λ dont on souhaite disposer pour réaliser des opérations de stockage sera créé en utilisant comme niveaux inférieurs deux sous niveaux hyperfins de l'état fondamental, qui est niveau le plus bas du 1er multiplet Stark (**Figure 2.2(d)**). Pour

déterminer la faisabilité d'un tel système, il convient donc à présent d'étudier précisément les interactions magnétiques qui permettent de séparer ces niveaux hyperfins.

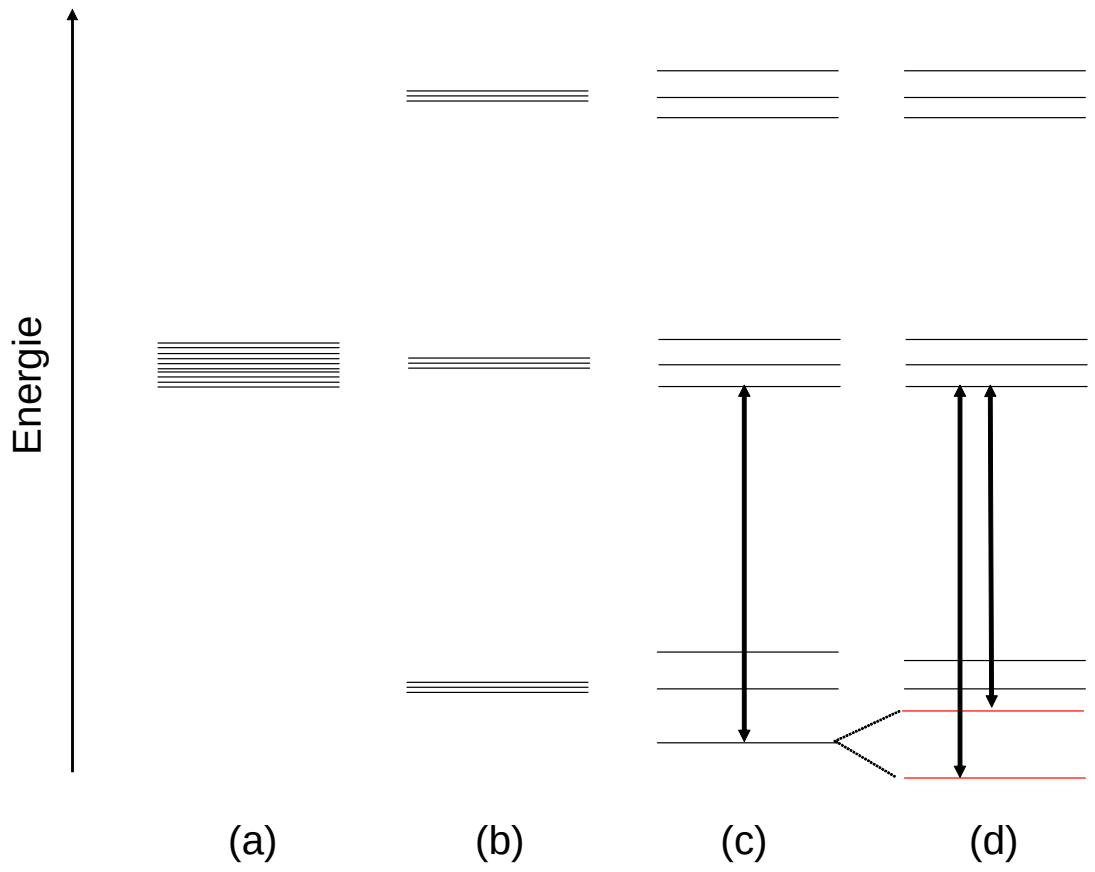

Figure 2.2 : Niveaux d'énergie des électrons 4f des ions de terre rare. (a) Dans le cas des électrons d'un ion libre soumis à un potentiel coulombien, toutes les configurations 4f sont dégénérées. (b) Les interactions entre électrons et l'interaction spin-orbite lèvent cette dégénérescence et séparent les niveaux en différents multiplets $^{2S+1}L_J$, correspondant chacun à une valeur du moment cinétique total J. Chaque multiplet est (2J+1) fois dégénéré. (c) L'effet Stark du champ cristallin lève partiellement ou totalement la dégénérescence à l'intérieur d'un multiplet. Les transitions optiques ont lieu entre les niveaux les plus bas des différents multiplets Stark. (d) Les interactions magnétiques lèvent les dégénérescences hyperfines et permettent de construire un système à trois niveaux en Λ. Seule la leveé de dégénérescence hyperfine du niveau le plus bas du premier multiplet Stark est représentée mais cette levée de dégénérescence a lieu sur chacun des niveaux électroniques.

2.3.3 Interactions magnétiques et structure hyperfine

Les propriétés magnétiques des ions proviennent des termes $\left[H_{HF} + H_Q + H_{Ze} + H_{Zn}\right]$ du Hamiltonien du système. Ils sont très petits devant les termes de l'ion libre H_{IL} et du champ

cristallin H_{CC} et sont traités en perturbation dans la base de leurs états propres. Le premier terme représente l'interaction hyperfine, dont la forme explicite est :

$$H_{HF} = A_J \vec{I}.\vec{J} \tag{1.9}$$

où A_J représente le paramètre de structure hyperfine [16]. Le deuxième terme représente l'interaction quadrupolaire électrique et s'écrit :

$$H_Q = P\left[I_{z'} - I(I+1)/3 + (\eta/3)\left(I_{x'}^2 - I_{y'}^2\right)\right] \tag{1.10}$$

avec P 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. Ce terme (non nul pour les ions présentant un spin nucléaire $I \geq 1$) a des contributions dues au réseau, aux électrons 4f et aux électrons des autres couches dont la distribution de charge est distordue par le champ électrique du réseau [16]. Le troisième terme représente l'interaction Zeeman électronique sous l'effet d'un champ magnétique $\vec{B}$ et s'écrit :

$$H_{Ze} = g_J \mu_B \vec{B}.\vec{J} \tag{1.11}$$

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

$$g_J = 3/2 - \left[L(L+1) - S(S+1)\right]/\left[2J(J+1)\right] \tag{1.12}$$

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

$$H_{Zn} = -\hbar\gamma_n \vec{B}.\vec{I} \tag{1.13}$$

où $\hbar$ représente la constante de Planck divisée par 2π, γ_N le facteur gyromagnétique du noyau et $\vec{I}$ le spin nucléaire. Pour discuter de l'importance de ces différents effets, il convient de distinguer deux cas : celui des ions de Kramers et celui des ions non-Kramers. Parmi ces cas, on va traiter ici plus en détail celui des ions non-Kramers dans des sites de basse symétrie car c'est dans cette configuration que l'on sera amené à travailler (ceci sera justifié en fin de chapitre).

a) Ions non-Kramers

Lorsque la dégénérescence des niveaux électroniques est complètement levée dans un ion à nombre pair d'électrons situé dans un site de basse symétrie, la symétrie par renversement du temps conduit à une propriété remarquable, appelée "quenching" du moment angulaire [19].

Comme on l'a vu précédemment, en raison du nombre pair d'électrons, la fonction d'onde électronique totale est fonction propre du carré de l'opérateur de renversement du temps θ^2 avec la valeur propre +1. Le moment angulaire total $\vec{J}$ est impair par rapport au renversement du temps, comme tous les moments cinétiques:

$$\theta\vec{J}\theta^{-1} = -\vec{J}^{\dagger} \tag{1.14}$$

On a vu que le hamiltonien électronique commute avec l'opérateur de renversement du temps θ. Les états propres non dégénérés sont donc aussi vecteurs propres de θ. D'après l'équation (1.6), leur conjugué temporel est aussi valeur propre de H avec la même valeur propre E. Ils coïncident donc avec celui-ci à un facteur de phase près. La valeur moyenne de $\vec{J}$ est donc proportionnelle à $\langle\Psi|\vec{J}|\theta\Psi\rangle$. Puisque θ est antilinéaire et antiunitaire, on a :

$$\langle\theta\Psi|\theta\Phi\rangle = \langle\Phi|\Psi\rangle \tag{1.15}$$

En faisant agir l'opérateur $\vec{J}$ à droite ou à gauche on obtient:

$$\langle\Psi|\vec{J}|\theta\Psi\rangle = \langle\Psi|\vec{J}\theta\Psi\rangle = \langle\vec{J}^{\dagger}\Psi|\theta\Psi\rangle \tag{1.16}$$

Appliquons la relation (1.15) à $\langle\Psi|\vec{J}\theta\Psi\rangle$:

$$\langle\Psi|\vec{J}|\theta\Psi\rangle = \langle\theta\vec{J}\theta\Psi|\theta\Psi\rangle \tag{1.17}$$

En introduisant θ^{-1} dans le membre de droite on obtient encore, compte tenu de l'équation (1.14) :

$$\begin{aligned}\langle\Psi|\vec{J}|\theta\Psi\rangle &= \langle\theta\vec{J}\theta^{-1}\theta^2\Psi|\theta\Psi\rangle \\ &= -\langle\vec{J}^{\dagger}\theta^2\Psi|\theta\Psi\rangle\end{aligned} \tag{1.18}$$

Comme $\theta^2\Psi = +\Psi$, cette dernière expression s'écrit :

$$-\langle\vec{J}^{\dagger}\theta^2\Psi|\theta\Psi\rangle = -\langle\vec{J}^{\dagger}\Psi|\theta\Psi\rangle \tag{1.19}$$

En comparant à l'équation (1.16), on obtient finalement :

$$\langle\Psi|\vec{J}|\theta\Psi\rangle = \langle\Psi|\vec{J}|\Psi\rangle = 0 \tag{1.20}$$

Cette propriété est appelée "quenching" du moment angulaire. Elle a pour conséquence l'annulation au premier ordre de tous les termes du hamiltonien proportionnels à $\vec{J}$. C'est le

cas en particulier du terme d'interaction Zeeman électronique $H_{Ze} = g_J \mu_B \vec{B}.\vec{J}$ et du terme d'interaction hyperfine $H_{HF} = A_J(\vec{I} \cdot \vec{J})$. Pour ce dernier, on peut écrire en effet :

$$\langle \Psi \otimes \chi | H_{HF} | \Psi \otimes \chi \rangle = A_J \langle \chi | \vec{I} | \chi \rangle \cdot \langle \Psi | \vec{J} | \Psi \rangle = 0 \qquad (1.21)$$

où χ représente la fonction d'onde nucléaire.

On peut alors écrire le terme $\left[H_{HF} + H_Q + H_{Ze} + H_{Zn} \right]$ sous la forme du Hamiltonien effectif suivant, en appliquant la théorie des perturbations au second ordre [16]:

$$H_{eff} = -\left(A_J^2 \vec{I} \cdot \Lambda \cdot \vec{I} - H_Q \right) - \left(2A_J g_J \mu_B \vec{B} \cdot \Lambda \cdot \vec{I} - H_{Zn} \right) - g_J^2 \mu_B^2 \vec{B} \cdot \Lambda \cdot \vec{B} \qquad (1.22)$$

où : $\Lambda_{\alpha\beta} = \sum_{n=1}^{2J+1} \langle 0 | J_\alpha | n \rangle \langle n | J_\beta | 0 \rangle / \Delta_n$, Δ_n représentant la distance $E_n - E_0$ de l'état $|0\rangle$ de plus basse énergie à un autre état $|n\rangle$ du même multiplet électronique.

Le premier terme $A_J^2 \vec{I} \cdot \Lambda \cdot \vec{I}$ représente l'interaction hyperfine au deuxième ordre de perturbation $H_{HF}^{(2)}$. On peut le réécrire de la façon suivante [16]:

$$H_{HF}^{(2)} = D_{pq} \left[I_z^2 - I(I+1)/3 \right] + E_{pq} \left[I_x^2 - I_y^2 \right] \qquad (1.23)$$

où :

$$D_{pq} = A_J^2 \left[\tfrac{1}{2} \left(\Lambda_{xx} + \Lambda_{yy} \right) - \Lambda_{zz} \right] \qquad (1.24)$$

$$E_{pq} = \tfrac{1}{2} A_J^2 \left(\Lambda_{yy} - \Lambda_{xx} \right) \qquad (1.25)$$

Ce terme (également appelé Hamiltonien pseudo-quadrupolaire) est responsable avec l'Hamiltonien quadrupolaire électrique de la levée de dégénérescence des niveaux hyperfins dans les ions de Kramers (**Figure 2.2 (d)**). Ces niveaux hyperfins se présentent alors sous la forme de $I+1/2$ doublets de spin. Il apparaît d'après l'équation (1.23) que l'interaction hyperfine au second ordre de perturbation $H_{HF}^{(2)}$ s'annule comme l'interaction quadrupolaire électrique lorsque le spin nucléaire est inférieur à 1. Ceci est le cas des ions thulium, de spin nucléaire égal à ½. L'ion thulium est donc dépourvu de structure hyperfine au premier ordre *et* au second ordre lorsqu'il est placé dans un site de basse symétrie.

Le troisième terme $2A_J g_J \mu_B \vec{B} \cdot \Lambda \cdot \vec{I}$ représente le couplage au deuxième ordre entre l'interaction hyperfine et l'effet Zeeman électronique. On peut le voir comme la réponse des noyaux à une redistribution du nuage électronique sous l'effet d'un champ magnétique. Ce

terme est en général beaucoup plus important que l'interaction Zeeman nucléaire. La combinaison de ces deux interactions correspond à l'interaction dite *Zeeman nucléaire exacerbée*. Lorsque le tenseur Λ est diagonal (ce qui est notamment le cas pour l'ion Tm^{3+} : YAG du fait de la symétrie D_2 du site de l'Yttrium), cette interaction s'écrit :

$$H'_{Zn} = -\hbar\left[\gamma_x B_x I_x + \gamma_y B_y I_y + \gamma_z B_z I_z\right] \tag{1.26}$$

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

$$\gamma_\alpha = \gamma_n + 2g_J\mu_B A_J \Lambda_{\alpha\alpha} / \hbar \tag{1.27}$$

L'anisotropie du tenseur Λ sera utilisée pour créer le système à trois niveaux désiré dans les ions Thulium (dont on a vu qu'ils sont dépourvus de structure hyperfine) en appliquant un champ magnétique extérieur. Ce point sera discuté en détail dans le chapitre suivant.

Le cinquième terme représente l'interaction Zeeman électronique au second ordre, encore appelé *déplacement Zeeman électronique quadratique*. Dans le cas des ions non-Kramers situés dans des sites de basse symétrie, cette interaction produit en effet un simple déplacement des niveaux électroniques, la dégénérescence de ceux-ci étant déjà complètement levée par l'interaction spin-orbite et par l'effet du champ cristallin.

On peut noter que dans le cas d'ions non-Kramers dans des sites de symétrie axiale ou plus, l'existence de doublets électroniques non-Kramers permet au moment cinétique orbital J d'avoir des composantes non nulles dans la direction de l'axe de symétrie, et d'éviter le quenching du moment cinétique. La partie magnétique du Hamiltonien du système est alors dominée au 1er ordre par l'effet Zeeman électronique parallèle à l'axe de symétrie, ainsi que par le terme hyperfin comprenant les composantes de spin électronique et nucléaire dans cette même direction [16]. Les termes du second ordre apparaissent de la même façon que précédemment.

b) Ions de Kramers

La dégénérescence de Kramers étant due à l'invariance par renversement du temps, elle ne peut être levée que par des interactions qui ne commutent pas avec l'opérateur de renversement du temps θ, ce qui est le cas de l'interaction Zeeman électronique et de l'interaction hyperfine. La partie magnétique du Hamiltonien sera là encore dominée par ces interactions au premier ordre [16] et les termes du second ordre apparaissent de la même façon que précédemment.

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

2.4 Elargissement homogène et inhomogène

Comme on l'a dit dans l'introduction de ce chapitre, les ions de terre rare ont longtemps fasciné les spectroscopistes par la finesse de leurs raies spectrales. Nous allons dans cette section discuter de la raison de cette finesse exceptionnelle et des diverses causes d'élargissement de ces raies. Les processus qui élargissent les transitions peuvent être classés en deux catégories : ceux qui causent un élargissement *homogène* et ceux qui causent un élargissement *inhomogène*. La largeur homogène est celle qu'on mesurerait si on pouvait travailler avec un seul ion à la place d'un ensemble macroscopique. La largeur inhomogène est due au fait que l'on travaille avec un nombre macroscopique d'ions qui ne sont pas exactement identiques. C'est celle qui est mesurée par les spectromètres et les lasers balayés en fréquence, tandis qu'il faut user de processus ingénieux tels que le creusement de trou spectral ou les échos de photons pour accéder à la largeur homogène. Nous discuterons de ces deux types de processus et des moyens disponibles pour améliorer la finesse de ces raies, puis des conséquences de ceci sur le choix du matériau utilisé pour réaliser des opérations de stockage des propriétés quantiques de la lumière.

2.4.1 Largeur inhomogène

L'élargissement inhomogène des raies est dû à l'étalement des fréquences de transitions des ions sur un certain domaine spectral à cause des perturbations statiques de l'environnement de ces ions. Elles sont en général produites par les défauts du cristal qui produisent des potentiels électriques locaux, variant spatialement. Ces défauts peuvent avoir de multiples causes : contraintes crées par le refroidissement du cristal depuis sa température de solidification, dislocations, défauts ponctuels causés par le dopant lui-même ou par d'autres impuretés… Lorsque l'élargissement inhomogène est très grand devant la largeur homogène des niveaux, comme c'est le cas dans les transitions que nous considérerons, les raies sont

dites *élargies de façon inhomogène*. Le fait d'avoir une largeur inhomogène grande devant la largeur homogène peut être souhaitable, par exemple dans le domaine du traitement de l'information. Ceci permet en effet de disposer de nombreux canaux spectraux que l'on peut manipuler indépendamment, puisque ils répondent à différentes fréquences de résonance. Les projets de calcul quantique dans les ions de terre rare en matrice cristalline reposent tous sur ce principe [12-13].

2.4.2 Largeur homogène

La largeur homogène est celle qui est propre à un seul système, en l'occurrence à un seul ion. Elle est égale à l'inverse de la durée de vie de cohérence des niveaux reliés par la transition [20]:

$$\Gamma = \frac{1}{T_2} \tag{1.28}$$

où Γ représente la largeur homogène de la transition et T_2 la durée de vie de cohérence, selon la notation habituelle en spectroscopie. Si on considère un ion isolé dans le vide, T_2 est ultimement limité par le couplage de l'ion aux modes du champ électromagnétique du vide par émission spontanée :

$$T_2(\max) = 2T_1 \tag{1.29}$$

où T_1 représente la durée de vie du niveau excité vis-à-vis de l'émission spontanée [20]. Il importe donc de disposer de matériaux possédant de longues durées de vie des niveaux excités pour espérer bénéficier de longues durées de vie de cohérence et de fines raies spectrales.

Les ions de terre rare, avec leur couche 4f partiellement remplie, répondent favorablement à cette première condition. En effet, les transitions dipolaires électriques entre états de même parité sont interdites. Les seules transitions autorisées à l'intérieur de la configuration 4f devraient donc être de type dipolaire magnétique. Cependant, si l'ion est situé dans un site sans symétrie d'inversion, la configuration $4f^n$ peut être mélangée avec la configuration de parité opposée $4f^{n-1}5d$, ce qui autorise la transition dipolaire électrique. Comme le processus dipolaire électrique est de 5 ordres de grandeur plus fort que le processus dipolaire magnétique, il peut dominer même dans le cas d'un faible mélange d'états de parités

opposées. Ces raies *quasi-interdites* offrent une très faible probabilité de transition, qui occasionne la longue durée de vie des niveaux recherchée.

En plus d'une faible probabilité de transition, les ions de terre rare doivent présenter un faible élargissement homogène dû au couplage dynamique avec l'environnement. Les fluctuations d'interaction spin-spin avec les ions de la matrice et le couplage avec les vibrations du réseau vont en effet élargir la raie de transition. On peut le résumer de la façon suivante:

$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{T_2(\max)} + C \qquad (1.30)$$

où C représente l'ensemble des causes d'élargissement des raies provenant du couplage avec l'environnement. Nous allons discuter précisément de ces différentes causes et en tirer des conséquences sur le choix des ions de terre rare et des matrices cristallines à utiliser.

a) Couplage avec les vibrations du réseau

La contribution des phonons à la largeur homogène intervient à travers deux mécanismes principaux, un processus direct et un processus Raman à deux phonons [21-22], qui sont illustrés sur la **Figure 2.3** :

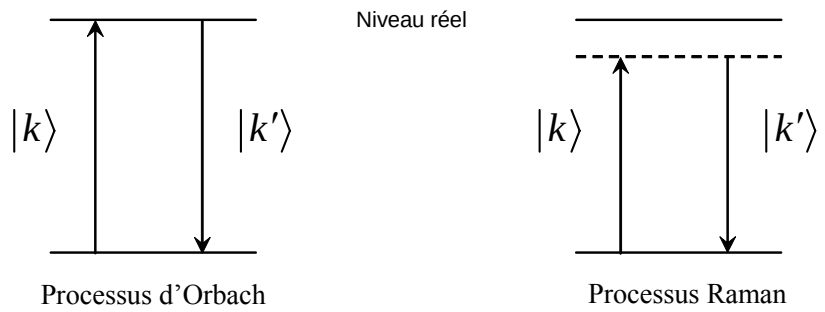

Figure 2.3 : Schémas de deux processus élastiques à deux phonons. *k* et *k'* représentent les vecteurs d'onde des phonons incident et diffusé.

Le processus direct (encore appelé *processus d'Orbach*) met en jeu le couplage, par émission/absorption résonnante d'un phonon, avec le sous niveau Stark le plus proche, situé à la distance Δ au-dessus du niveau impliqué dans la transition électronique. La contribution à l'élargissement homogène s'écrit :

$$\delta(1/T_2) = (1/T_1)\exp(-\Delta / kT) \qquad (1.31)$$

où T_1 est la durée de vie du niveau d'énergie Δ et où T représente la température. L'écart Δ dépend non seulement de l'élément considéré mais aussi de la matrice où il est inséré. Ainsi, Δ vaut $27\,\mathrm{cm}^{-1}$ et $72\,\mathrm{cm}^{-1}$ respectivement dans les états électroniques $^3H_6$ et $^3H_4$ de $Tm^{3+}:Y_3Al_5 0_{12}(YAG)$ [17], mais cette distance se réduit à $6\,\mathrm{cm}^{-1}$ seulement dans l'état $^3H_6$ de $Tm^{3+}:Y_2Si_2O_7$ [23]. Ainsi, à $4\,\mathrm{K}$, dans l'état $^3H_6$, le facteur exponentiel est 400 fois plus faible dans $Tm^{3+}:YAG$ que dans $Tm^{3+}:Y_2Si_2O_7$.

Le processus Raman met en jeu le couplage non résonnant à deux phonons avec un sous niveau Stark virtuel, situé au-dessus du niveau impliqué dans la transition électronique. Il n'est dominant que dans les quelques rares cas où le 1er niveau Stark réel est très éloigné. C'est le cas dans l'Europium, où ce niveau est situé à plus de 200 cm^{-1} du niveau fondamental. A basse température, ce processus varie comme $(T/\Theta_D)^9$, où Θ_D (*température de Debye*) est liée à la fréquence de coupure des phonons. Avec une température de Debye de plusieurs centaines de kelvins ($1000\,\mathrm{K}$ environ dans le YAG), le processus Raman contribue peu à l'élargissement homogène pour des températures inférieures à $5\,\mathrm{K}$.

La contribution du processus direct, elle, est en général non négligeable à 5K. Elle devient par contre extrêmement faible dès lors que la température est inférieure à 2 – 3 K [2, 24, 25]. Elle peut même devenir inférieure à la largeur optique du niveau dès que l'on descend suffisamment en dessous de 2K. On attend par exemple dans $Pr^{3+}:LaF_3$ une largeur due au processus direct de 50 Hz à 2K [26] et de 0.4 Hz à 1.5 K [27]. A ces températures, c'est alors la contribution des interactions ion - ion qui devient largement prépondérante, comme nous allons le décrire ci-dessous.

b) Interactions ion-ion

Les fluctuations du champ magnétique local qui résultent de la fluctuation d'orientation des spins nucléaires des ions ligands ont des conséquences importantes sur la largeur des raies spectrales des ions en matrice. En 1980, des mesures effectuées dans le $Pr^{3+}:LaF_3$ ont montré, à la grande surprise de leurs auteurs, que ces processus sont très largement prépondérants par rapport aux processus assistés par phonon dès lors que la température est suffisamment basse [2, 26]. En appliquant aux ions fluor la technique de RMN de découplage des spins (consistant en l'irradiation radiofréquence résonante des noyaux des ligands de manière a moyenner leur contribution à zéro), ils ont réussi à diminuer la largeur homogène de la raie du Praséodyme de 56 kHz à 6 kHz à une température de 2K. Ces valeurs sont à comparer avec le très faible

élargissement thermique de 50 Hz attendu à la même température [26]. Pour bénéficier de raies les plus fines possibles, on a donc intérêt à choisir une matrice riche en ions de faible spin nucléaire. On optera plutôt pour des cristaux d'oxydes que pour des matrices fluorées (voir **Tableau 2.1**). Les matrices $Y_3Al_5O_{12}$ (YAG) ou Y_2SiO_5 (YSO) apparaissent ainsi comme de bons matériaux. On y a mesuré des largeurs homogènes record (de l'ordre de 100 Hz pour l'Europium [3]).

Elément	^{19}F	^{35}Cl	^{37}Cl	^{139}La	^{27}Al	^{89}Y	^{16}O
I	1/2	3/2	3/2	7/2	5/2	1/2	0
μ (μ_N)	2,63	0,82	0,68	2,78	3,64	-0,137	0

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

Tableau 2.1: Spin I et moments magnétiques nucléaires μ de quelques éléments intervenant comme ligands ou comme dopants.

Les fluctuations d'orientation des spins nucléaires des ions ligands ont lieu à travers deux types de processus : les processus de relaxation du spin vers le niveau le plus bas (là encore assisté par phonon) et les processus de type *flip-flop*. Ces processus correspondent à un basculement de spin inverse et simultané pour deux ions ligands. Il est particulièrement efficace car il se fait à énergie constante. Pour discuter de l'effet de ces fluctuations sur la largeur homogène, il convient de distinguer le cas des ions de Kramers de celui des ions non-Kramers. En ce qui concerne les ions non-Kramers à nombre pair d'électrons (Eu, Pr, Tb, Ho, Tm), le moment cinétique est « quenché » et les états électroniques sont des états singulets, comme on l'a montré dans la section précédente. A faible concentration des ions de terres rares actifs ($0,01$ at. %), l'interaction de ces ions entre eux contribue peu à l'élargissement homogène. En revanche, le couplage du spin nucléaire de l'ion avec le spin nucléaire des ions ligands occasionne des largeurs de raie de l'ordre de plusieurs kHz. On peut affiner modérément ces raies en appliquant un champ magnétique de quelques dizaines de Gauss qui affecte la dynamique du spin nucléaire en supprimant les termes non séculaires du couplage dipôle-dipôle [2]. La réduction du couplage dipôle-dipôle permet à la fois de diminuer l'interaction des ions de terre rare avec leur environnement, et l'interaction des ions de l'environnement entre eux (et donc de diminuer le nombre de flip-flops). C'est ainsi qu'ont été

mesurées par E. Fraval et al. des durées de vie de cohérences hyperfines de 82 ms dans Pr^{3+} : Y_2SiO_5 [28]. Récemment, en utilisant d'ingénieuses techniques issues de la RMN permettant de corriger les effets de la décohérence (en soumettant le système à un Hamiltonien périodique constitué dans ce cas d'une succession d'impulsions d'aire $\pm\pi$), ce groupe a réussi à mesurer dans le même matériau des durées de vie de cohérences hyperfines record de 30 s [29].

La seconde catégorie concerne les ions de Kramers à nombre impair d'électrons (Ce, Nd, Sm, Gd, Dy, Er, Yb). Ici, un renversement de spin électronique peut se produire à l'intérieur même du doublet de Kramers par basculement entre états dégénérés, sans déplacement des niveaux d'énergie. L'interaction du spin électronique des ions avec leur environnement est beaucoup plus importante que celle du spin nucléaire ($g_e \approx 1800 g_n$). Ceci confère une grande efficacité à ce processus de décohérence. De plus, l'interaction des ions de terre rare entre eux devient elle-même une forte source d'élargissement des raies puisque des basculement de type flip-flop des spins électroniques peuvent survenir entre les ions. Pour cette raison, les ions de Kramers présentent, en champ magnétique nul, des largeurs de raie très élevées par rapport à celles présentées par les ions non-Kramers [2]. L'application d'un champ magnétique extérieur peut améliorer la situation dans certains cas. En effet, en plus de la réduction du couplage dipôle-dipôle décrite dans le cas des ions non-Kramers, un champ magnétique permet de lever la dégénérescence de Kramers. A basse température, ceci permet de ne garder peuplé que le niveau le plus bas en énergie. On inhibe ainsi les fluctuations de spin et les mécanismes de flip-flop entre les ions. Ceci nécessite néanmoins un champ magnétique nettement plus intense que dans le cas des ions non-Kramers, de l'ordre de plusieurs Teslas à 1.6 K. C'est ainsi qu'une largeur de raie record de 50 Hz a été mesurée par Sun et al. dans Er^{3+} :YSO avec un champ magnétique appliqué de 7 Teslas [30].

2.5 Choix de l'ion et de la matrice

Comme on l'a vu dans la section précédente, les ions de Kramers présentent en général des durées de vie de cohérence beaucoup plus courtes que les ions non-Kramers. On peut dans certains cas résoudre ce problème en utilisant un champ magnétique bien adapté mais ceci nécessite d'utiliser des champs extrêmement intenses et difficilement réalisables et contrôlables en laboratoire. Sans être un obstacle insurmontable, ceci représente une très lourde

complication expérimentale qu'il semble sage d'éviter, du moins dans un premier temps correspondant à un stade d'expériences préliminaires. On est alors naturellement amenés à se tourner vers des ions non-Kramers. Parmi ceux-ci (Eu, Pr, Tb, Ho, Tm), on cherche à sélectionner ceux qui sont manipulables par des sources lasers très stables. La stabilité en fréquence du laser est exigée par le contrôle précis des cohérences optiques et Raman durant les opérations de stockage de la lumière. Le Praséodyme, dont la longueur d'onde d'absorption est de 606 nm, et l'Europium, qui absorbe à 580 nm, sont dans le domaine des lasers à colorants. Ces lasers sont difficiles à stabiliser en dessous du MHz sur des durées de l'ordre de quelques millisecondes à cause du bruit à haute fréquence généré par le jet de colorant. Il devient alors très difficile, sauf à disposer d'un des rares laser à colorant ultra-stable existant jusqu'ici [31-33], de tirer parti des durées de vie de cohérences de l'ordre de la centaine de µs ou de la ms offertes par les ions. En plus d'initier des recherches d'autres sources lumineuses du type Oscillateur Paramétrique Optique (OPO), ceci pousse à sélectionner des ions contrôlables par des lasers plus faciles à stabiliser. Les longueurs d'onde d'absorption des ions Terbium (490nm), Holmium (640 nm) et Thulium (793 nm) sont accessibles par diode laser ou par diode laser doublée en fréquence. Parmi ceux-ci, seul l'ion Thulium présente en champ magnétique modéré un écart énergétique entre sous-niveaux hyperfins de l'ordre du MHz, à la fois grand devant la largeur homogène des niveaux (typiquement de l'ordre de quelques dizaines de kHz à $T < 4K$) et suffisamment petit pour être balayé de façon rapide et reproductible par un laser stabilisé. On a donc sélectionné l'ion Thulium pour les travaux réalisés au cours de cette thèse. On a réalisé un laser stabilisé à 793 nm, offrant une largeur de l'ordre de 250 Hz sur une durée de l'ordre de 10 ms [34]. Cet ion ne présentant pas de structure hyperfine, on devra par contre avoir recours à un champ magnétique extérieur pour créer le système à trois niveaux requis.

On a vu dans la section précédente l'avantage des cristaux d'oxyde par rapport aux matrices fluorées en terme de fluctuation des spins nucléaires et donc de durée de vie de cohérence. On a choisi de travailler dans un cristal de YAG, dans lequel le 1er niveau Stark du Thulium se trouve beaucoup plus éloigné de l'état fondamental que dans un cristal de YSO. Ceci présente l'avantage de réduire considérablement les processus de décohérence thermiques associés aux vibrations du réseau. De plus, la matrice de YAG offre avec les sites de symétrie D_2 de l'Yttrium les sites de basse symétrie recherchés pour éviter les dégénérescences additionnelles qui dégradent la durée de vie de cohérence du système. Nous allons donc

présenter dans la section suivante les propriétés générales cet ion Thulium substitué dans une matrice YAG, que nous avons sélectionné pour nos investigations expérimentales.

2.6 L'ion Tm^{3+} :YAG

Le noyau de l'atome de Thulium est constitué de 69 protons et de 100 neutrons, correspondant à un spin nucléaire total de $I = 1/2$. L'ion thulium trivalent Tm^{3+} possède 66 électrons, dont 12 électrons dans la couche 4f. La configuration correspondante est $4f^{12}$, $S = 1$, $L = 5$. Lorsque cet ion est substitué dans une matrice YAG ($Y_3Al_5O_{12}$), les ions Thulium se substituent à des ions Y^{3+} dans des sites de symétrie D_2. Dans ces sites de substitution, l'ion Tm^{3+} est placé au centre d'un cube déformé, dont huit atomes d'oxygène (de spin nucléaire nul) forment les sommets. Les ions d'aluminium (porteurs d'un spin nucléaire $I = 5/2$) sont moins nombreux et plus éloignés [35]. On a mesuré une largeur homogène de $\square\ 3\ \text{kHz}$ dans un échantillon de faible concentration ($0{,}1$ at. %) à une température de 1,5 K et en présence d'un faible champ magnétique ($450\ \text{G}$) [36]. La largeur inhomogène du profil d'absorption est, elle, supérieure à $20\ \text{GHz}$.

Les ions Tm^{3+} étant des ions non-Kramers situés dans des sites de basse symétrie, tous les niveaux électroniques sont non dégénérés sous l'effet Stark du champ cristallin. On peut trouver le diagramme détaillé des niveaux d'énergie de $Tm^{3+}:\text{YAG}$ dans la référence [37]. Comme on l'a justifié au début de ce chapitre, on s'intéressera uniquement aux transitions entre niveaux de plus basse énergie de chaque multiplet Stark. Le schéma simplifié de ces niveaux est représenté sur la **Figure 2.4**. Les ions sont excités sur la transition $^3H_6 \rightarrow {}^3H_4$ à $793\ \text{nm}$. Cette longueur d'onde est bien adaptée aux lasers semi-conducteurs disponibles sur le marché. Le niveau excité (d'une durée de vie $\square\ 500\ \mu\text{s}$) se dépeuple préférentiellement de façon non radiative par émission multiphonon vers le niveau $^3F_4$, en passant par le niveau $^3H_5$ de courte durée de vie [38]. Le niveau $^3F_4$ relaxe ensuite essentiellement radiativement vers l'état fondamental. Sa grande durée de vie ($\square\ 10\ \text{ms}$) permet d'en faire un niveau relais lors de processus de type « pompage optique ».

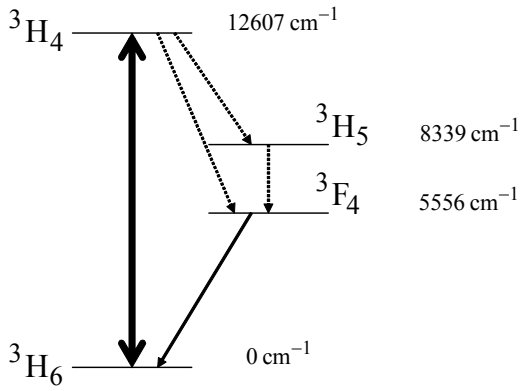

Figure 2.4 : Schéma énergétique simplifié des niveaux de Tm^{3+}: YAG. L'état fondamental correspond au niveau le plus bas du multiplet $^3H_6$ et l'état excité au niveau le plus bas du multiplet $^3H_4$. La transition optique entre ces deux niveaux se situe à 793 nm.

Comme on l'a discuté dans ce chapitre, l'ion Tm^{3+} : YAG ne présente pas de structure hyperfine au premier ni au deuxième ordre de perturbation. On discutera dans le chapitre suivant la façon d'y créer un système à trois niveaux à l'aide d'un champ magnétique extérieur. On y présentera aussi les premiers résultats expérimentaux de spectroscopie de ce système à trois niveaux.

Références

[1] J. J. Longdell, PHD Thesis, Australian National University 2003

http://eprints.anu.edu.au/archive/00002321/

[2] R. M. Macfarlane, J. Lumin **100**, 1 (2002)

[3] R. W. Equall, Y. Sun, R. L. Cone, R. M. Macfarlane, Phys. Rev. Lett **72**, 2179 (1997)

[4] T. W. Mossberg, Opt. Lett **7**, 77 (1982)

[5] G. Castro, D. Haarer, R. M. Macfarlane, H. P. Trommsdorff, US Patent 4**, 101**, 976 (1978)

[6] T. Wang, H. Lin, T. W. Mossberg, Opt. Lett. **20** (1995) 2541

[7] T. L. Harris, Y. Sun, R. L. Cone, R. Macfarlane, R. W. Equall, Opt. Lett. **23** (1998) 636

[8] L. Ménager, I. Lorgeré, J.-L. Le Gouët, D. Dolfi, J.-P. Huignard, Opt. Lett. **26**, 1245 (2001)

[9] P. B. Sellin, N. M. Strickland, T. Bottger, J. L. Carlsten, R. L. Cone, Phys. Rev. B **63**, 155111 (2001)

[10] G. J. Pryde, T. Bottger, R. L. Cone, R. C. C. Ward, J. Lumin **98**, 309 (2002)

[11] A.V. Turukhin, V. S. Sudarshanam, M. S. Shahriar, J. A. Musser, B. S. Ham, P. R. Hemmer, Phys. Rev. Lett. **88**, 023602 (2002)

[12] N. Ohlsson, R. K. Mohan, S. Kroll, Optics Commun. **201**, 71 (2002)

[13] J.J Longdell, M. J. Sellars, Phys. Rev. A **69**, 32307 (2004)

[14] R. M. Macfarlane, R. M. Shelby, Opt. Lett **9**, 533 (1984)

[15] D. M. Boye, R. M. Macfarlane, Y. Sun, R. S. Meltzer, Phys. Rev. B **54**, 6263 (1996)

[16] A. A. Kaplyanskii, R. M. Macfarlane, *Modern problems in condensed matter sciences* **vol 21**,, North-Holland (1987)

[17] J. B. Gruber, M. E. Hills, R. M. Macfarlane, C. A. Morrison, G. A. Turner, G. J. Quarles, G. J. Kintz, L. Esterowitz, Phys. Rev. B **40**, 9464 (1989)

[18] A. Messiah, *Mécanique quantique Tome II*, Dunod (1964)

[19] A. Abragam, B. Bleaney, *Résonance paramagnétique électronique des ions de transition*, Presses universitaires de France (1971)

[20] A. Aspect, G. Grynberg, C. Fabre, *Introduction aux lasers et à l'optique quantique* Ed. Ellipses (1997), C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc et G. Grynberg, *Photons et atomes, Introduction à l'Électrodynamique Quantique*, InterEditions et Éditions du CNRS (1987)

[21] R. Orbach, Proc. R. Soc. London Ser. A **264,** 458 (1961)

[22] D. E. McCumber et M. D. Sturge, J. Appl. Phys. **34,** 1682 (1963)

[23] G. M. Wang, R. W. Equall, R. L. Cone, M. J. M. Leask, K. W. Godfrey, and F. R. Wondre, Opt. Lett. **21**, 818-820 (1996)

[24] R. M. Macfarlane, A. Z. Genack, S. Kano, R. G. Brewer, J. Lumin **18/19**, 933 (1979)

[25] W. R. Babitt, A. Lezama, T. W. Mossberg, Phys. Rev. B **39**, 1987 (1989)

[26] R. M. Macfarlane, C. S. Yanoni, R. M. Shelby, Optics. Commun. **32**, 101, (1980)

[27] A. Z. Genack, R. M. Macfarlane, R. G. Brewer, Phys. Rev. Lett **37**, 1078 (1976)

[28] E. Fraval, M. J. Sellars, J. J. Longdell, Phys. Rev. Lett **92**, 77601 (2004)

[29] E. Fraval, M. J. Sellars, J. J. Longdell, arXiv:quant-ph/0412061

[30] Y. Sun, C. W. Thiel, R. L.Cone, R. W. Equall, R. L. Hutcheson, J. Lumin **98**, 281 (2002)

[31] M. Mitsunaga, N. Uesugi, K. Sugiyama, Opt. Lett. **18**, 1256 (1993)

[32] M. J. Sellars, R. S. Meltzer, P. T. H. Fisk, N. B. Manson, J. Opt. Soc. Am B **11**, 1468 (1994)

[33] R. Klieber, A. Michalowski, R. Neuhaus, D. Suter, Phys. Rev. B **67**, 184103 (2003)

[34] V. Crozatier, F. de Seze, L. Haals, F. Bretenaker, I. Lorgeré, J.-L. Le Gouët, Opt. Commun., **241**, 203 (2004)

[35] Y.-N. Xu et W. Y. Ching, Phys. Rev. B **59**, 10530-10535 (1999)

[36] R. M. Macfarlane, Opt. Lett. **18**, 1958-1960 (1993)

[37] J. B. Gruber, M. E. Hills, R. MacFarlane, C. A. Morrison, G. A. Turner, G. J. Quarles, G. J. Kintz, L. Esterowitz , Phys. Rev. B **40**, 9464 (1989)

[38] T. T. Basiev, Y. V. Orlovskii, K. K. Pukhov, V. B. Sigachev, M. E. Doroshenko et I. N. Vorob'ev, J. Lumin. **68,** 241-253 (1996)

CHAPITRE 3

L'ION *Tm^{3+} : YAG* EN CHAMP MAGNETIQUE

Ce chapitre traite de la construction d'un système à trois niveaux efficace dans l'ion Thulium inséré dans un cristal de YAG et soumis à un champ magnétique extérieur. Nous détaillons d'abord le principe de la création de ce système à trois niveaux en utilisant l'anisotropie de l'interaction Zeeman exacerbée, que nous avons présentée dans le chapitre précédent. Nous présentons ensuite les prévisions de l'effet d'un champ magnétique sur l'écart énergétique entre les niveaux hyperfins de l'état fondamental et de l'état excité. Nous discuterons des taux de branchement attendus sur les transitions entre ces niveaux en fonction de l'orientation du champ magnétique appliqué. Nous confronterons ces prévisions théoriques aux résultats expérimentaux de spectroscopie de l'ion Tm^{3+} : YAG en champ magnétique.

3.1 Introduction

Les expériences de stockage de propriétés quantiques de la lumière dans des milieux matériels nécessitent de disposer de systèmes atomiques à trois niveaux en Λ, c'est-à-dire où deux sous niveaux de l'état fondamental sont optiquement reliés à un niveau excité par des transitions permises (**Figure 3.1**). La description que nous allons faire ici du principe de la construction du système à trois niveaux dans Tm^{3+} :YAG repose sur le travail réalisé en collaboration avec O. Guillot-Noël et P. Goldner, qui est présenté en détail dans la référence [1].

Dans le Chapitre 2, nous avons détaillé les niveaux d'énergie des ions en matrice et nous avons observé que l'ion Thulium ne possède pas de structure hyperfine au premier ordre (du fait du quenching du moment cinétique orbital pour les ions de Kramers dans les sites de basse symétrie), ni au deuxième ordre (du fait de son faible spin nucléaire $I = 1/2$). Les deux sous niveaux hyperfins correspondant aux valeurs propres de I_z $|M_I = \pm 1/2\rangle$ sont donc dégénérés. Pour construire un système à trois niveaux, il est nécessaire de placer l'ion Tm^{3+} : YAG dans un champ magnétique de façon à lever cette dégénérescence.

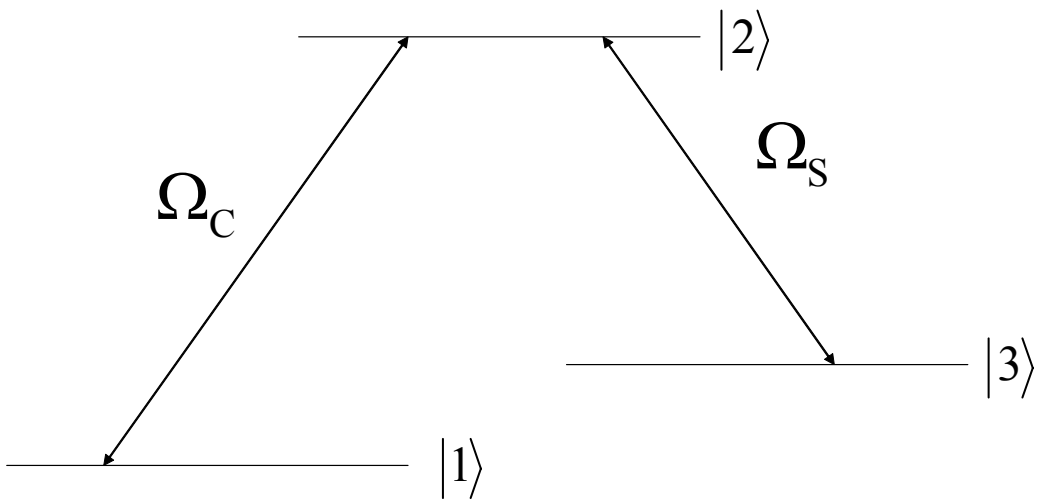

Figure 3.1 : Système à trois niveaux en Λ. Ω_C et Ω_S représentent les fréquences de Rabi respectivement associées aux transition $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$ et $|3\rangle \rightarrow |2\rangle$

L'effet Zeeman nucléaire seul ne permet pas de créer ce système à trois niveaux. Il occasionne une levée de dégénérescence entre les niveaux $|M_I = +1/2\rangle$ et $|M_I = -1/2\rangle$ dans l'état fondamental $^3H_6$ et dans l'état excité $^3H_4$, avec un écart énergétique entre les sous niveaux identique dans les deux états. Mais les excitations électroniques par voie optique ne peuvent pas renverser le spin nucléaire. On obtiendrait ainsi deux systèmes à deux niveaux indépendants, constitués pour l'un des deux sous niveaux de l'état fondamental et de l'état excité correspondant à $|M_I = +1/2\rangle$, et pour l'autre des deux sous niveaux de l'état fondamental et de l'état excité correspondant à $|M_I = -1/2\rangle$ (**Figure 3.2**). L'effet Zeeman nucléaire ne permet donc pas d'obtenir un système à trois niveaux dans lequel les deux sous niveaux de l'état fondamental sont optiquement couplés par une transition résonante au *même* niveau électronique excité.

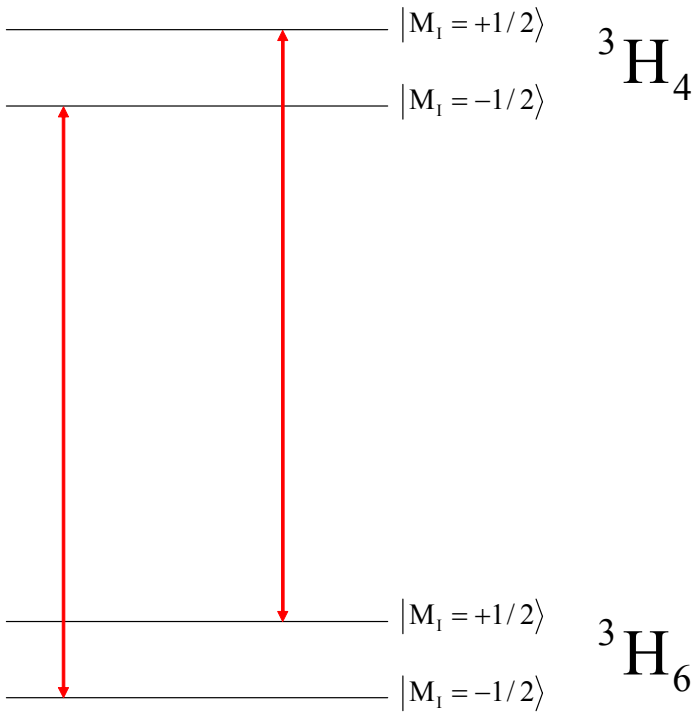

Figure 3.2 : Ensemble de deux systèmes à deux niveaux indépendants créés par le seul effet Zeeman nucléaire dans Tm^{3+} : YAG.

Nous avons présenté dans le Chapitre 2 les différentes interactions magnétiques subies par les ions en matrice. Parmi celles-ci, outre l'interaction Zeeman nucléaire, seul le couplage au 2e ordre entre l'interaction Zeeman électronique et l'interaction hyperfine est non nul dans

le cas de Tm^{3+} :YAG (si l'on excepte l'effet Zeeman électronique au 2e ordre qui consiste en un simple déplacement des niveaux sans levée de dégénérescence). Ce terme, beaucoup plus important que l'effet Zeeman nucléaire, s'écrit (cf Chapitre 2) :

$$2A_J g_J \mu_B \vec{B} \cdot \Lambda \cdot \vec{I} \tag{1.32}$$

où :

$$\Lambda_{\alpha\beta} = \sum_{n=1}^{2J+1} \langle 0 | J_\alpha | n \rangle \langle n | J_\beta | 0 \rangle / \Delta_n \tag{1.33}$$

Δ_n représentant la distance $E_n - E_0$ de l'état $|0\rangle$ de plus basse énergie à un autre état $|n\rangle$ du même multiplet électronique.

Le tenseur Λ de l'interaction hyperfine étant à priori anisotrope, il va provoquer un mélange entre les états propres de l'interaction Zeeman nucléaire $|M_I = \pm 1/2\rangle$. Comme Λ dépend de chaque état électronique, ce mélange entre les états $|M_I = \pm 1/2\rangle$ peut être différent dans l'état fondamental et dans l'état excité. Ceci permettrait de coupler optiquement les différents états propres du Hamiltonien sans violer de règle de sélection, et d'obtenir ainsi un système à trois niveaux efficace. Nous allons présenter maintenant les propriétés particulières de symétrie de Tm^{3+} : YAG , qui nous permettront de décrire plus en détail les conditions dans lesquelles cette interaction permet de réaliser ou non le mélange désiré.

3.2 Conséquences de la symétrie D_2 des sites de l'Yttrium

3.2.1 Symétrie des sites et orientation des dipôles de transition

Les sites de l'yttrium Y^{3+} possèdent une symétrie de type D_2. Le groupe ponctuel de symétrie D_n est constitué par un axe de symétrie d'ordre n combiné avec n axes de symétrie d'ordre 2 orthogonaux à cet axe principal. Dans le cas du groupe de symétrie D_2, ceci se réduit à trois axes de symétrie d'ordre 2 perpendiculaires entre eux. Le produit de deux rotations de π autour de deux de ces axes correspond à une rotation de π autour du 3e axe. Le Tm^{3+} : YAG étant un ion non-Kramers situé dans un site de basse symétrie, tous les états électroniques sont des états singulets. Comme les opérateurs de rotation commutent avec le Hamiltonien du système, les états électroniques sont des états propres des opérateurs de rotation de π avec les

valeurs propres ± 1. Ainsi, chaque état électronique possède un jeu de trois valeurs propres qui caractérise ses propriétés de rotation autour des trois axes du site Ox, Oy, et Oz. Le produit de ces trois valeurs propres doit être égal à +1.

	Valeur propre par rotation de π autour de OX	Valeur propre par rotation de π autour de OY	Valeur propre par rotation de π autour de OZ
Etat fondamental	1	1	1
Etat excité	1	-1	-1
Composante u du dipole	1	-1	-1
Composante v du dipole	-1	1	-1
Composante w du dipole	-1	-1	1
Elément de matrice entre état fondamental et excité-Composante u	**1**	**1**	**1**
Elément de matrice entre état fondamental et excité-Composante v	-1	-1	1
Elément de matrice entre état fondamental et excité-Composante w	-1	1	-1

Tableau 3.1 : Propriétés de symétrie des éléments de matrice des composantes du dipôle de transition entre l'état fondamental, associé au jeu de valeurs propres (1,1,1) et l'état excité, associé au jeu de valeurs propres (1,-1,-1).

Le moment dipolaire de transition est aligné le long de l'un des trois axes du site. En effet, la valeur des éléments de matrice des composantes du dipôle de transition entre deux états électroniques est une observable et doit rester inchangée à travers toute opération de symétrie. Cette invariance n'est satisfaite que pour une seule des trois composantes (u, v, w) le long des axes du site. Considérons par exemple le cas, décrit dans le **Tableau 3.1**, où les états fondamental et excité sont respectivement associés aux jeux de valeurs propres (1,1,1) et (1,-1,-1). Seule la composante u est invariante vis-à-vis de toutes les opérations de symétrie. En d'autres termes, avec le jeu des valeurs propres que nous avons sélectionnées, les composantes du dipôle de transition doivent forcément s'annuler le long des axes Oy et Oz. Si l'on généralise à tous les différents jeux de valeurs propres possibles pour l'état fondamental et l'état excité, il y a 3 orientations possibles du dipôle de transition, qui sont dirigées selon les 3 axes du site. En prenant en compte la symétrie cubique du cristal et le fait que les axes des sites ne sont pas orientés parallèlement aux axes du cristal, on compte neuf orientations possibles. Elles correspondent à trois jeux de trois axes reliés entre eux par les opérations de symétrie cubique du cristal (**Figure 3.3**). Expérimentalement, seules six de ces neuf orientations ont été observées [2]. Elles sont représentées sur la **Figure 3.3**. Dans toute la suite, nous définirons les

sites dits *inéquivalents orientationellement* le long de ces six orientations observées. Nous les noterons de 1 à 6, conformément aux notations de la **Figure 3.3**. On peut vérifier que tous ces sites se déduisent l'un de l'autre par des opérations de symétrie cubique du cristal. Le site 1 se retrouve dans la position des sites 3 ou 5 après une rotation de $\pm 2\pi/3$ autour de la diagonale du cube [1, 1, 1]. Une rotation de π autour de la ligne qui relie les arêtes opposées des cubes amène le site 3 sur le site 6. D'autres rotations de $\pm 2\pi/3$ autour de la diagonale du cube permettent d'amener le site 6 sur les sites 2 et 4.

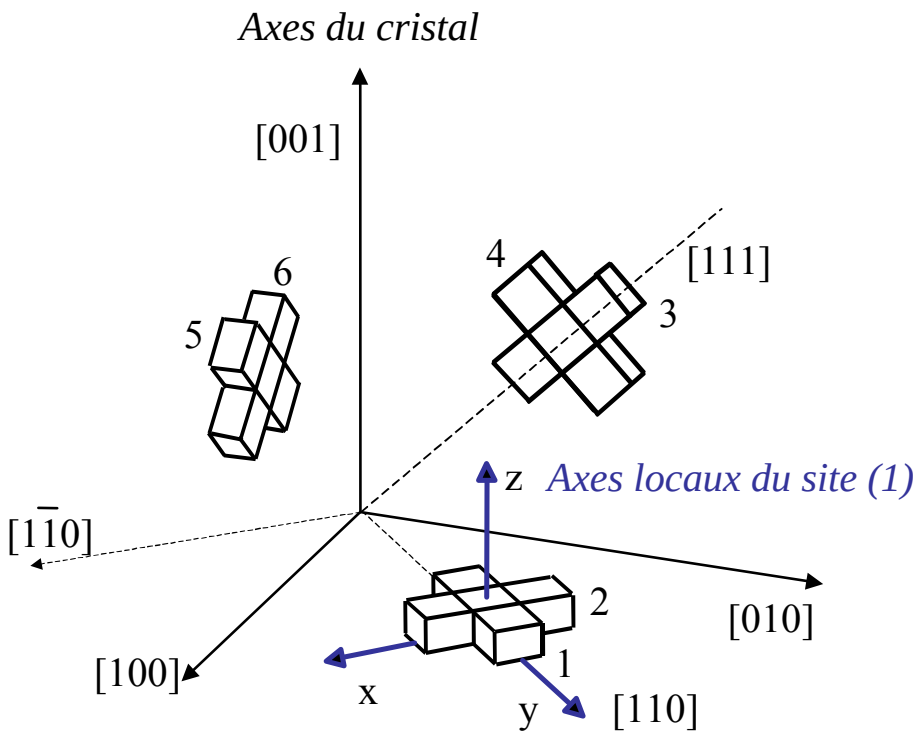

Figure 3.3: Orientations possibles pour le dipôle de transition d'un ion Tm^{3+} substituant un ion Y^{3+} dans un cristal de YAG. Les neuf orientations possibles correspondent à trois jeux de trois axes de symétrie locaux situés dans le plan cristallin horizontal (sites 1, 2) et dans les plans cristallins verticaux (sites 3, 4 et sites 5, 6). Les axes *x*, *y*, et *z* représentés ici sont les axes locaux pour le site 1 dont le moment de transition est orienté selon Oy. Les six orientations effectivement observées correspondent aux six sites "inéquivalents orientationellement" notés de 1 à 6. Chaque parallélépipède représente la symétrie locale D_2 pour un type de site. Les expériences décrites à la fin de ce chapitre ont été réalisées avec la lumière se propageant le long de la direction $[1,\bar{1},0]$ et la direction de polarisation a été tournée de $[1,1,0]$ à $[0,0,1]$.

Pour les investigations expérimentales, il est intéressant de noter qu'il y a deux directions de polarisation de la lumière pour laquelle les sites excités présentent tous la même projection du moment dipolaire sur la direction du champ électrique excitateur, c'est-à-dire la même fréquence de Rabi (**Figure 3.3**):

- Polarisation dans la direction [1,1,1]

  Les dipôles orientés perpendiculairement à la diagonale dans chaque plan cristallin (2, 4, 6) sont orthogonaux au champ électrique et ne sont pas excités. Seuls les 3 dipôles orientés selon la diagonale des plans cristallins (1, 3, 5) sont excités. Le produit scalaire du vecteur unitaire selon [1,1,1] et du vecteur orienté le long du dipôle s'écrit :

$$\begin{bmatrix} 1/\sqrt{3} \\ 1/\sqrt{3} \\ 1/\sqrt{3} \end{bmatrix} . \begin{bmatrix} 1/\sqrt{2} \\ 1/\sqrt{2} \\ 0 \end{bmatrix} = \sqrt{\frac{2}{3}}$$

- Polarisation dans la direction [0,0,1]

  Les dipôles situés dans le plan horizontal (1, 2) sont orthogonaux au champ électrique et ne sont pas excités. Les 4 dipôles excités (3, 4, 5, 6) sont dirigés à 45° de la direction du champ électrique. Le produit scalaire du vecteur unitaire orienté le long du dipôle avec cette direction est $1/\sqrt{2}$

La fréquence de Rabi est $2/\sqrt{3}$ fois plus grande avec la polarisation [1,1,1] qu'avec la polarisation [0,0,1]. Le coefficient d'absorption, lui, est proportionnel au nombre d'ions et au carré de la projection du moment dipolaire le long du champ électrique. Il est donc proportionnel à $3\times\left[\sqrt{2/3}\right]^2 = 2$ en polarisation [1,1,1] et à $4\times\left[1/\sqrt{2}\right]^2 = 2$ en polarisation [0,0,1]. Le coefficient d'absorption est *le même* dans les deux directions; le plus grand nombre d'atomes excités compensant la plus faible interaction avec le champ électrique dans le cas de la polarisation [0,0,1].

3.2.2 Notion de champ magnétique effectif

Une autre conséquence de la symétrie D_2 est que les axes locaux des sites sont également les axes principaux du tenseur Λ. La définition de l'orientation du site devient cruciale quand un champ magnétique extérieur est appliqué puisque Λ est anisotrope et n'est donc pas invariant vis-à-vis de la permutation des axes. Ainsi un repère spécifique doit être défini pour chaque orientation du moment dipolaire électrique de transition. Une telle

orientation a été définie sur la **Figure 3.3** où l'on a orienté le repère local associé au site 1 de façon à ce que le moment dipolaire électrique de transition soit dirigé selon l'axe Oy. On procèdera de même pour le repère local associé à chaque site que l'on orientera de façon à ce que le moment dipolaire de transition du site soit orienté suivant Oy.

Puisque le tenseur Λ est diagonal, on peut réécrire le terme (1.32) décrivant le couplage au second ordre entre l'interaction hyperfine et l'effet Zeeman électronique et le combiner à l'effet Zeeman nucléaire. L'interaction résultante, dite *Zeeman nucléaire exacerbée*, s'écrit:

$$H'_{Zn} = -\hbar\left[\gamma_x B_x I_x + \gamma_y B_y I_y + \gamma_z B_z I_z\right] \tag{1.34}$$

où B_α représentent les coordonnées du champ magnétique extérieur $\vec{B}$ et où les facteurs gyromagnétiques γ_α sont donnés par :

$$\gamma_\alpha = \gamma_n + 2g_J\mu_B A_J \Lambda_{\alpha\alpha} / \hbar \tag{1.35}$$

avec x, y, z les axes locaux du site considéré.

Une façon simple de se représenter le phénomène est de voir l'interaction Zeeman exacerbée comme la réponse des noyaux par effet Zeeman nucléaire à un champ magnétique effectif, égal à la somme du champ magnétique appliqué et d'un champ magnétique additionnel dû à la réorientation des nuages électroniques sous l'effet du champ appliqué. On peut en effet écrire :

$$H'_{Zn} = -\hbar\gamma_n \vec{B}_{eff}.\vec{I} \tag{1.36}$$

avec

$$\vec{B}_{eff} = \left(\frac{\gamma_x}{\gamma_n}B_x,\ \frac{\gamma_y}{\gamma_n}B_y,\ \frac{\gamma_z}{\gamma_n}B_z\right) \tag{1.37}$$

Le tenseur Λ de l'interaction hyperfine étant à priori anisotrope, le champ magnétique effectif peut posséder une direction différente du champ magnétique appliqué et provoquer ainsi un mélange entre les états propres de l'interaction Zeeman nucléaire. Comme le tenseur Λ dépend de chaque état électronique, les facteurs gyromagnétiques γ_x, γ_y et γ_z sont à priori différents dans l'état fondamental et dans l'état excité. La direction du champ magnétique effectif peut donc ne pas être la même pour les états $^3H_6$ et $^3H_4$. La situation idéale est celle dans laquelle les champs effectifs de l'état fondamental $\vec{B}^g_{eff}$ et de l'état excité $\vec{B}^e_{eff}$ sont orthogonaux. Ce serait par exemple le cas si le champ $\vec{B}^g_{eff}$ était dirigé selon le champ magnétique appliqué $\vec{B}$, et si le

champ $\vec{B}^{e}_{eff}$ était perpendiculaire à celui-ci. La partie nucléaire des états propres du Hamiltonien du système serait alors $|M_I = \pm 1/2\rangle$ dans l'état fondamental et, à un facteur de phase près, $\frac{1}{\sqrt{2}}\left(|M_I = +1/2\rangle \pm |M_I = -1/2\rangle\right)$ dans l'état excité (**Figure 3.4**). Le mélange maximal des états ainsi réalisé permet d'obtenir deux systèmes à trois niveaux efficaces. On notera par la suite α_{eff} l'angle entre les champs magnétiques effectifs et on définit le taux de branchement R entre les transitions $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$ et $|3\rangle \rightarrow |2\rangle$ comme le rapport des carrés des produits scalaires des parties nucléaires de la fonction d'onde des deux états concernés par la transition :

$$R = \frac{\left|\langle 3|2\rangle_{nucl}\right|^2}{\left|\langle 1|2\rangle_{nucl}\right|^2} \tag{1.38}$$

Le cas idéal de la **Figure 3.4** correspond à un taux de branchement $R = 1$.

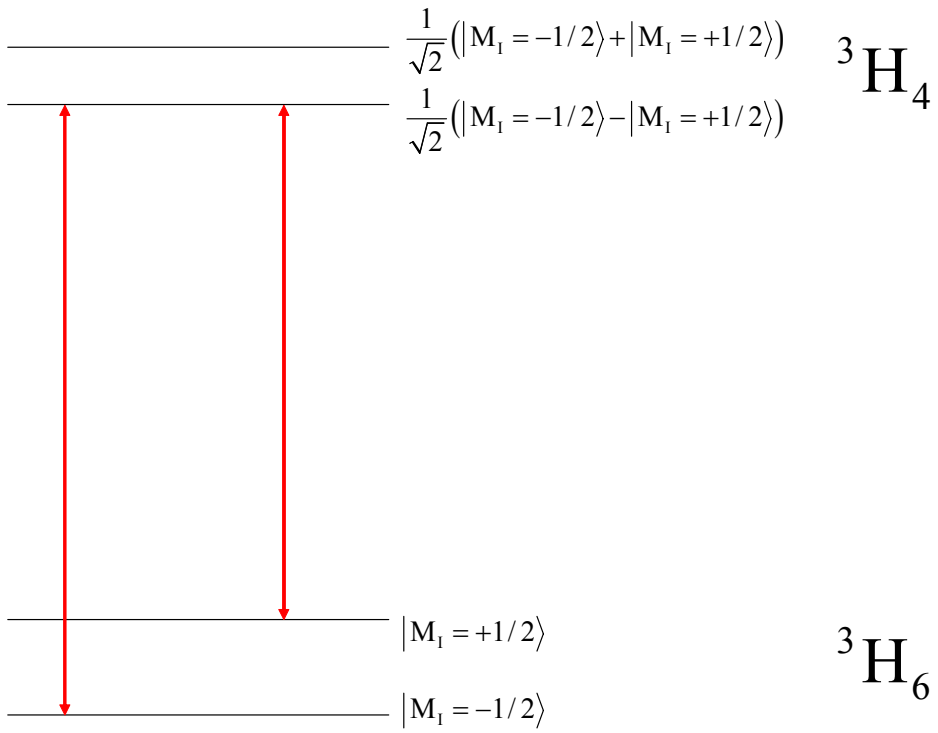

Figure 3.4 : Système à trois niveaux en Λ correspondant au cas idéal de mélange maximum des états par l'interaction Zeeman nucléaire exacerbée. On obtient en fait deux systèmes à trois niveaux efficaces, selon que l'on relie les deux sous niveaux de l'état fondamental par le premier ou le deuxième sous niveau de l'état excité.

3.3 Effet de l'orientation du champ magnétique appliqué

3.3.1 Ecart énergétique et taux de branchement

Pour prévoir les valeurs d'écart énergétique entre les sous niveaux et de taux de branchement entre les transitions, on doit déterminer les états propres du Hamiltonien Zeeman nucléaire exacerbé H'_{Zn} , qui s'applique aux parties nucléaires des fonctions d'onde. Dans la base $\{|M_I = -1/2\rangle, |M_I = +1/2\rangle\}$, cet opérateur s'écrit :

$$H'_{Zn} = \frac{1}{2}\begin{pmatrix} -\gamma_z B_z & \gamma_x B_x + i\gamma_y B_y \\ \gamma_x B_x - i\gamma_y B_y & \gamma_z B_z \end{pmatrix} \tag{1.39}$$

où B_x, B_y, B_z sont les composantes, dans les axes locaux du site, du champ magnétique appliqué.

Dans le cas d'un champ magnétique appliqué parallèle à Oz ($B_x = 0$, $B_y = 0$), le Hamiltonien H'_{Zn} est diagonal dans la base $\{|M_I = -1/2\rangle, |M_I = +1/2\rangle\}$ et les états $|M_I = \pm 1/2\rangle$ sont des états propres du système à la fois dans l'état fondamental et dans l'état excité. Aucun mélange entre les états n'est provoqué par l'interaction Zeeman nucléaire exacerbée et le taux de branchement R est nul.

Dans le cas général, les valeurs propres et les vecteurs propres de H'_{Zn} sont respectivement :

$$E_- = -\frac{1}{2}\sqrt{\gamma_x^2 B_x^2 + \gamma_y^2 B_y^2 + \gamma_z^2 B_z^2} \tag{1.40}$$

$$|-\rangle = a_- |M_I = -1/2\rangle + b_- |M_I = +1/2\rangle \tag{1.41}$$

$$E_+ = \frac{1}{2}\sqrt{\gamma_x^2 B_x^2 + \gamma_y^2 B_y^2 + \gamma_z^2 B_z^2} \tag{1.42}$$

$$|+\rangle = a_+ |M_I = -1/2\rangle + b_+ |M_I = +1/2\rangle \tag{1.43}$$

avec :

$$a_- = \frac{1}{\sqrt{2}} \frac{\gamma_x B_x + i\gamma_y B_y}{\sqrt{\Delta}\left(\Delta + \gamma_z B_z\right)^{1/2}}, \quad b_- = \frac{1}{\sqrt{2}} \frac{\Delta + \gamma_z B_z}{\sqrt{\Delta}\left(\Delta + \gamma_z B_z\right)^{1/2}} \tag{1.44}$$

$$a_+ = \frac{1}{\sqrt{2}} \frac{\gamma_x B_x + i\gamma_y B_y}{\sqrt{\Delta}\left(\Delta - \gamma_z B_z\right)^{1/2}}, \quad b_+ = \frac{1}{\sqrt{2}} \frac{-\Delta + \gamma_z B_z}{\sqrt{\Delta}\left(\Delta - \gamma_z B_z\right)^{1/2}} \tag{1.45}$$

où Δ représente l'écart énergétique entre les deux états propres de H'_{Zn} :

$$\Delta = E_+ - E_- = \left[\gamma_x^2 B_x^2 + \gamma_y^2 B_y^2 + \gamma_z^2 B_z^2\right]^{1/2} \tag{1.46}$$

On peut noter que Δ est proportionnel à la norme de $\vec{B}_{eff}$. Le vecteur unitaire dans la direction du champ magnétique effectif s'écrit :

$$\hat{B}_{eff} = \left(\gamma_x B_x/\Delta,\ \gamma_y B_y/\Delta,\ \gamma_z B_z/\Delta\right) = (X_{eff}, Y_{eff}, Z_{eff}) \tag{1.47}$$

On peut réécrire les coefficients des états propres de H'_{Zn} ainsi :

$$a_- = \frac{1}{\sqrt{2}} \frac{X_{eff} + iY_{eff}}{\left(1 + Z_{eff}\right)^{1/2}}, \quad b_- = \frac{1}{\sqrt{2}} \frac{1 + Z_{eff}}{\left(1 + Z_{eff}\right)^{1/2}} \tag{1.48}$$

$$a_+ = \frac{1}{\sqrt{2}} \frac{X_{eff} + iY_{eff}}{\left(1 - Z_{eff}\right)^{1/2}}, \quad b_+ = -\frac{1}{\sqrt{2}} \frac{1 - Z_{eff}}{\left(1 - Z_{eff}\right)^{1/2}} \tag{1.49}$$

ou encore, en fonction des coordonnées polaires de $\hat{B}_{eff}$ (Θ, Φ):

$$a_- = \sin\frac{\Theta}{2} e^{i\Phi}, \quad b_- = \cos\frac{\Theta}{2} \tag{1.50}$$

$$a_+ = \cos\frac{\Theta}{2} e^{i\Phi}, \quad b_+ = -\sin\frac{\Theta}{2} \tag{1.51}$$

On voit que le poids des états $\left|M_I = \pm 1/2\right\rangle$ dans les nouveaux états propres du Hamiltonien du système dépend de la direction de $\hat{B}_{eff}$. La probabilité de réaliser une transition avec retournement de spin nucléaire s'écrit:

$$
\begin{aligned}
&\left|a_-^{(e)}a_+^{(g)}*+b_-^{(e)}b_+^{(g)}*\right|^2 \\
&=\left(-\cos\frac{\Theta^{(e)}}{2}\sin\frac{\Theta^{(g)}}{2}+\sin\frac{\Theta^{(e)}}{2}\cos\frac{\Theta^{(g)}}{2}\cos\left(\Phi^{(e)}-\Phi^{(g)}\right)\right)^2 \\
&+\left(\sin\frac{\Theta^{(e)}}{2}\cos\frac{\Theta^{(g)}}{2}\sin\left(\Phi^{(e)}-\Phi^{(g)}\right)\right)^2 \\
&=\frac{1}{2}\left[1-\cos\Theta^{(e)}\cos\Theta^{(g)}-\sin\Theta^{(e)}\sin\Theta^{(g)}\cos\left(\Phi^{(e)}-\Phi^{(g)}\right)\right] \\
&=\frac{1}{2}\left[1-\cos\left(\alpha_{eff}\right)\right]
\end{aligned}
\tag{1.52}
$$

avec $\cos\left(\alpha_{eff}\right)=\hat{B}_{eff}^{(e)}.\hat{B}_{eff}^{(g)}=X_{eff}{}^{(e)}X_{eff}{}^{(g)}+Y_{eff}{}^{(e)}Y_{eff}{}^{(g)}+Z_{eff}{}^{(e)}Z_{eff}{}^{(g)}$

Le taux de branchement s'écrit donc:

$$
R=\left|\frac{a_-^{(e)}a_+^{(g)}*+b_-^{(e)}b_+^{(g)}*}{a_-^{(e)}a_-^{(g)}*+b_-^{(e)}b_-^{(g)}*}\right|^2=\frac{1-\cos\left(\alpha_{eff}\right)}{1+\cos\left(\alpha_{eff}\right)} \tag{1.53}
$$

On peut réécrire R de la façon suivante :

$$
R=\frac{\sin^2\left(\alpha_{eff}\right)}{\left[1+\cos\left(\alpha_{eff}\right)\right]^2} \tag{1.54}
$$

On obtient, en fonction des directions des champs magnétiques effectifs dans l'état fondamental et dans l'état excité:

$$
R=\frac{\left\|\hat{B}_{eff}^{(e)}\wedge\hat{B}_{eff}^{(g)}\right\|^2}{\left(1+\hat{B}_{eff}^{(e)}.\hat{B}_{eff}^{(g)}\right)^2} \tag{1.55}
$$

3.3.2 Optimisation du taux de branchement

Le taux de branchement est une fonction de l'angle entre les champs magnétiques effectifs dans l'état fondamental et dans l'état excité. Autrement dit, il dépend de quatre paramètres représentant les coordonnées polaires de ces champs magnétiques effectifs dans le repère local associé au site. On peut déterminer ces paramètres à partir des composantes γ_x, γ_y et γ_z du tenseur gyromagnétique. Il est donc important de connaître la valeur de ces composantes avec précision dans l'état fondamental et dans l'état excité. On peut en déduire la meilleure orientation pour le champ magnétique appliqué, correspondant à la valeur optimale du taux de branchement. Ce calcul sera présenté dans la section suivante, en utilisant les

valeurs théoriques des composantes du tenseur gyromagnétique, qui ont été calculées en par O. Guillot-Noël et P. Goldner [1]. On présentera ensuite les expériences réalisées pour mesurer expérimentalement γ_x, γ_y et γ_z. On peut néanmoins se demander si on ne peut pas avoir une première image intuitive de cette orientation optimale, ne nécessitant pas une connaissance précise de ces paramètres.

Pour avoir une vision physique de ce problème, on doit d'abord observer que, d'après les prédictions théoriques (**Tableau 3.3**), le tenseur gyromagnétique est très anisotrope, avec $\gamma_y >> \gamma_z, \gamma_x$. Ceci survient à la fois dans l'état fondamental et dans l'état excité. Si le champ magnétique appliqué a une composante importante selon Oy, les champs magnétiques effectifs $\hat{B}_{eff}^{(g)}$ et $\hat{B}_{eff}^{(e)}$ seront quasiment alignés selon Oy. L'angle α_{eff} résultant sera très petit, ce qui correspondra à un faible taux de branchement R. On comprend que s'il existe une direction optimale du champ magnétique, elle sera fortement écartée de la direction Oy (donc proche du plan xOz). Les valeurs théoriques indiquent également que l'anisotropie du tenseur gyromagnétique est beaucoup plus importante dans l'état fondamental que dans l'état excité.

Considérons un champ magnétique appliqué dans le plan xOz. Si, partant de 0, on ajoute progressivement une petite composante à ce champ dans la direction Oy, la composante selon Oy de $\hat{B}_{eff}^{(g)}$ va croître beaucoup plus rapidement que celle de $\hat{B}_{eff}^{(e)}$ à cause l'anisotropie plus importante dans l'état fondamental que dans l'état excité. L'angle α_{eff} résultant devrait être important dans cette configuration de faible composante selon Oy du champ magnétique appliqué $\vec{B}$.

Il est intéressant de rechercher l'angle maximal dont on doit écarter le champ magnétique appliqué du plan xOz pour obtenir un taux de branchement important. Si l'on part de la situation dans laquelle $\vec{B}$ se trouve dans le plan xOz, les champs magnétiques effectifs $\hat{B}_{eff}^{(e)}$ et $\hat{B}_{eff}^{(g)}$ se trouvent également dans ce plan. Soit χ l'angle entre les vecteurs $\hat{B}_{eff}^{(e)}$ et $\hat{B}_{eff}^{(g)}$ dans le plan xOz. On peut y effectuer un changement de repère, de façon à ce que l'axe Ox' du nouveau repère x'Oz' soit dirigé selon $\hat{B}_{eff}^{(e)}$ (**Figure 3.5**).

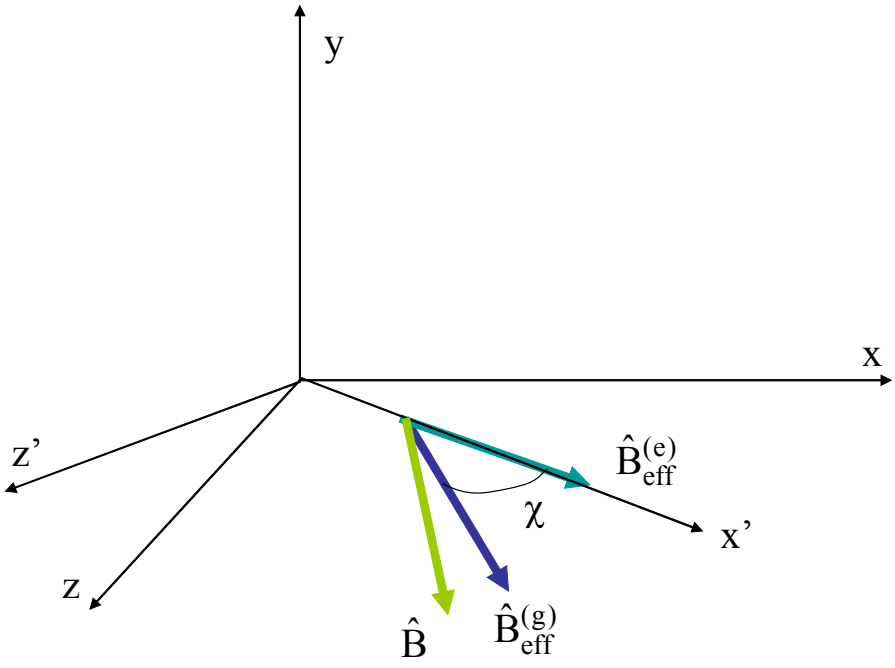

Figure 3.5 : Changement de repère dans le plan xOz

D'après la discussion précédente, on s'attend à ce que le taux de branchement soit maximal lorsque l'on écarte légèrement le champ appliqué d'un angle φ du plan xOz. On suppose que les directions des projections de $\hat{B}_{eff}^{(e)}$ et $\hat{B}_{eff}^{(g)}$ dans le plan xOz ne varient pas lors de ce faible écart du champ appliqué. Soit $B\varphi$ la composante de $\vec{B}$ selon Oy, avec B la norme de $\vec{B}$ et $\varphi << 1$. $\hat{B}_{eff}^{(e)}$ et $\hat{B}_{eff}^{(g)}$ s'écrivent alors:

$$\hat{B}_{eff}^{(e)} = \left(1, Y_{(e)}, 0\right) / \sqrt{1+Y_{(e)}^2}\ ,\ \hat{B}_{eff}^{(g)} = \left(\cos\chi, Y_{(g)}, \sin\chi\right) / \sqrt{1+Y_{(g)}^2} \qquad (1.56)$$

avec $Y_{(i)} = \eta_{(i)}\varphi$ et $\eta_{(i)} = \gamma_y^{(i)} / \sqrt{\gamma_x^{(i)2} + \gamma_z^{(i)2}}$. La probabilité de transition avec retournement de spin s'écrit alors:

$$\left|<-|+>\right|^2 = \frac{1}{2}\left[1-\cos\alpha^{(eff)}\right] = \frac{1}{2}\left[1-\frac{\cos\chi + Y_{(g)}Y_{(e)}}{\sqrt{1+Y_{(g)}^2}\sqrt{1+Y_{(e)}^2}}\right] \qquad (1.57)$$

La dérivée par rapport à φ s'annule lorsque:

$$\varphi\left\{2\eta_{(e)}\eta_{(g)} - \left(\eta_{(e)}^2 + \eta_{(g)}^2\right)\cos\chi + \varphi^2\eta_{(e)}\eta_{(g)}\left[\left(\eta_{(e)}^2 + \eta_{(g)}^2\right) - 2\eta_{(e)}\eta_{(g)}\cos\chi\right]\right\} = 0 \quad (1.58)$$

Deux cas doivent être considérés:

1. <u>Le binôme entre accolades a des racines réelles:</u>

La probabilité de transition est alors minimum à $\varphi = 0$ et maximum à:

$$\varphi^2 = \frac{1}{\eta_{(e)}\eta_{(g)}} \frac{\left(\eta_{(e)}^2 + \eta_{(g)}^2\right)\cos\chi - 2\eta_{(e)}\eta_{(g)}}{\left(\eta_{(e)}^2 + \eta_{(g)}^2\right) - 2\eta_{(e)}\eta_{(g)}\cos\chi} \tag{1.59}$$

Les racines réelles existent si:

$$\cos\chi \geq 2\eta_{(e)}\eta_{(g)} / \left(\eta_{(e)}^2 + \eta_{(g)}^2\right) \tag{1.60}$$

La valeur maximum de la probabilité de transition s'écrit:

$$\left|< - | + >\right|^2 = \frac{1}{2}(1-\xi) \tag{1.61}$$

où:

$$\xi = \frac{2\eta_{(e)}\eta_{(g)}}{\eta_{(g)}^2 - \eta_{(e)}^2} \sqrt{\left(\frac{\eta_{(e)}}{\eta_{(g)}} + \frac{\eta_{(g)}}{\eta_{(e)}}\right)\cos\chi - \left(1 + \cos^2\chi\right)} \tag{1.62}$$

et le taux de branchement s'écrit:

$$R = (1-\xi)/(1+\xi) \tag{1.63}$$

2. <u>Le binôme entre accolades n'a pas de racines réelles:</u>

La probabilité de transition est alors maximum à $\varphi = 0$ et le taux de branchement s'écrit:

$$R = (1-\cos\chi)/(1+\cos\chi) \tag{1.64}$$

On se restreint maintenant au cas $\eta_{(e)} << \eta_{(g)}$. ξ se réduit alors à:

$$\xi = \frac{2\eta_{(e)}}{\eta_{(g)}} \sqrt{\frac{\eta_{(g)}}{\eta_{(e)}}\cos\chi - \left(1 + \cos^2\chi\right)} \tag{1.65}$$

et R s'écrit $R = (1-\xi)/(1+\xi)$ ou $R = (1-\cos\chi)/(1+\cos\chi)$ selon que $\cos\chi$ est supérieur ou inférieur à $2\eta_{(e)}/\eta_{(g)}$. Le taux de branchement maximum varie rapidement en fonction de χ. La valeur minimale est obtenue pour $\chi = 0$ (projection des champs effectifs $\hat{B}_{eff}^{(e)}$ et $\hat{B}_{eff}^{(g)}$ paralèlles dans le plan xOz). On a alors:

$$\xi \approx 2\sqrt{\eta_{(e)}/\eta_{(g)}} \tag{1.66}$$

mais R peut atteindre l'unité pour $\chi = \pi/2$ (projection des champs effectifs $\hat{B}_{eff}^{(e)}$ et $\hat{B}_{eff}^{(g)}$ orthogonales dans le plan xOz). La valeur maximale de R dépend donc fortement de celle de χ , qui dépend elle-même de celle des paramètres gyromagnétiques γ_x et γ_z. On constate néanmoins que quel que soit χ, l'angle φ dont on doit écarter le champ appliqué du plan xOz pour obtenir le taux de branchement maximal ne doit pas excéder $1/\sqrt{\eta_{(e)}\eta_{(g)}}$, conformément à l'équation. (1.59). D'après les valeurs théoriques (**Tableau 3.3**), ceci correspond à un écart maximal de l'ordre de 6°.

3.3.3 Prévisions pour les différents sites en fonction de l'orientation du champ magnétique appliqué

Nous allons maintenant utiliser les valeurs théoriques du tenseur gyromagnétique pour prévoir l'écart énergétique entre les sous niveaux et la valeur du taux de branchement correspondante dans différentes situations et pour les différents sites. Nous allons voir que la vision simple de la situation optimale décrite dans la section précédente se retrouve dans les résultats des calculs présentés ici.

On suppose que le champ magnétique est orienté dans le plan bissecteur orthogonal à $[1,\bar{1},0]$. Soit θ l'angle entre la direction du champ magnétique et la verticale $[0,0,1]$. Alors les coordonnées du champ magnétique s'écrivent, dans le repère du cristal. :

$$\vec{B}=B_0\left[\frac{1}{\sqrt{2}}\sin\theta,\frac{1}{\sqrt{2}}\sin\theta,\cos\theta\right] \tag{1.67}$$

Du fait de la symétrie par rapport au plan bissecteur, on doit considérer 4 classes de sites différents:

- site 1
- site 2
- sites 3 et 5
- sites 4 et 6

On suppose également que la direction de polarisation de la lumière incidente se trouve dans le plan bissecteur, de sorte que le dipôle de transition du site 2 lui est orthogonal. Les ions situés

dans le site 2 n'interagissent pas avec la lumière et on pourra donc ignorer ce site par la suite. Les vecteurs de base des axes locaux des sites 1, 3 et 4 s'écrivent:

$$\vec{i}_1 \begin{vmatrix} 1/\sqrt{2} \\ -1/\sqrt{2} \\ 0 \end{vmatrix}, \vec{j}_1 \begin{vmatrix} 1/\sqrt{2} \\ 1/\sqrt{2} \\ 0 \end{vmatrix}, \vec{k}_1 \begin{vmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{vmatrix} \tag{1.68}$$

$$\vec{i}_3 \begin{vmatrix} 0 \\ 1/\sqrt{2} \\ -1/\sqrt{2} \end{vmatrix}, \vec{j}_3 \begin{vmatrix} 0 \\ 1/\sqrt{2} \\ 1/\sqrt{2} \end{vmatrix}, \vec{k}_3 \begin{vmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \end{vmatrix} \tag{1.69}$$

$$\vec{i}_4 \begin{vmatrix} 0 \\ 1/\sqrt{2} \\ 1/\sqrt{2} \end{vmatrix}, \vec{j}_4 \begin{vmatrix} 0 \\ -1/\sqrt{2} \\ 1/\sqrt{2} \end{vmatrix}, \vec{k}_4 \begin{vmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \end{vmatrix} \tag{1.70}$$

Les coordonnées du champ magnétique dans ces repères locaux s'écrivent:

- Site 1: $\vec{B}=B_0\left[0,\sin\theta,\cos\theta\right]$
- Site 3: $\vec{B}=B_0\left[\frac{\sqrt{3}}{2}\sin\left(\theta-\theta_0\right),\frac{\sqrt{3}}{2}\sin\left(\theta+\theta_0\right),\frac{1}{\sqrt{2}}\sin\theta\right]$
- Site 4: $\vec{B}=B_0\left[\frac{\sqrt{3}}{2}\sin\left(\theta+\theta_0\right),-\frac{\sqrt{3}}{2}\sin\left(\theta-\theta_0\right),\frac{1}{\sqrt{2}}\sin\theta\right]$

avec $\theta_0 = \arccos\left(1/\sqrt{3}\right)$.

A partir des coordonnées du champ magnétique dans les repères locaux et des valeurs théoriques des facteurs gyromagnétiques dans l'état fondamental et dans l'état excité, on peut calculer grâce aux équations (1.46), (1.47) et (1.53) les écarts énergétiques entre les sous niveaux de $^3H_6$ et de $^3H_4$ et le taux de branchement R pour les différents sites. Les **Figures 3.6** et **3.7** présentent respectivement les variations de R et de Δ en fonction de l'angle θ pour les trois classes de sites 1, 3-5 et 4-6. La valeur particulière $\theta = \theta_0$ correspond à l'annulation de la composante locale B_y du champ appliqué dans le repère local des sites 4-6. Pour ces sites, R et Δ présentent un minimum pour $\theta = \theta_0$, et croissent rapidement autour de ce minimum. On observe que l'on peut obtenir un taux de branchement R relativement important $\left(R \square 0.24\right)$. Ceci confirme bien la présentation simple faite dans la section précédente où l'on a vu qu'un écart de quelques degrés du champ appliqué avec le plan xOz du repère local du site pouvait permettre d'atteindre des valeurs élevées de taux de branchement.

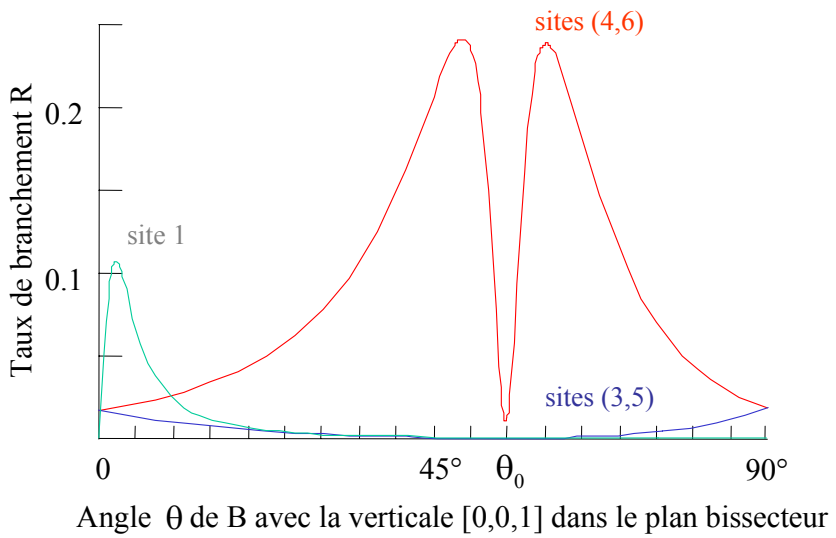

Figure 3.6: Taux de branchement pour les sites 1 (vert), 3-5 (bleu) et 4-6 (rouge) en fonction de l'angle θ du champ magnétique avec la verticale de la cellule cristalline élémentaire $[0,0,1]$.

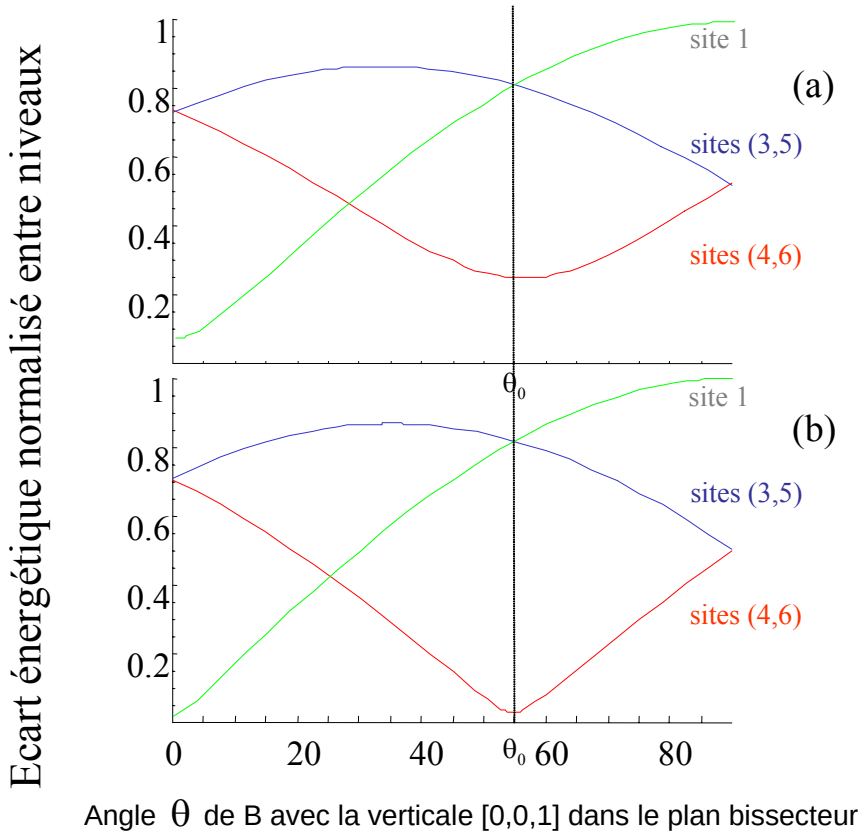

Figure 3.7: Ecart énergétique normalisé entre les sous niveaux de l'état fondamental ((b), figure du bas) et de l'état excité ((a), figure du haut) pour le site 1 (vert), 3-5 (bleu) et 4-6 (rouge), en fonction de l'angle θ du champ magnétique avec la verticale de la cellule cristalline élémentaire $[0,0,1]$. La position particulière $\theta = \theta_0$ qui correspond à un R minimum pour les sites 4-6 correspond également à un écart énergétique minimum dans l'état fondamental et dans l'état excité pour ces sites.

Nous avons effectué la spectroscopie de l'ion Tm^{3+} : YAG en champ magnétique en faisant varier l'orientation θ du champ magnétique dans le plan bissecteur, ainsi que la direction de polarisation du champ électrique excitateur de façon à contrôler les classes de sites interagissant avec la lumière. Dans chacune de ces situations, les quantités les plus facilement mesurables sont les écarts énergétiques entre les sous niveaux hyperfins de l'état fondamental et de l'état excité. Nous allons en détailler les résultats attendus et préciser comment les relier aux facteurs gyromagnétiques et aux taux de branchement dans différents cas remarquables.

a) Champ magnétique le long de [1,1,0]

Cette direction correspond à $\theta = \pi/2$. Les sites 3, 4, 5 et 6 sont alors équivalents.

- Site 1: $\Delta = \gamma_y B_0$. La composante du spin nucléaire selon Oy est un bon nombre quantique, ce qui signifie qu'une transition électronique ne peut pas réaliser de retournement de spin nucléaire. Le taux de branchement R est nul.
- Sites 3-6: $\Delta = \frac{1}{2} B_0 \left[\gamma_x^2 + \gamma_y^2 + 2\gamma_z^2\right]^{1/2}$.

Si on pose:

$$r^{(e)} = \gamma_x^{(e)} / \gamma_y^{(e)},\ r^{(g)} = \gamma_x^{(g)} / \gamma_y^{(g)},\ s^{(e)} = \gamma_z^{(e)} / \gamma_y^{(e)},\ s^{(g)} = \gamma_z^{(g)} / \gamma_y^{(g)} \quad (1.71)$$

et si, on suppose, comme le permettent les valeurs théoriques (**Tableau 3.3**), que $r^{(e)}, r^{(g)}, s^{(e)}, s^{(g)} << 1$, on obtient, au premier ordre, l'expression reliant le taux de branchement aux facteurs gyromagnétiques :

$$R = \frac{1}{4}\left(r^{(e)} - r^{(g)}\right)^2 + \frac{1}{2}\left(s^{(e)} - s^{(g)}\right)^2 \quad (1.72)$$

b) Champ magnétique le long de [111]

Cette situation correspond à $\theta = \theta_0$. Les sites 1, 3 et 5 sont alors équivalents. Pour ces sites, l'écart énergétique entre sous niveaux s'écrit:

$$\Delta = \frac{B_0}{\sqrt{3}}\left[2\gamma_y^2 + \gamma_z^2\right]^{1/2} \quad (1.73)$$

Dans l'expression du taux de branchement, les termes en $r^{(e)}$ et $r^{(g)}$ sont nuls puisque $B_x = 0$. On obtient, au premier ordre:

$$R = \frac{1}{8}\left(s^{(e)} - s^{(g)}\right)^2 \tag{1.74}$$

Les site 4 et 6 sont particulièrement intéressants dans cette configuration car le terme principal, proportionnel à B_y, est nul. L'écart énergétique s'écrit :

$$\Delta = \frac{B_0}{\sqrt{3}}\left[2\gamma_x^2 + \gamma_z^2\right]^{1/2} \tag{1.75}$$

Le taux de branchement vaut alors:

$$R = \frac{2\left(\gamma_x^{(e)}\gamma_z^{(g)} - \gamma_z^{(e)}\gamma_x^{(g)}\right)^2}{\left[\left(2\gamma_x^{(e)2} + \gamma_z^{(e)2}\right)^{1/2}\left(2\gamma_x^{(g)2} + \gamma_z^{(g)2}\right)^{1/2} + 2\gamma_x^{(e)}\gamma_x^{(g)} + \gamma_z^{(e)}\gamma_z^{(g)}\right]^2} \tag{1.76}$$

c) Champ magnétique orienté selon [0,0,1]

- Site 1: $\Delta = \gamma_z B_0$. La composante du spin nucléaire selon Oz est un bon nombre quantique, ce qui signifie qu'une transition électronique ne peut pas réaliser de retournement de spin nucléaire. Le taux de branchement R est nul.

- Les sites 3, 4, 5 et 6 sont équivalents. Leur écart énergétique s'écrit:

$$\Delta = \frac{B_0}{\sqrt{2}}\left[\gamma_x^2 + \gamma_y^2\right]^{1/2} \tag{1.77}$$

Le taux de branchement s'exprime de la façon suivante:

$$R = \frac{1}{4}\left(r^{(e)} - r^{(g)}\right)^2 \tag{1.78}$$

On a résumé les données de ces trois cas remarquables dans le **Tableau 3.2**. Nous allons maintenant décrire les expériences de spectroscopie que nous avons réalisées dans le but de vérifier ces prévisions et de mesurer expérimentalement les facteurs gyromagnétiques dans l'état fondamental et dans l'état excité.

	Site 1	Sites 3 et 5	Sites 4 et 6
B // [1, 1, 0]	0	$\frac{1}{4}\left(r^{(e)}-r^{(g)}\right)^2 + \frac{1}{2}\left(s^{(e)}-s^{(g)}\right)^2$	$\frac{1}{4}\left(r^{(e)}-r^{(g)}\right)^2 + \frac{1}{2}\left(s^{(e)}-s^{(g)}\right)^2$
B // [1, 1, 1]	$\frac{1}{8}\left(s^{(e)}-s^{(g)}\right)^2$	$\frac{1}{8}\left(s^{(e)}-s^{(g)}\right)^2$	$\frac{2\left(q^{(g)}-q^{(e)}\right)^2}{\left[\left(2+q^{(e)2}\right)^{1/2}\left(2+q^{(g)2}\right)^{1/2}+2+q^{(e)}q^{(g)}\right]^2}$
B // [0, 0, 1]]	0	$\frac{1}{4}\left(r^{(e)}-r^{(g)}\right)^2$	$\frac{1}{4}\left(r^{(e)}-r^{(g)}\right)^2$

Tableau 3.2 : Taux de branchement en fonction de l'orientation du champ magnétique. Le facteur q est défini comme q=s/r.

3.4 Conditions expérimentales

3.4.1 Situations explorées

Les trois situations explorées expérimentalement (en ce qui concerne l'orientation du champ magnétique appliqué et la polarisation de la lumière incidente) sont représentées sur la **Figure 3.8**. Le champ magnétique a été successivement dirigé suivant la diagonale de la cellule élémentaire [1,1,1], ce qui correspond à $\theta = \theta_0$ [(a) et (b)], et le long de l'axe du cristal [0,0,1], ce qui correspond à $\theta = \pi/2$ (c). Le rayon lumineux est polarisé soit selon [1, 1, 1], orthogonalement aux dipôles de transition des sites 4 et 6, de façon à interagir seulement avec les sites 1, 3, et 5 dans le cas (a) ; soit selon [$\bar{1}$, $\bar{1}$, 1], orthogonalement aux dipôles de transition des sites 3 et 5, de façon à interagir seulement avec les sites 1, 4, et 6 dans le cas (b) ; soit selon [0,0,1], orthogonalement au dipôle de transition du site 1, de façon à interagir seulement avec les sites 3, 4, 5 et 6 dans le cas (c).

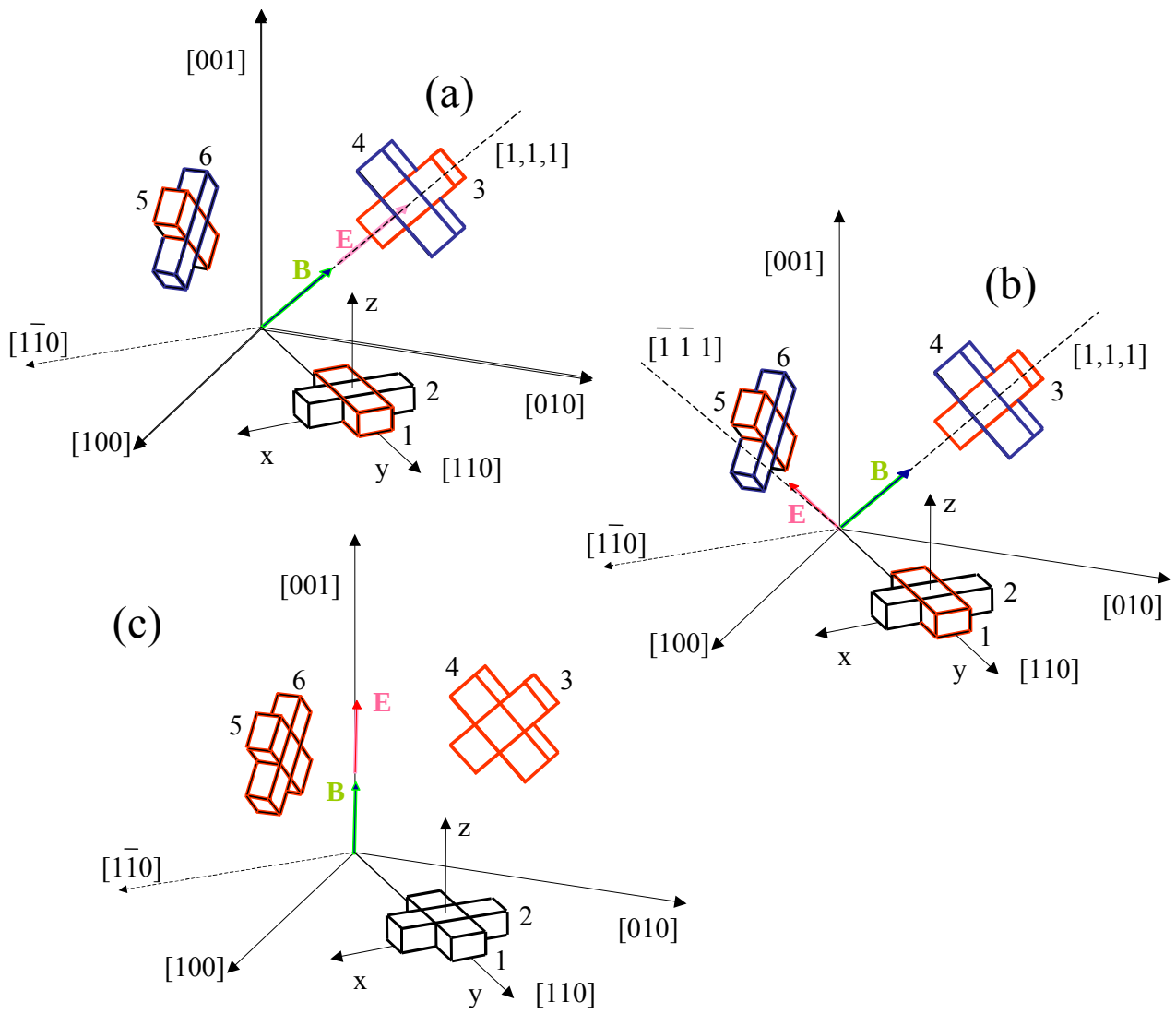

Figure 3.8 : Orientation du champ magnétique et direction de polarisation de la lumière dans les trois configurations explorées expérimentalement. Dans les cas (a) et (b) B est dirigé le long de la diagonale de la cellule élémentaire [1,1,1]. Le cas (a) correspond à un rayon lumineux polarisé le long de [1, 1, 1]. La lumière interagit alors seulement avec les sites 1, 3 et 5 qui sont équivalents. Dans le cas (b) le rayon lumineux est polarisé le long de $[\bar{1},\bar{1},1]$ et interagit seulement avec les sites 1, 4, et 6. Les sites 4 et 6 sont équivalents. Dans le cas (c) B est le long de l'axe du cristal [0,0,1]. Le rayon lumineux est polarisé dans la même direction et interagit avec les sites 3, 4, 5, et 6 qui sont équivalents.

3.4.2 Principe des expériences : hole burning spectral

Dans le but de mesurer les écarts énergétiques entre les sous niveaux hyperfins de l'état fondamental et de l'état excité et d'en déduire les facteurs gyromagnétiques correspondants, nous avons réalisé des expériences de hole burning spectral. Elles sont constituées de deux phases. Dans la première, on illumine l'échantillon à une fréquence fixe, de façon répétitive.

Par pompage optique vers l'autre sous niveau hyperfin, on modifie les populations atomiques des sous niveaux de l'état fondamental. Dans la deuxième phase, on visualise cette modification des populations atomiques en observant la transmission d'un faisceau sonde très atténué, balayé en fréquence. On fait les suppositions suivantes:

- Lors de la phase de "sonde", tous les ions sont retournés dans l'état fondamental. Il ne reste plus d'ions dans le niveau relais $^3F_4$, ce qui implique de laisser un temps de l'ordre d'une dizaine de ms entre la phase d'excitation et la phase de lecture, étant donné la durée de vie de □ 10ms de ce niveau relais.
- La probabilité de transition avec retournement de spin nucléaire (« *interdite* ») est petite devant la probabilité de transition directe (« *autorisée* »). Ainsi, on négligera l'excitation des transitions interdites par le faisceau sonde (très atténué).

Comme nous travaillons sur des échantillons présentant un fort élargissement inhomogène, différents types d'ions vont absorber la lumière à la fréquence de pompe ω_0, sur différentes transitions. On désignera par Δ_g l'écart énergétique entre sous niveaux de l'état fondamental et par Δ_e celui entre sous niveaux de l'état excité. Nous allons présenter le spectre de trous et d'anti-trous attendus lors du balayage en fréquence du faisceau sonde. Ce spectre est symétrique par rapport à la fréquence de pompe. Nous décrivons sur la **Figure 3.9** les transitions ayant lieu à des fréquences supérieures à cette fréquence centrale. Le premier diagramme (I) est le seul où l'excitation à lieu sur la transition autorisée. L'exposition répétée pompe les ions vers l'autre sous niveau hyperfin de l'état fondamental. La diminution de population des ions dans le sous niveau hyperfin de départ diminue l'absorption du faisceau sonde à la fréquence ω_0 et donne donc lieu à un trou à ω_0 dans la bande d'absorption. L'augmentation de la population des ions dans l'autre sous niveau, situé à la fréquence $\Delta_g - \Delta_e$ du niveau de départ, augmente l'absorption du faisceau sonde à cette fréquence. Ceci donne lieu à un anti-trou dans la bande d'absorption à $\Delta_g - \Delta_e$ de la fréquence centrale. Dans le deuxième et le troisième diagramme (II et III), la transition résonante à la fréquence d'excitation est interdite. Le pompage vers l'autre sous niveau de l'état fondamental donne lieu, dans la bande d'absorption, respectivement à un anti-trou situé à Δ_g et à un trou situé à Δ_e de la fréquence d'excitation.

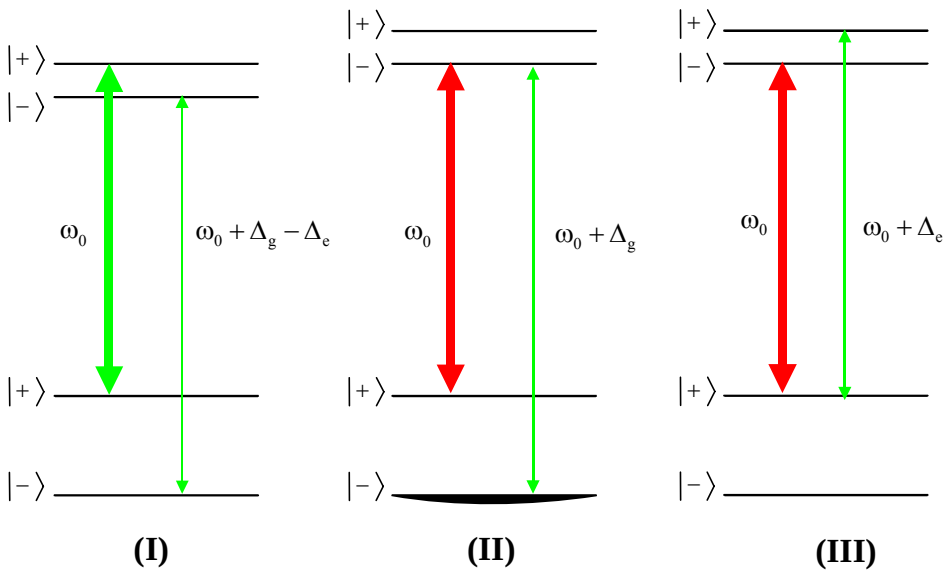

Figure 3.9: Transitions excitées par la pompe (en gras) et transitions contribuant à l'absorption du faisceau sonde (traits fins). Les transitions permises (respectivement interdites) sont représentées en vert (respectivement rouge). En plus du trou principal à ω_0, on attend deux anti-trous à $\omega_0 + \Delta_g - \Delta_e$ et à $\omega_0 + \Delta_g$, et un trou à $\omega_0 + \Delta_e$.

Il faut considérer deux schémas de pompage différents, selon que celui-ci a lieu sur une transition permise ou sur une transition interdite. Considérons tout d'abord que le pompage excite une transition permise. L'excitation vers le niveau supérieur se fait avec un taux P. La désexcitation vers le niveau initial est une transition permise, qui se fait via le niveau métastable à un taux Γ_2. La désexcitation vers l'autre sous niveau de l'état fondamental est partiellement interdite. Ce processus non radiatif, qui a également lieu via le niveau métastable $^3F_4$, peut obéir à des règles de sélection spécifiques. On notera $\Gamma_2 R_1$ le taux de désexcitation correspondant, où le taux de branchement R_1 peut différer du taux de branchement optique R. Une fraction $R_1/(1+R_1)$ des ions excités est donc pompée vers l'autre sous niveau de l'état fondamental. Le taux de pompage vers ce niveau s'écrit donc $PR_1/(1+R_1)$. Le niveau initial est totalement dépeuplé si le taux de désexcitation des sous niveaux hyperfins Γ_s est très petit devant $PR_1/(1+R_1)$. Quand le pompage a lieu sur une transition interdite, la transition vers le niveau excité est réalisée avec le taux PR. Une fraction $1/(1+R_1)$ des ions se désexcitent, par transition permise, vers l'autre sous niveau de l'état fondamental. Le taux de pompage vers ce

niveau s'écrit $PR/(1+R_1)$. Ainsi le processus de pompage a la même efficacité dans les deux cas si $R = R_1$. De façon générale, le rapport entre l'efficacité du pompage sur la transition permise et celle du pompage sur la transition interdite est égal à R_1/R.

3.4.3 Dispositif expérimental

Les expériences sont réalisées sur un échantillon de Tm^{3+}: YAG de faible concentration (0.1 %) refroidi à 1.5 K dans un cryostat à hélium liquide. Le cristal, développé à Scientific Materials Corp., est coupé et poli orthogonalement à la direction $[1, \bar{1}, 0]$. La dimension du cristal le long de la direction de propagation de la lumière $[1, \bar{1}, 0]$ est de 5 mm, ce qui correspond à une densité optique de l'ordre de $\square\ 0,2$.

Le dispositif expérimental est représenté sur la **Figure 3.10**. On utilise une diode laser à 793 nm en cavité étendue, fermée par un réseau de diffraction en configuration de Littrow. Le laser est asservi sur une cavité Fabry-Perot de 10 cm de haute finesse (~3000) en utilisant le schéma de Pound-Drever-Hall. La boucle de rétroaction est fermée sur un cristal électro-optique intracavité. Ce laser offre une stabilité relative de 250 Hz sur une durée de l'ordre de 10ms [3]. Le faisceau lumineux est filtré spatialement dans une fibre optique, puis est focalisé dans un modulateur accousto-optique (AO1) qui met en forme l'impulsion en amplitude et en phase. Un générateur d'impulsions (Stanford Research DG 535) déclenche le générateur de forme arbitraire haute fréquence (Sony Tektronix AWG 520) qui produit point par point l'onde radio fréquence à 100 MHz utilisée pour commander le modulateur AO1 à travers un amplificateur RF. On peut ainsi mettre en forme les impulsions de pompe et de sonde avec l'excellente précision de 1 Gigaéchantillon/s et la dynamique en amplitude de 10 bits de l'AWG520. La puissance de l'onde RF utilisée pour commander le modulateur AO1 est ajustée de telle manière à ce qu'il opère en régime linéaire, c'est-à-dire que le champ électrique transmis est proportionnel à la tension appliquée. AO1 est placé en position d'imagerie par rapport à l'échantillon de Tm^{3+} : YAG de façon à ce que la zone illuminée du cristal soit immobile lorsque le faisceau sonde est balayé en fréquence par le modulateur. Le rayon du faisceau (waist) à $1/e^2$ sur le cristal est $w_1 \square 400\ \mu m$. La puissance de gravure à l'entrée du cryostat est typiquement de l'ordre de $P_1 \square 2\ mW$. La température exacte du cristal est difficile à contrôler précisément, car la sonde de température n'est pas au contact de l'échantillon. Elle est de l'ordre de 1.4 K, et varie légèrement selon la hauteur du niveau d'Hélium liquide dans le cryostat. Le cristal est imagé sur le modulateur acousto-optique AO2. Ce modulateur protège

des impulsions excitatrices la photodiode à avalanche (Hamamatsu C5460) de bande passante 10 MHz qui permet de détecter le faisceau sonde transmis. AO2 est également commandé par le générateur d'impulsions (Stanford Research DG 535), qui réalise une séquence temporelle. Cette séquence, répétée à un taux de l'ordre de quelques Hz, comprend deux étapes. La première consiste en une succession d'impulsions de gravure à fréquence fixe délivrées par AO1, espacées de 10 ms chacune. Pendant cette séquence, le modulateur AO2 est maintenu fermé pour protéger le détecteur de l'excitation. La deuxième consiste en une phase de lecture, située 10 ms après la dernière gravure, dans laquelle le faisceau sonde est très atténué en amplitude et balayé en fréquence par le modulateur AO1. Pendant cette séquence, le modulateur AO2 est ouvert pour permettre la détection du signal.

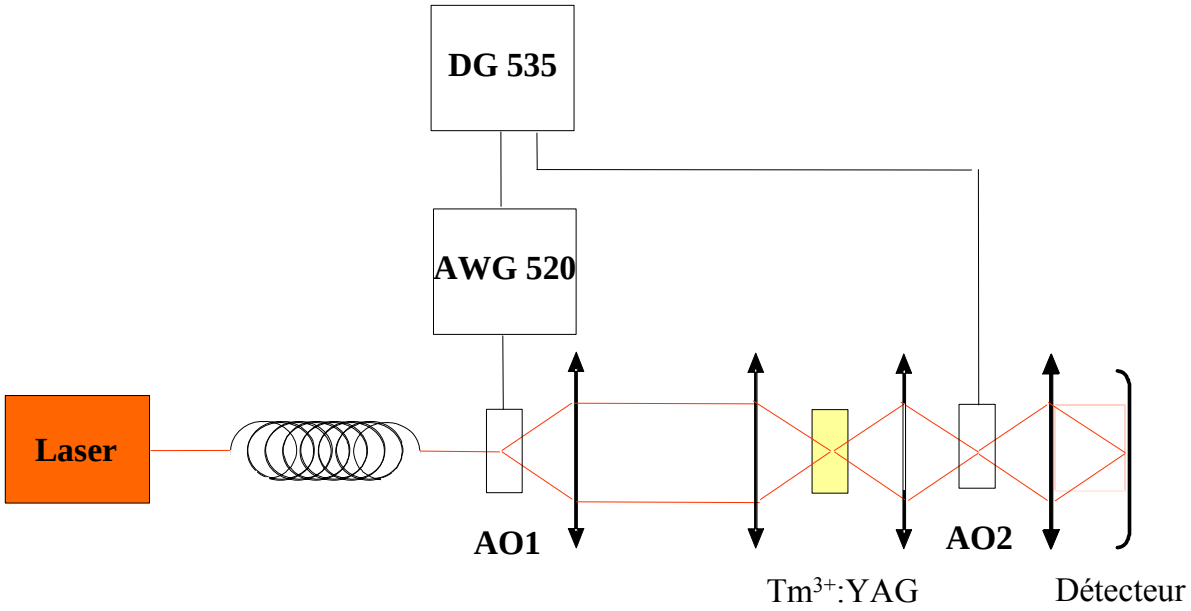

Figure 3.10: Montage expérimental incluant les dispositifs optiques et électroniques. Le rayon lumineux est filtré spatialement à travers une fibre optique. Les impulsions sont mises en forme par le modulateur accousto-optique AO1. Un générateur d'impulsions (DG 535) synchronise le générateur de forme arbitraire (Sony-Tektronix AWG 520) qui commande AO1. AO1 est imagé sur le cristal, qui est refroidi à 1.5 K dans un cryostat. Le cristal est imagé sur le modulateur AO2 qui est commandé par le générateur d'impulsions et protège le détecteur de l'excitation.

3.5 Résultats expérimentaux

3.5.1 Champ magnétique le long de [1,1,1]

a) Polarisation selon $[1,1,1]$

Le champ magnétique de 240 Gauss est dirigé le long de la diagonale de la cellule élémentaire du cristal [1,1,1]. Le rayon lumineux est polarisé dans la même direction [1,1,1]. Cette situation correspond au cas (a) de la **Figure 3.8** dans lequel la lumière n'interagit qu'avec les ions situés dans les sites 1, 3, et 5, qui sont équivalents. L'échantillon est soumis à dix excitations successives de 50µs à la fréquence ω_0. Après une attente de 10ms, le faisceau sonde est balayé sur un intervalle spectral de 17 MHz centré sur la fréquence ω_0 pendant une durée de 750µs. La transmission de ce faisceau sonde est reportée sur la **Figure 3.11**.

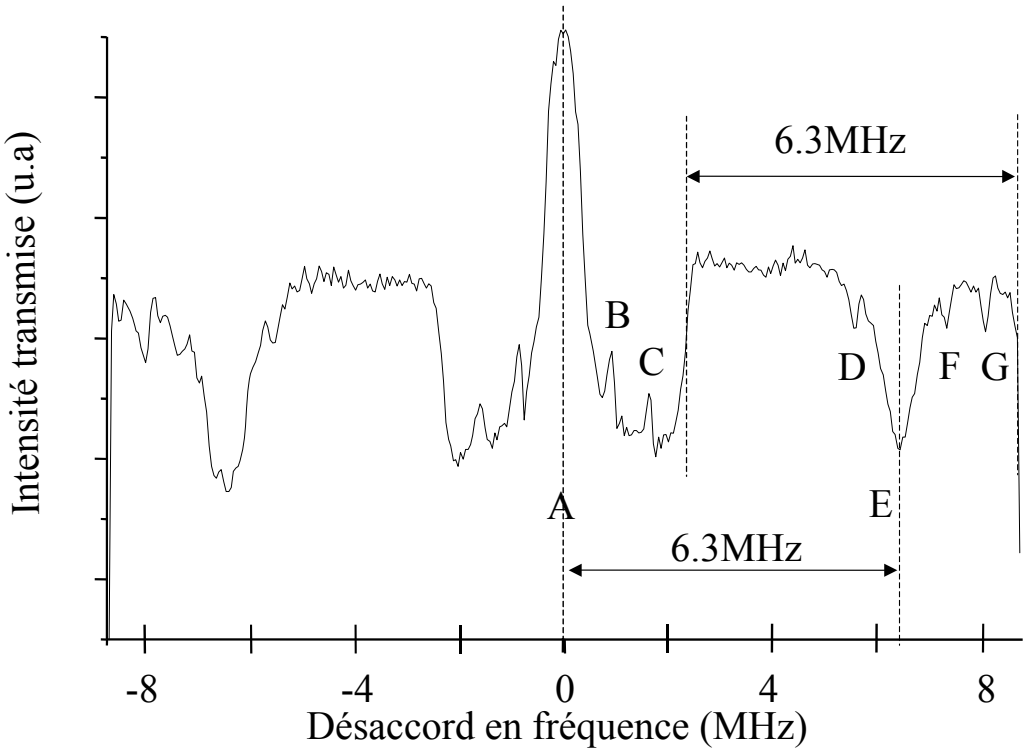

Figure 3.11: Données en champ faible avec B orienté paralèllement à [1,1,1]. La lumière est polarisée selon [1,1,1]. Le faisceau sonde est balayé sur un intervalle spectral de 17 MHz

Le creusement de trou spectral à la fréquence de pompe ω_0 est observé en position centrale A. Le trou en position B et les anti-trous localisés en D et F sont attribués à "Radio Bleue", dont la station installée à Villebon sur Yvette émet à haute puissance (300kW) à la

fréquence de 864kHz. Ceci module le laser à travers la boucle de rétroaction. Le trou en position C est attribué à la transition vers l'autre sous niveau de l'état excité et doit être situé à Δ_e de la fréquence de pompe. Les anti-trous en E et G sont attendus à $\left(\Delta_g - \Delta_e\right)$ et Δ_g respectivement de la fréquence de pompe. On observe de plus des bords abrupts situés à 6.3 MHz des extrémités de l'intervalle spectral balayé. Ceci coïncide avec la distance de l'anti-trou E à la fréquence centrale. La présence de ces bords abrupts est une manifestation du pompage indésirable effectué par le faisceau sonde. En effet, les ions situés à une distance supérieure à 6.3MHz = $\left(\Delta_g - \Delta_e\right)$ des extrémités du domaine balayé peuvent être pompés par le faisceau sonde vers l'autre sous niveau hyperfin mais, comme ils retombent à l'intérieur de l'intervalle spectral sondé, ils sont repompés par le faisceau sonde vers leur position initiale. Inversement, les ions situés à une distance inférieure à 6.3MHz des extrémités du domaine balayé sont pompés vers l'autre sous niveau hyperfin situé en dehors de la zone sondée et ne peuvent pas être ramenés dans leur position initiale par le faisceau sonde. On a résumé les mesures dans le tableau suivant :

A-B	A-C	A-E	A-G
860kHz	1.61 ± 0.03MHz	6.27 ± 0.03MHz	7.89 ± 0.03MHz

La modulation du laser par la station émettrice ajoute deux bandes latérales au champ excitateur. Ainsi les trous situés en B et C sont de nature totalement différente. Le trou en position B correspond à la lecture d'un trou creusé par une bande latérale à la fréquence à laquelle ce creusement a eu lieu. Au contraire, le trou situé en C correspond à la lecture du trou central à une fréquence différente de la fréquence à laquelle ce trou a été creusé. En effet, dans ce dernier cas, le faisceau sonde excite une transition vers l'autre sous niveau excité. Le caractère symétrique de la modulation du champ pompe peut être observé autour de l'anti-trou E: les anti-trous D et F manifestent le creusement par les bandes latérales de modulation. Ils sont également séparés de E. En revanche, l'anti-trou G n'est pas dû au creusement par une bande latérale puisqu'il n'apparaît que d'un côté de E. La **Figure 3.12**, obtenue dans les mêmes conditions et à plus haute température (avec un niveau d'Hélium dans le cryostat un peu plus bas), permet de n'observer que les structures pour lesquelles les opérations de pompage et de sonde sont réalisées sur des transitions permises (à savoir le trou à ω_0 et l'anti-trou à $\omega_0 + \left(\Delta_g - \Delta_e\right)$). D'après la discussion effectuée dans la section précédente, ceci nous permet

de tirer plusieurs enseignements. Les anti-trous produits sur la transition permise étant beaucoup plus grands que ceux produits sur la transition interdite (**Figures 3.11** et **3.12**), le taux de branchement à la désexcitation (R_1) est plus grand que celui correspondant à la transition directe (R). A basse température (**Figure 3.11**), les anti-trous sont creusés très efficacement sur la transition permise. Ceux produits sur la transition interdite sont visibles mais néanmoins beaucoup moins importants. On en déduit que :

$$\frac{PR_1}{1+R_1} >> \Gamma_S \quad \text{et} \quad \frac{PR}{1+R_1} \square \Gamma_S \tag{1.79}$$

En revanche, à température plus élevée, on a :

$$\frac{PR_1}{1+R_1} >> \Gamma_S >> \frac{PR}{1+R_1} \tag{1.80}$$

Dans cette configuration de champ magnétique orienté selon $[1,1,1]$, le taux de branchement R semble donc être particulièrement petit pour les sites 1, 3 et 5, conformément aux prévisions présentées sur la **Figure 3.6**.

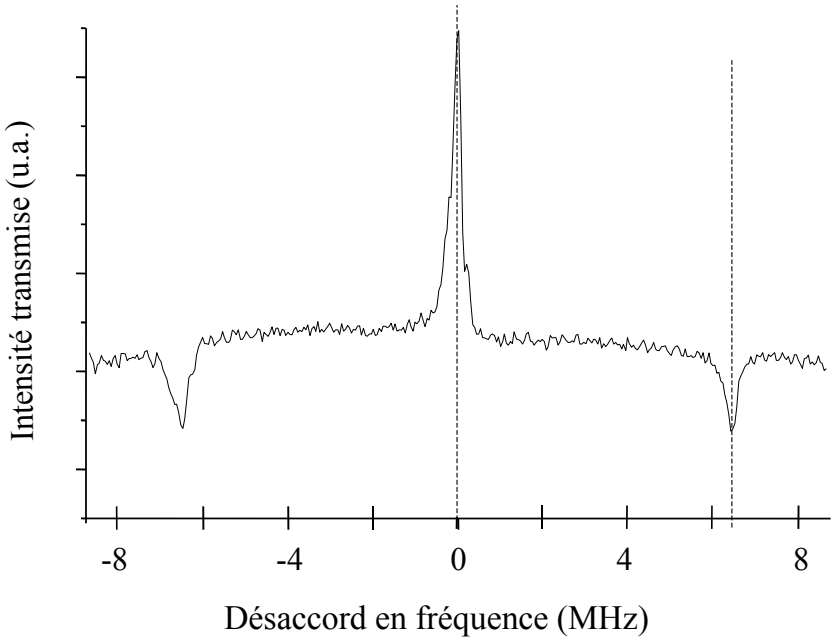

Figure 3.12: Données en champ faible avec B orienté selon [1,1,1]. La lumière est polarisée selon [1,1,1]. Le faisceau sonde est balayé sur un intervalle spectral de 17 MHz. La température est plus élevée que sur la **Figure 3.11**.

b) Polarisation selon $\left[\bar{1},\bar{1},1\right]$

Comme on l'a détaillé dans la section 3.2.3.b), dans laquelle on présentait les prévisions d'écart énergétique pour les différents sites dans les différentes situations remarquables, on

s'attend à mesurer pour les sites 4 et 6 des écarts beaucoup plus faibles que pour les sites 1, 3, et 5 avec un champ magnétique dirigé selon [1,1,1]. Ceci est dû à l'annulation de la contribution principale en γ_y pour les sites 4 et 6 car la composante B_y est nulle dans le repère local de ces sites. C'est une situation intéressante car elle va nous permettre de réaliser une mesure précise du paramètre $\left[2\gamma_x^2+\gamma_z^2\right]^{1/2}$ et donc d'accéder à des informations sur les valeurs de γ_x et γ_z, qui sont beaucoup plus délicates à obtenir lorsque la contribution dominante en γ_y ne s'annule pas. Pour pouvoir observer ces petits écarts énergétiques, on utilise un fort champ magnétique de 0.45 Teslas, toujours dirigé selon [1,1,1]. Le rayon lumineux est polarisé symétriquement au champ magnétique par rapport à [0,0,1]. Ceci correspond à la situation (b) de la **Figure 3.8**, dans laquelle le champ électrique n'interagit qu'avec les sites 1, 4 et 6. Les conditions expérimentales sont les mêmes que précédemment, mis à part l'intervalle spectral balayé par le faisceau sonde qui a été porté à 20 MHz. Les résultats sont présentés sur la **Figure 3.13**

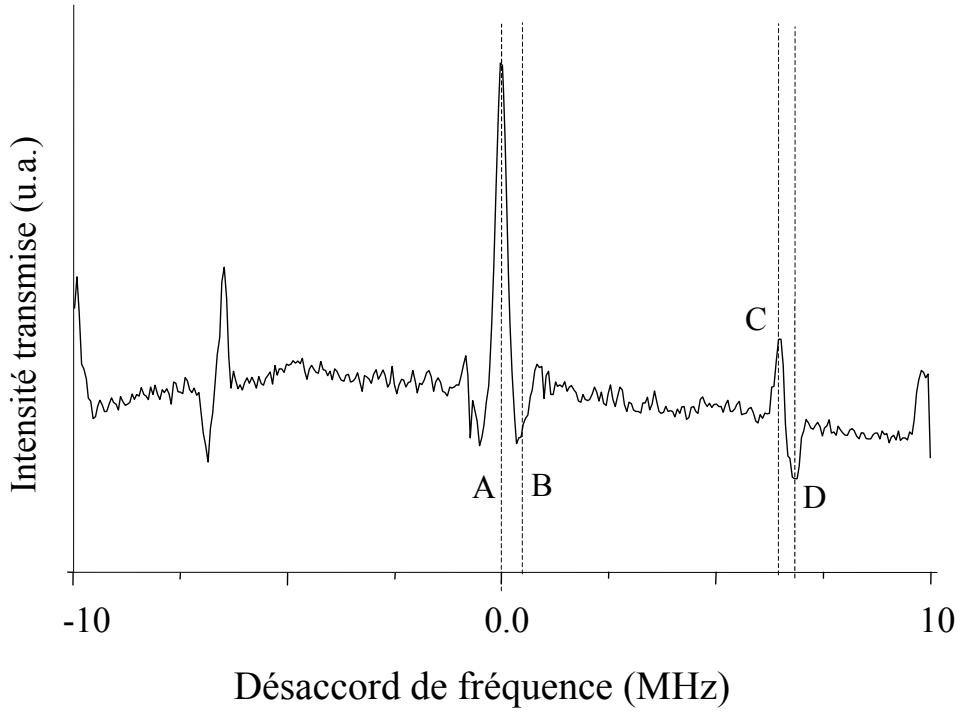

Figure 3.13: Données en champ fort avec B orienté selon [1,1,1]. La lumière est polarisée selon $[\bar{1},\bar{1},1]$. Le faisceau sonde est balayé sur un intervalle spectral de 20 MHz.

Dans de telles conditions de champ fort, le site 1 subit des écarts énergétiques extrêmement importants. Les trous et anti-trous correspondants sont situés en dehors de la zone balayée par le faisceau sonde. Le blanchiment à la fréquence ω_0 concerne donc les sites 1, 4 et

6 mais les trous et anti-trous présentés ici ne sont dûs qu'aux sites 4 et 6, qui sont équivalents. Le creusement de trou spectral à la fréquence de pompe apparaît en position A. Le trou C est attribué à la transition vers l'autre sous niveau excité et doit se situer à la distance Δ_e de la fréquence centrale. Les anti-trous en position B et D sont attendus à des positions $\left(\Delta_g - \Delta_e\right)$ et Δ_g respectivement de la fréquence de pompe. On résume les données dans le tableau suivant:

A-B	A-C	A-D
$0.4 \pm 0.03 MHz$	$6.5 \pm 0.03 MHz$	$6.9 \pm 0.03 MHz$

La précision sur la direction du champ magnétique appliqué $\vec{B}$ est de l'ordre de 0,5°. Comme la direction $\theta = \theta_0$ est un minimum de la courbe $\Delta = f\left(\theta\right)$ (**Figure 3.7**), on peut négliger l'influence de cette incertitude sur les mesures. Les bords abrupts situés près des extrémités de l'intervalle sondé reflètent encore une fois le pompage des ions par le faisceau sonde, comme nous l'avons discuté dans la section précédente. Nous avons vérifié que leur distance aux extrémités de l'intervalle sondé ne change pas lorsque l'on fait varier la taille de cet intervalle spectral. Cette distance coïncide avec la distance de l'anti-trou B à la fréquence centrale. Les ions situés à une distance >0.4MHz des extrémités peuvent être pompés vers l'autre sous niveau hyperfin par le faisceau sonde mais, comme ils retombent dans l'intervalle sondé, ils sont ensuite ramenés dans leur position initiale. Au contraire, les ions situés à une distance <0.4MHz des extrémités ne peuvent pas être ramenés à leur position initiale une fois pompés par le faisceau sonde, puisqu'ils tombent en dehors de l'intervalle spectral sondé.

3.5.2 Champ magnétique le long de [001]

On se place de nouveau dans des conditions de champ faible puisqu'on mesure des écarts énergétiques très supérieurs au cas précédent. Le champ magnétique de 240 Gauss est orienté le long de l'axe vertical de la cellule élémentaire du cristal [0,0,1]. Le rayon lumineux est polarisé dans la même direction [0,0,1]. Cette situation correspond au cas (c) de la **Figure 3.8**, dans lequel le champ électrique interagit seulement avec les sites 3, 4, 5, et 6 qui sont équivalents. Les conditions expérimentales sont les mêmes que précédemment, mis à part la taille de l'intervalle spectral balayé par le faisceau sonde qui est de 20 MHz, et le délai entre la dernière excitation et la phase de sonde qui a été porté à 30 ms. Les **Figures 3.11** et **3.13**

correspondent à une situation dans laquelle le cristal est presque immergé dans un bain d'Hélium liquide. La **Figure 3.12** a été réalisée à une température un peu plus haute. Il en est de même pour les résultats présentés ici sur la **Figure 3.14** pour laquelle, comme dans le cas de la **Figure 3.12**, on n'observe ni élargissement du pic central par saturation de la transition, ni pompage par le faisceau sonde.

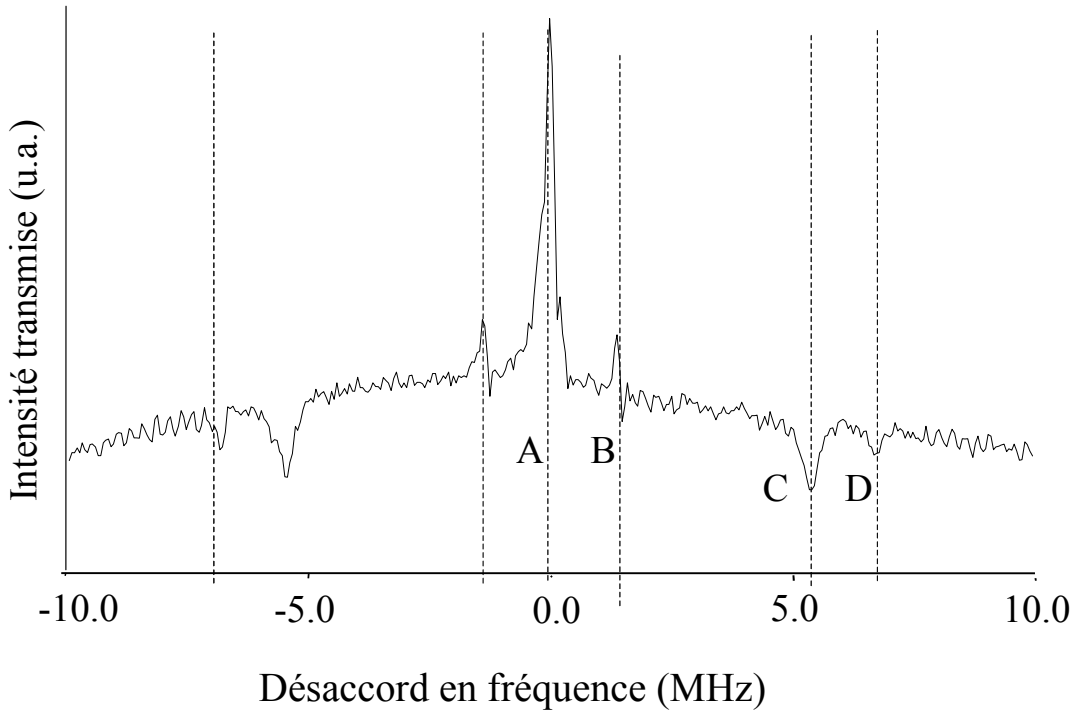

Figure 3.14: Données en champ faible avec B orienté selon de [0,0,1]. La lumière est polarisée selon [0,0,1]. Le faisceau sonde est balayé sur un intervalle spectral de 20 MHz.

Le creusement de trou spectral à la fréquence de pompe apparaît en position A. Le trou B est attribué à la transition vers l'autre sous niveau excité et doit se situer à la distance Δ_e de la fréquence centrale. Les anti-trous en position C et D sont attendus à des positions $\left(\Delta_g - \Delta_e\right)$ et Δ_g respectivement de la fréquence de pompe. On résume les données dans le tableau suivant:

A-B	A-C	A-D
1.43 ± 0.03MHz	5.41 ± 0.03MHz	6.85 ± 0.03MHz

3.5.3 Interprétation des résultats

Les facteurs gyromagnétiques de l'état fondamental et de l'état excité sont extraits des données expérimentales à l'aide des équations (1.73), (1.75) et (1.77). On obtient deux jeux de trois équations:

- Etat fondamental:

$$\frac{B_0}{\sqrt{3}}\left[2\gamma_y^2+\gamma_z^2\right]^{1/2} = 7.89 \pm 0.03\text{MHz}$$

$$\frac{B_0}{\sqrt{2}}\left[\gamma_x^2+\gamma_y^2\right]^{1/2} = 6.85 \pm 0.03\text{MHz}$$

$$\frac{B_0}{\sqrt{3}}\left[2\gamma_x^2+\gamma_z^2\right]^{1/2} = 0.368 \pm 0.002 MHz$$

- Etat excité:

$$\frac{B_0}{\sqrt{3}}\left[2\gamma_y^2+\gamma_z^2\right]^{1/2} = 1.61 \pm 0.03\text{MHz}$$

$$\frac{B_0}{\sqrt{2}}\left[\gamma_x^2+\gamma_y^2\right]^{1/2} = 1.43 \pm 0.03\text{MHz}$$

$$\frac{B_0}{\sqrt{3}}\left[2\gamma_x^2+\gamma_z^2\right]^{1/2} = 0.347 \pm 0.002 MHz$$

Les solutions sont présentées dans le **Tableau 3.3**.

Ces résultats peuvent être complétés par la comparaison entre les **Figures 3.12** et **3.14**. On observe que l'anti-trou à δ_g et le trou à δ_e, produit par pompage sur une transition interdite, sont absents de la **Figure 3.12** où le champ magnétique était dirigé selon [1,1,1]. Quand le champ magnétique est dirigé selon [0,0,1], comme sur la **Figure 3.14**, l'excitation de la transition interdite produit un anti-trou à δ_g et un trou à δ_e à plus haute température. En effet, on n'observe pas de blanchiment par le faisceau sonde sur la **Figure 3.14**. Cela signifie que la durée de vie des niveaux hyperfins est trop courte et que le taux de pompage par le faisceau sonde est trop petit pour produire un effet observable. Quand le champ magnétique est dirigé selon [1,1,1], une température plus basse est nécessaire pour creuser des trous par excitation de la transition interdite. Comme on le voit sur la **Figure 3.11**, pour observer de

telles structures, on doit refroidir l'échantillon jusqu'à une température telle que qu'un blanchiment important par le faisceau sonde y soit observé. A cette température, le faible transfert de population dû au faisceau sonde est accumulé durant la très longue durée de vie des niveaux hyperfins. Ainsi, d'après la discussion de la section précédente, le rapport de branchement est beaucoup plus important lorsque le champ magnétique est dirigé selon la direction [0,0,1] que dans la direction [1,1,1]. D'après les équations (1.74) et (1.78), il en résulte que:

$$\left(r^{(e)} - r^{(g)}\right)^2 >> \left(s^{(e)} - s^{(g)}\right)^2$$

A cause de la faiblesse des facteurs transverses dans l'état fondamental, $r^{(g)}$ et $s^{(g)}$, cette relation implique que: $\left(r^{(e)}\right)^2 >> \left(s^{(e)}\right)^2$.

		Etat fondamental $^3H_6$	Etat excité $^3H_4$
Expérience	γ_x / γ_y	<0.13	0.25 ± 0.13
	γ_y	403 ± 2 MHz/T	82 ± 2.5 MHz/T
	γ_z / γ_y	<0.1	0.17 ± 0.1
	$\sqrt{2\gamma_x^2 + \gamma_z^2} / \gamma_y$	0.066	0.297
Théorie	γ_x / γ_y	0.033(0.028)	**0.3(0.26)**
	γ_y	560 MHz/T	75 MHz/T
	γ_z / γ_y	0.02(0.013)	0.080(0.039)
	$\sqrt{2\gamma_x^2 + \gamma_z^2} / \gamma_y$	0.051	0.432

Tableau 3.3: Résumé des différentes valeurs des facteurs gyromagnétiques déduites des expériences ainsi que les prévisions théoriques correspondantes. Entre parenthèses, la valeur du facteur gyromagnétique effectif une fois soustraite la contribution purement Zeeman nucléaire (3.5MHz/T).

En conclusion, les mesures présentent un accord satisfaisant avec les prédictions théoriques. Dans l'état fondamental et dans l'état excité, la contribution électronique au champ magnétique effectif est presque alignée le long du moment dipolaire de transition. Ceci est

particulièrement vrai dans l'état fondamental où γ_x et γ_z sont tous deux très petits devant γ_y. Dans le niveau excité, γ_z est également très petit devant γ_y, mais on peut observer une composante γ_x non négligeable. Néanmoins, on n'a jusqu'ici pas pu mesurer précisément γ_x et γ_z car seule la moyenne quadratique $\left[2\gamma_x^2+\gamma_z^2\right]^{1/2}$ a pu être estimée avec une excellente précision, en l'absence de la contribution dominante en γ_y. On ne peut donc pas encore tirer de conclusions précises sur la valeur du taux de branchement.

La région la plus prometteuse pour former un système à trois niveaux efficace est située autour de la direction $\theta = \theta_0$ pour l'orientation du champ magnétique, orientation pour laquelle $B_y = 0$ dans le repère local des ions situés dans les sites 4 et 6. Lorsque $B_y = 0$, le hamiltonien de l'interaction Zeeman exacerbée se réduit presque au terme $\gamma_x B_x I_x$ car γ_z est très petit. On obtient ainsi un hamiltonien qui commute presque avec I_x de sorte qu'il ne survient pas de mélange entre les états de spin nucléaire, et le facteur de branchement correspondant est très faible. Néanmoins, dès que l'on écarte légèrement le champ magnétique de cette direction particulière, qui correspond à un minimum, le taux de branchement augmente rapidement et atteint d'assez grandes valeurs. Cette configuration est particulièrement attractive car, en dirigeant la polarisation du champ électrique selon $[\bar{1}, \bar{1}, 1]$ seuls les sites 1, 4 et 6 sont excités. Les sites 4 et 6 restent dégénérés avec un rapport de branchement optimisé pour le système en Λ. Le site 1, quant à lui, présente des écarts énergétiques entre niveaux beaucoup plus importants que ceux des sites 4 et 6. On doit pouvoir l'éliminer par pompage optique et il ne devrait donc pas gêner la manipulation indépendante des sites 4 et 6.

De façon équivalente, la composante B_y du champ magnétique s'annule dans les repères locaux des sites 3 et 5 lorsque B est dirigé suivant $[\bar{1}, \bar{1}, 1]$ et l'on peut sélectionner ces sites en dirigeant la polarisation de la lumière dans la direction [1,1,1]. Ces deux configurations devraient permettre d'optimiser le taux de branchement de la transition interdite pour réaliser un système en Λ efficace. Il semble donc intéressant, pour la suite de ces investigations, d'explorer ces configurations de façon approfondie.

On a vu dans la section 3.4.2, qui présente le principe des expériences de hole-burning spectral, que de nombreux types de systèmes à trois niveaux absorbent à la même fréquence ω_0 sur différents types de transition. En plus de construire un système à trois niveaux dans Tm^{3+} : YAG, il est donc nécessaire de disposer de techniques de préparation, permettant de sélectionner un seul type de système à trois niveaux résonnant aux fréquences de transition

considérées. Il est également important de disposer de techniques de préparation d'un groupe d'ions spectralement fin dans l'état fondamental de ce système, pour pouvoir le manipuler de façon cohérente. Ces techniques de préparation du système font l'objet du chapitre suivant.

Références

[1] O. Guillot-Noël, Ph. Goldner, E. Antic-Fidancev, J.-L. Le Gouët, Phys. Rev. B **71**, 174409 (2005)

[2] Y. Sun, G. M. Wang, R.L. Cone, R.W. Equall, M. J. M. Leask, Phys. Rev. B **62**, 15443 (2000)

[3] V. Crozatier, F. de Seze, L. Haals, F. Bretenaker, I. Lorgeré, J.-L. Le Gouët, Opt. Commun., **241**, 203 (2004)

CHAPITRE 4

PREPARATION DU SYSTEME A TROIS NIVEAUX

Ce chapitre traite de la préparation du système à trois niveaux construit par interaction Zeeman exacerbée dans l'ion Tm^{3+} : YAG en champ magnétique. On décrira les procédures de pompage optique visant à éliminer l'effet de l'élargissement inhomogène de façon à ce qu'un seul type de système à trois niveaux absorbe aux fréquences des transitions optiques considérées. On discutera également de la façon de préparer un groupe d'ions spectralement fin dans l'état fondamental de ce système.

4.1 Introduction

Nous avons présenté dans le Chapitre 3 le principe de la construction d'un système à trois niveaux dans l'ion Tm^{3+} substitué dans un cristal de YAG, et soumis à un champ magnétique extérieur. Nous y avons également exposé les premiers résultats expérimentaux de spectroscopie de ce système à trois niveaux. Lors de la description du principe des expériences de hole-burning spectral, nous avons présenté les différents types de systèmes à trois niveaux qui absorbaient sur une transition à la fréquence de pompe ω_0, du fait de l'élargissement inhomogène de la transition. Nous avons détaillé les structures de trous et d'anti-trous correspondants à ces différents types de systèmes dans la bande inhomogène d'absorption.

Il apparaît donc qu'en excitant l'échantillon à la fréquence ω_0, on fait intervenir simultanément des systèmes à trois niveaux variés, associés à des sites différents, à des transitions différentes. Or, pour réaliser des expériences de mémoires quantiques dans $Tm^{3+}:YAG$, il est nécessaire de préparer l'échantillon de façon à ce qu'un seul type de système à trois niveaux interagisse avec les faisceaux excitateurs (**Figure 4.1**). Dans ce chapitre, nous allons montrer qu'une telle préparation est possible.

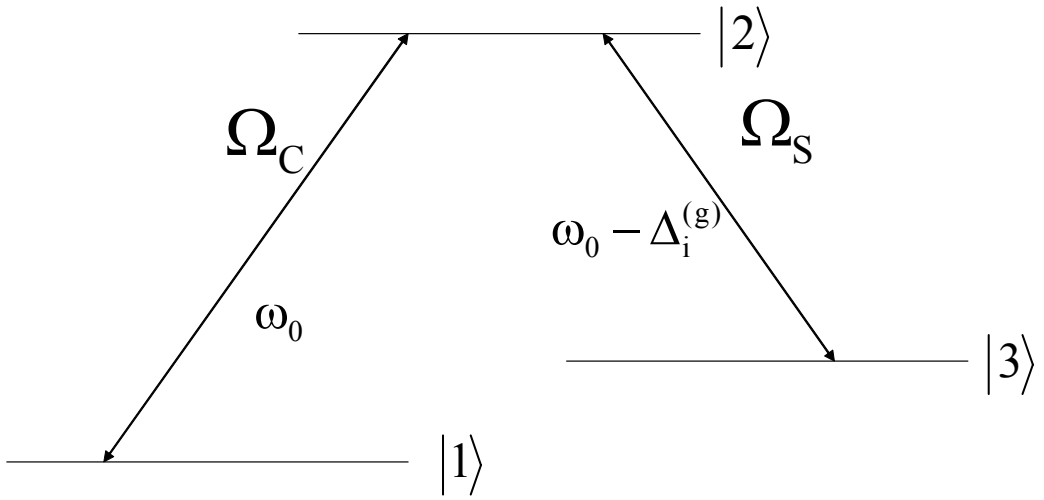

Figure 4.1 : Système à trois niveaux dans $Tm^{3+}:YAG$. Les fréquences des transitions ω_0 et $\omega_0 - \Delta_i^{(g)}$ sont celles auxquelles on souhaite isoler un seul type de système. $\Delta_i^{(g)}$ représente l'écart énergétique entre les deux sous niveaux hyperfins de l'état fondamental dans le site (i) sélectionné. Ω_C et Ω_S sont les fréquences de Rabi associées à ces transitions.

4.2 Conséquences de l'élargissement inhomogène

Plaçons nous d'emblée dans la configuration que nous avons considérée dans le Chapitre 3 comme optimale. Elle correspond à un champ magnétique de direction légèrement écartée de $[1,1,1]$, et à un champ électrique excitateur dont la polarisation est dirigée selon $[\bar{1},\bar{1},1]$. Dans cette situation, les sites 2, 3 et 5 sont muets, et les sites 4 et 6 sont équivalents. Le site 1 présente un écart énergétique très élevé dans l'état fondamental, environ 20 fois plus important que celui des sites 4 et 6.

Deux problèmes se posent, tous deux conséquences de l'élargissement inhomogène. D'une part, à une fréquence d'excitation ω_0, le champ appliqué interagit simultanément avec des transitions de nature différente, comme on le voit sur la **Figure 4.2**. D'autre part, l'idée de mémoire quantique repose sur l'interaction de la lumière avec un échantillon composé d'atomes indiscernables. Il faut en particulier que le champ excitateur interagisse de la même façon avec tous les atomes de l'échantillon. Dans le cas d'une largeur inhomogène de 20 GHz, cela n'est possible que pour des impulsions d'au plus quelques dizaines de ps. Nous travaillons à des échelles de temps tout à fait différentes, puisque nous cherchons à exploiter au maximum les longues durées de vie de cohérences offertes par les ions. Il nous faut donc réduire la largeur inhomogène de l'ion dans le cristal à une valeur de quelques largeurs homogènes.

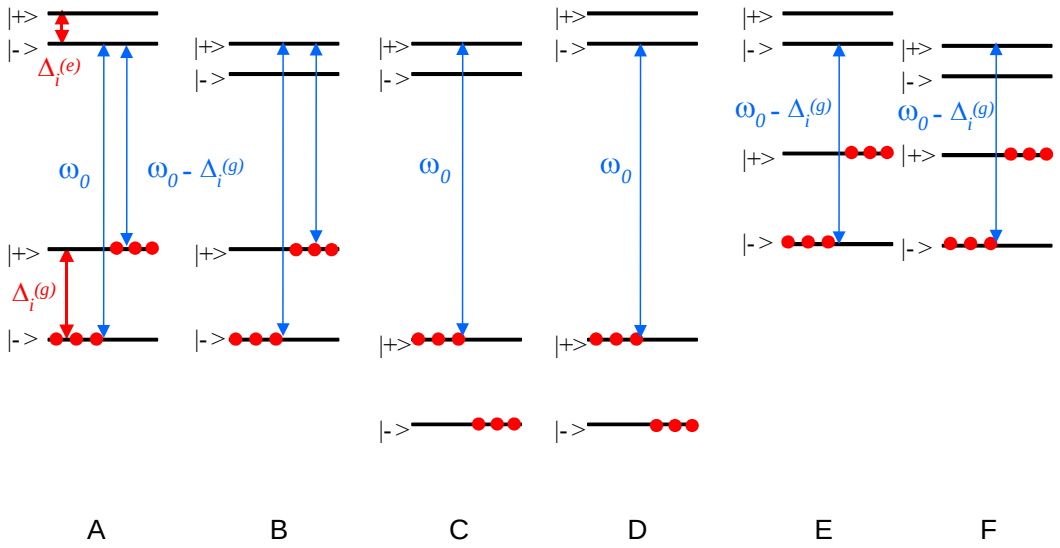

Figure 4.2 : Les 6 configurations, notées de A à F, résonnantes à ω_0 et/ou à $\omega_0 - \Delta_i^{(g)}$ dans les sites de type i. D'autres configurations sont résonnantes à ces fréquences de transition dans les autres sites.

La préparation de l'échantillon va donc consister à sélectionner un groupe d'ions à une fréquence choisie, et à éliminer les ions sur un intervalle de quelques MHz autour de cette fréquence. D'autre part, les ions sélectionnés devront être excités sur la même transition, possédant exactement les mêmes propriétés.

Cette préparation peut se réaliser en deux étapes. La première s'appuie sur le pompage optique entre les sous niveaux hyperfins du fondamental. Elle permet (i) d'éliminer les ions du site 1 (ii) d'éliminer les systèmes à trois niveaux possédant des fréquences de transition autres que les fréquences choisies ω_0 et $\omega_1 = \omega_0 - \Delta^{(g)}$ (iii) de préparer un groupe d'ions monochromatique dans l'un des sous niveaux hyperfins de l'état fondamental. Dans la deuxième étape, on vide les ions situés dans l'autre niveau hyperfin vers le niveau métastable $^3F_4$.

4.3 Pompage optique entre sous niveaux hyperfins

4.3.1 Sélection d'un groupe d'ions

On souhaite sélectionner des ions constituant un système à 3 niveaux défini dans les sites 4 et 6 pour les fréquences ω_0 et $\omega_0 - \Delta^{(g)}$, où $\Delta^{(g)}$ représente l'écart énergétique entre les deux sous niveaux hyperfins de l'état fondamental dans ces sites 4 et 6. On commence par réaliser un pompage balayé autour de la fréquence ω_0, puis on réitère l'opération autour de la fréquence $\omega_0 - \Delta^{(g)}$. La présence de transitions multiples limite la largeur de l'intervalle balayé à $\min\left(\Delta^{(g)}, \Delta^{(e)}, \left|\Delta^{(g)} - \Delta^{(e)}\right|\right)$. De cette façon, on pompe les ions résonnant à ces fréquences et situés dans le site 1 vers l'autre sous niveau hyperfin de l'état fondamental. On compte également six types de systèmes à trois niveaux résonnant aux fréquences ω_0 ou $\omega_0 - \Delta^{(g)}$ dans les sites 4 et 6 (**Figure 4.2)**. Le processus de pompage à ω_0 puis à $\omega_0 - \Delta^{(g)}$ permet de sélectionner deux de ces six types de systèmes, comme on peut le voir sur la **Figure 4.3**. Les autres systèmes ne sont plus accessibles aux fréquences ω_0 et $\omega_0 - \Delta^{(g)}$. En effet, les sous niveaux hyperfins dans lesquels ils ont été « parqués » ne sont reliés au niveau excité par

aucune de ces deux fréquences. Les deux types de systèmes restant sont les seuls qui absorbent à la fois aux deux fréquences de pompage ω_0 et $\omega_0 - \Delta^{(g)}$.

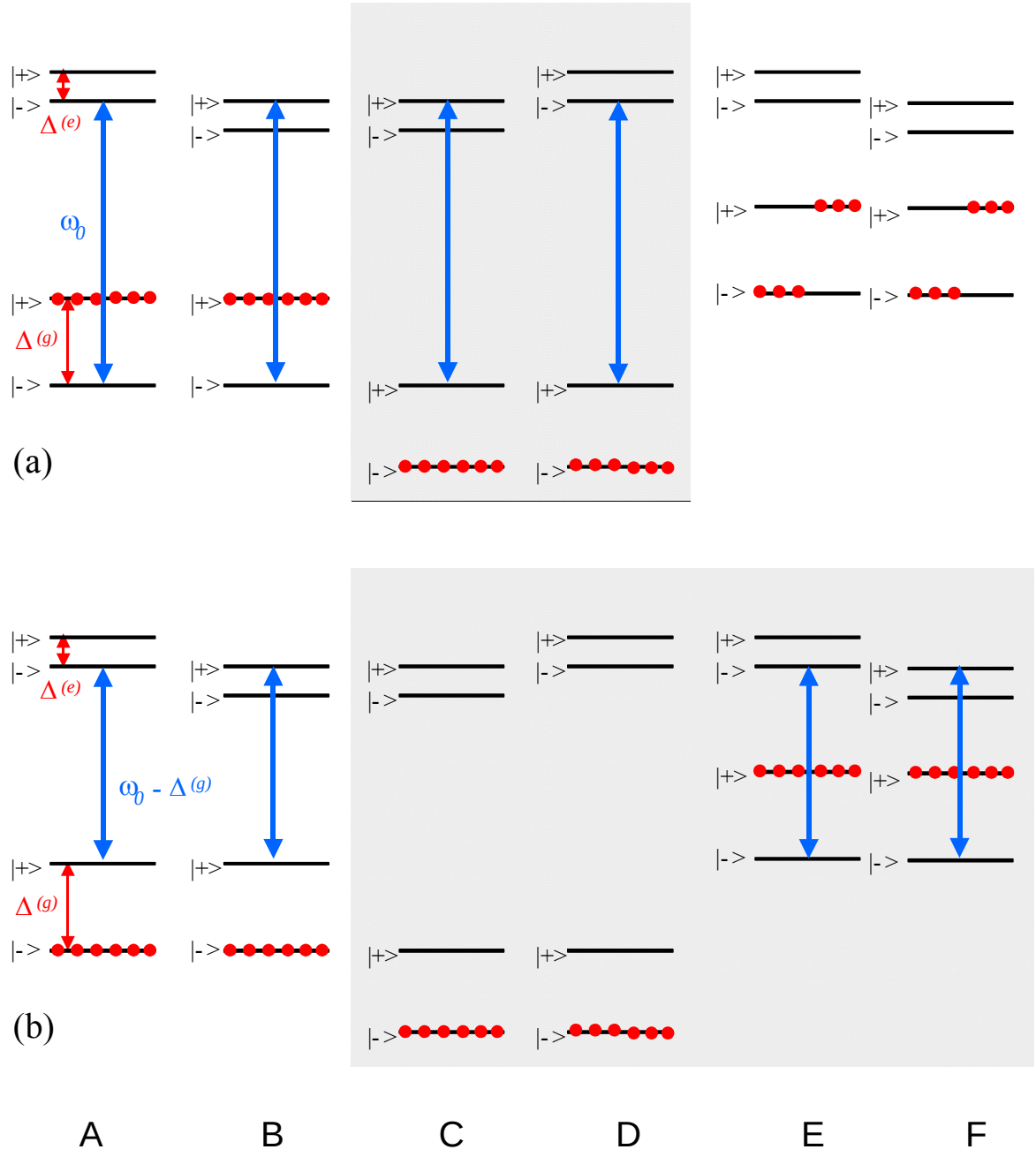

Figure 4.3 : Pompage optique des ions excités successivement autour de ω_0 (a) puis autour de $\omega_0 - \Delta^{(g)}$ (b). On a représenté le transfert des ions vers le sous-niveau hyperfin du fondamental non couplé à l'onde excitatrice. Seuls les ions des sites 4 et 6 absorbant aux deux fréquences ω_0 et $\omega_0 - \Delta^{(g)}$ peuvent encore interagir à ces fréquences avec le champ électrique.

On procède ensuite au pompage optique monochromatique d'un groupe monofréquence d'ions du système A, du niveau hyperfin $|-\rangle$ vers l'autre sous niveau hyperfin $|+\rangle$ en excitant le système à la fréquence $\omega_0 + \Delta^{(e)} + \Delta^{(g)}$. On constate que le système B n'est pas concerné par cette excitation (**Figure 4.4**). Il reste maintenant à affiner spectralement ce groupe d'ions, puis à évacuer les ions des systèmes A et B situés dans le niveau $|-\rangle$ de l'état fondamental vers l'état métastable.

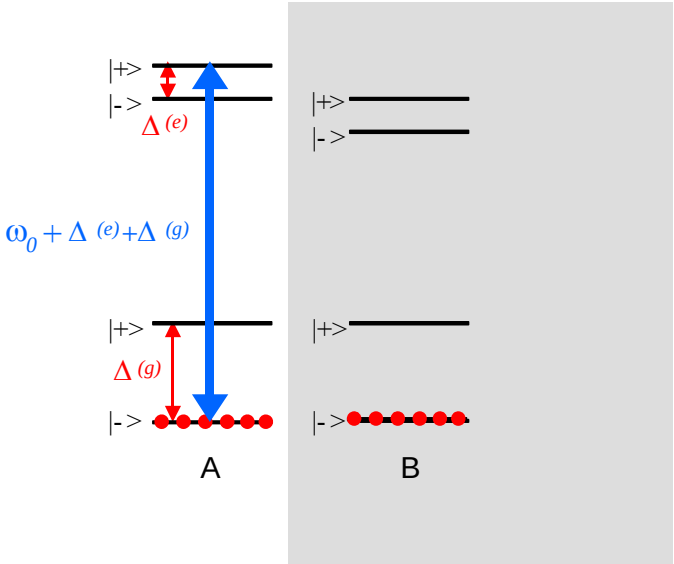

Figure 4.4 : Pompage optique monochromatique d'un groupe monofréquence d'ions du système A, du niveau hyperfin $|-\rangle$ vers le sous niveau hyperfin $|+\rangle$, à la fréquence $\omega_0 + \Delta^{(e)} + \Delta^{(g)}$. Le système B n'est pas concerné par cette excitation.

4.3.2 Affinement spectral du groupe d'ions sélectionné

Le processus de préparation décrit jusqu'ici nous permet de conserver un groupe d'ions issu d'un pompage monochromatique dans l'état $|+\rangle$ de l'état fondamental du système A (**Figure 4.4**). Les ions situés dans un intervalle spectral de quelques MHz autour de cette fréquence ont été portés dans l'état $|-\rangle$. Nous allons discuter maintenant de la possibilité d'affiner spectralement ce groupe d'ions.

Une technique intéressante pour réaliser cette affinement a été proposée par le groupe de M. Sellars à Cambera [1-3] et a été démontrée dans le Praséodyme et l'Europium. Elle utilise l'excitation répétée des ions par un ensemble de deux impulsions successives d'aire opposée. La notion *d'aire d'impulsion* est présentée en détail dans l'Annexe 2 de ce mémoire.

La première de ces impulsions est intense et courte (donc spectralement large), et la deuxième est atténuée et plus longue (donc spectralement plus fine). Les ions situés au centre de l'intervalle spectral excité ressentent une aire d'impulsion totale égale à 0, et se retrouvent dans l'état fondamental à la fin du processus. Les ions décalés du centre de l'intervalle spectral ressentent, eux, une aire d'impulsion différente de 0. Ils sont donc partiellement excités par cette séquence d'excitation. La répétition de cette séquence pompe ces ions vers un niveau auxiliaire, en l'occurrence un autre sous niveau hyperfin de l'état fondamental. Ils ont ainsi préparé des groupes d'ions présentant un élargissement inhomogène de l'ordre de quelques dizaines de kHz à l'intérieur d'un intervalle spectral vide de l'ordre de 1 MHz [1-3].

Une autre technique, que nous avons développée au laboratoire, est présentée en détail dans l'article joint en Annexe 3. Elle s'appuie sur des techniques de passage adiabatique rapide. Le principe du passage adiabatique rapide est détaillé en Annexe 2. Le système est excité par une onde balayée linéairement en fréquence, dont l'amplitude s'annule lors du passage à résonance avec les ions que l'on souhaite maintenir dans l'état fondamental. Les ions situés à résonance au centre du trou ne sont pas excités et restent dans l'état fondamental. Le reste de l'intervalle spectral est porté dans l'état excité $^3H_4$ par le processus de passage adiabatique rapide. La répétition de l'excitation pompe les ions vers l'autre sous niveau hyperfin de l'état fondamental. On a ainsi préparé des groupes d'ions présentant un élargissement inhomogène de l'ordre de quelques dizaines de kHz à l'intérieur d'un intervalle spectral vide de l'ordre de 1 MHz (cf Annexe 3).

L'une ou l'autre de ces techniques permet donc d'affiner spectralement le groupe d'ions issu du pompage monochromatique qui se trouve dans le niveau $|+\rangle$ de l'état fondamental. Les ions voisins sont pompés vers le sous niveau $|-\rangle$. Il reste maintenant à évacuer vers l'état métastable les ions des systèmes A et B situés dans ce niveau $|-\rangle$ de l'état fondamental.

4.4 Pompage optique vers le niveau métastable

Si on considère un simple pompage sur la transition optique entre les niveaux fondamental $|1\rangle$ et excité $|2\rangle$, la procédure présente une efficacité limitée du fait de la durée de vie finie du niveau $^3F_4$. L'évolution de ce niveau métastable est décrite par :

$$\dot{n}_m(t) = \Gamma_2 n_2(t) - \Gamma_m n_m(t) \qquad (1.81)$$

où $n_1(t)$, $n_2(t)$, $n_m(t)$ représentent respectivement la population du niveau fondamental, excité et métastable, et où Γ_2, Γ_m représentent respectivement les taux de désexcitation des niveaux excité et métastable. On obtient, en régime stationnaire :

$$n_m = \frac{\Gamma_2}{\Gamma_m} n_2 \tag{1.82}$$

Si l'excitation de la transition optique entre les niveaux fondamental $|1\rangle$ et excité $|2\rangle$ permet d'égaliser leurs populations $n_1(t)$ et $n_2(t)$, sachant que $n_1 + n_2 + n_m = 1$, on a :

$$n_1 = n_2 = \frac{\Gamma_m}{2\Gamma_m + \Gamma_2} \quad \text{et} \quad n_m = \frac{\Gamma_2}{2\Gamma_m + \Gamma_2} \tag{1.83}$$

On voit que dans une telle procédure, le rapport des populations des niveaux est ultimement limité par le rapport de leurs taux de relaxation. Dans le cas du $Tm^{3+}:YAG$, pour lequel $\Gamma_2/\Gamma_m \square 20$, seuls $\square 90\%$ des ions pourront ainsi être stockés dans le niveau métastable. Resteront $\square 5\%$ des ions dans le niveau excité et $\square 5\%$ dans le niveau fondamental. On ne pourra donc pas complètement vider ces niveaux et il sera impossible d'isoler complètement un seul type de système à trois niveaux sur les deux transitions considérées. Pour transférer d'avantage d'atomes vers le niveau métastable, il est donc nécessaire d'augmenter le rapport Γ_2/Γ_m.

Il semble effectivement possible d'augmenter le taux Γ_2 en stimulant la transition du niveau $^3H_4$ vers le niveau métastable $^3F_4$. Ce dernier niveau est composé de neuf sous-niveaux Stark, espacés en moyenne de 75 cm^{-1} [4]. La durée de vie de l'état de plus basse énergie du multiplet Stark dépasse 10 ms mais celle des sous-niveaux supérieurs n'atteint pas 1µs en raison de la relaxation par les phonons. Si on excite une transition entre le niveau fondamental Stark de $^3H_4$ et un état Stark de courte durée de vie du multiplet $^3F_4$, l'émission stimulée domine le processus. L'état de très courte durée de vie reste vide, ce qui rend négligeable l'absorption à partir de ce niveau. Les longueurs d'onde de transition vers les niveaux supérieurs du multiplet $^3F_4$ s'échelonnent entre 1,45µm et 1,57µm (**Figure 4.5**). Ce domaine correspond à celui des Télécoms optiques, pour lequel des sources et des amplificateurs puissants sont développés.

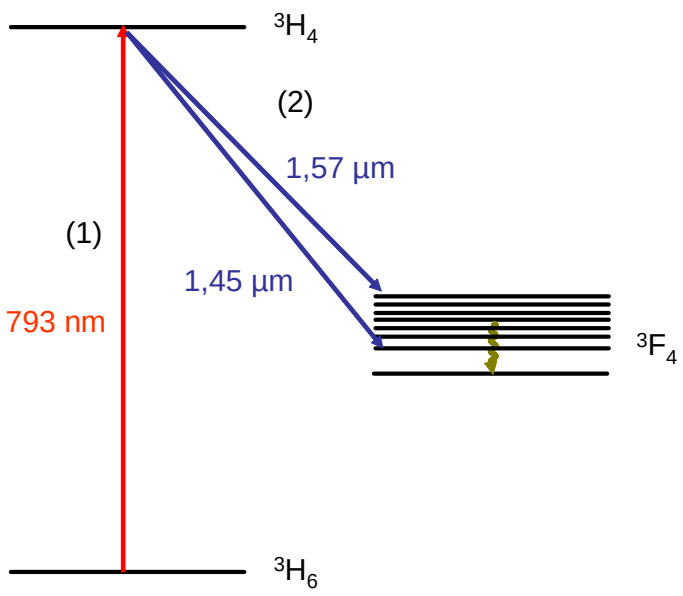

Figure 4.5 : Procédure de pompage d'un intervalle spectral déterminé vers le niveau métastable $^3F_4$. On transfère d'abord (1) les ions de l'état fondamental $^3H_6$ vers l'état excité $^3H_4$. La transition (2) vers un état Stark de très faible durée de vie du multiplet $^3F_4$ est réalisée par émission stimulée. Les ions se désexcitent alors très rapidement de façon non-radiative vers l'état de plus basse énergie du multiplet $^3F_4$.

Pour déterminer la faisabilité de ce processus, il serait souhaitable de connaître les probabilités de transition respectives entre ces différents niveaux. Le calcul des probabilités de transition exactes entre les niveaux d'énergie des ions de terre rare est particulièrement ardu. Judd et Offelt ont proposé certaines approximations qui permettent de simplifier ce calcul [5-7]. Leur analyse repose sur un calcul de perturbation au premier ordre par les termes impairs du champ cristallin, dans lequel les configurations de parité opposée à la configuration $4f^n$ (dont le mélange avec la configuration $4f^n$ autorise les transitions dipolaires électriques dans les terres rares) sont considérées comme un seul niveau d'énergie dégénéré. Cette théorie a été initialement conçue pour des ions de terre rare en solution, mais elle est aujourd'hui couramment utilisée pour des ions substitués dans des cristaux et dans des verres car elle ne nécessite qu'un simple spectre d'absorption enregistré à température ambiante pour pouvoir ajuster les paramètres du calcul, au nombre de 30. Cette analyse, appliquée à l'ion Tm^{3+} :YAG, prévoit un rapport d'environ $1/10^e$ entre les probabilités de transition du niveau excité $^3H_4$ vers, respectivement, les niveaux métastable $^3F_4$ et fondamental $^3H_6$ [8]. Néanmoins, ces prévisions sont valables à température ambiante, en supposant que tous les sous niveaux Stark

du multiplet $^3F_4$ sont également peuplés. A l'heure actuelle, on ne sait pas comment évoluent ces probabilités de transition à basse température, lorsque ces sous niveaux présentent de très faibles durées de vie et que seul le niveau le plus bas du multiplet Stark est peuplé. On ne sait pas non plus comment se répartit la probabilité de transition entre les différents sous niveaux du multiplet Stark. Pour avoir une idée plus précise de la faisabilité de ce processus d'émission stimulée, il faudra donc réaliser en premier lieu la spectroscopie à basse température de la fluorescence du niveau $^3H_4$ vers les différents sous niveaux Stark du multiplet $^3F_4$.

4.5 Manipulation cohérente

Le processus de préparation présenté ci-dessus nous permet de disposer d'un groupe d'ions spectralement fin dans l'état $|+\rangle$ du niveau fondamental du système à trois niveaux A. Ceci pourra nous permettre dans un premier temps de réaliser une mesure précise du taux de branchement R, en mesurant les fréquences de Rabi associées aux deux transitions. Par la suite, ce groupe d'ions pourra être utilisé pour réaliser des expériences de stockage de propriétés quantiques de la lumière, et de façon plus générale de manipulation cohérente de l'état d'un système quantique.

La première opération de manipulation cohérente à envisager est le transfert de population efficace et réversible d'un niveau à un autre. En effet, que l'on cherche à réaliser des opérations de mémoires quantiques ou de calcul quantique, on doit être capable de contrôler à tout moment quels sont les niveaux peuplés et quels sont les niveaux vides du système. Les différents processus de transfert de population dans les systèmes à deux et à trois niveaux, ainsi que leurs limitations expérimentales, sont passés en revue dans l'Annexe 2. Nous présentons dans le chapitre suivant, complété par l'article joint en Annexe 4, une étude détaillée de la procédure d'excitation cohérente dite *Sécante Hyperbolique Complexe*, qui est une variante intéressante des techniques de passage adiabatique rapide.

La deuxième opération de manipulation cohérente à envisager consiste à porter le groupe monochromatique d'ions dans une superposition cohérente d'états. Les processus de type *Sécante Hyperbolique Complexe interrompue* pourraient constituer une réponse intéressante à ce type de problème. Une proposition est faite en ce sens dans l'article joint en Annexe 4.

Références

[1] M. J. Sellars, G. J. Pryde, N. B. Manson, E. R. Krausz, J. of Lumin. **87**, 833 (2000)

[2] G.J. Pryde, M.J. Sellars, N.B. Manson, Phys. Rev. Lett. **84**, 1152 (2000)

[3] J. J. Longdell, PHD Thesis, Australian National University 2003
http://eprints.anu.edu.au/archive/00002321/

[4] J. B. Gruber, M. E. Hills, R. M. Macfarlane, C. A. Morrison, G. A. Turner, G. J. Quarles, G. J. Kintz, L. Esterowitz, Phys. Rev. B **40**, 9464 (1989)

[5] B. R. Judd, Phys. Rev. **127**, 750 (1962)

[6] G. S. Ofelt, J. Chem. Phys. **37**, 511 (1962)

[7] S. Guy, Thèse de doctorat, Université Lyon I (1995)

[8] P. Goldner, communication privée

CHAPITRE 5

EXCITATION COHERENTE OPTIQUE « SECANTE HYPERBOLIQUE COMPLEXE »

Ce chapitre présente une étude théorique et expérimentale de la procédure d'excitation dite *Sécante Hyperbolique Complexe*, une variante séduisante du passage adiabatique rapide (dont le principe et les limitations expérimentales sont présentés en Annexe 2). Nous discutons la sélectivité spectrale de ce processus et nous détaillons également la façon d'optimiser son efficacité. Nous présentons la première démonstration expérimentale de transfert efficace de population sur un intervalle spectral de plusieurs centaines de kHz utilisant cette procédure. Une étude détaillée de l'excitation d'un système à deux niveaux par l'impulsion Sécante Hyperbolique Complexe a été publiée sous la forme de l'article joint en Annexe 4. En plus des aspects que nous présentons dans ce chapitre, cette publication met l'accent sur l'évolution des cohérences atomiques au cours du processus d'excitation et sur la détection expérimentale de l'émission cohérente de lumière par les ions, qui constitue la signature de ces cohérences atomiques.

5.1 Introduction

Lorsqu'on décrit le champ excitateur d'un système à deux niveaux par une impulsion *Sécante Hyperbolique Complexe*, désignée par l'acronyme « CHS » (Complex Hyperbolic Secant), on peut résoudre analytiquement les équations de Bloch. C'est la raison initiale de l'intérêt porté à ce type d'excitation. [1-3]. Cette impulsion a ensuite été l'objet d'études théoriques dans le domaine de la Résonance Magnétique Nucléaire [4-5]. Ces études ont montré que la CHS permet de réaliser une inversion totale des spins nucléaires sur un petit intervalle spectral appartenant à une large bande inhomogène d'absorption, ceci avec une excellente sélectivité spectrale. Cette forme d'excitation est également étudiée dans le domaine de l'optique cohérente. On y a réalisé des inversions de population $(n_2 > 1/2)$ dans un gaz de Rubidium, en utilisant des impulsions CHS femtosecondes. Ces impulsions sont mises en forme dans le domaine spatial par des lignes non dispersives [6-8]. I. Roos et K.Molmer ont récemment proposé d'utiliser l'excitation CHS dans le contexte du traitement de l'information quantique dans les ions de terre rare insérés dans des matrices cristallines, aussi bien pour réaliser un transfert de population dans un système à deux niveaux que pour porter un système à trois niveaux dans un état noir [9]. Nous allons présenter ici cette forme d'excitation et montrer que c'est un processus adiabatique qui permet sous certaines conditions de réaliser un transfert efficace et sélectif en fréquence. Nous discuterons ensuite de l'optimisation de l'efficacité de ce processus et des facteurs limitant sa sélectivité spectrale dans des conditions d'expérience réelle.

5.2 Excitation par une impulsion CHS de durée infinie

L'amplitude complexe d'une impulsion Sécante Hyperbolique Complexe est définie de la manière suivante:

$$E(t)e^{i\varphi(t)} = E(t_0)\left\{\operatorname{sech}\left[\beta(t-t_0)\right]\right\}^{1-i\mu} \tag{1.84}$$

où μ est une constante réelle et β est relié à la largeur temporelle de l'impulsion. La fréquence de Rabi et la fréquence instantanée du laser sont données par:

$$\Omega(t) = \Omega_0 \operatorname{sech}\left[\beta\left(t - t_0\right)\right]$$
$$\omega(t) = \omega_0 + \mu\beta \tanh\left[\beta\left(t - t_0\right)\right] \tag{1.85}$$

La variation temporelle de l'amplitude de l'impulsion et de sa fréquence instantanée sont représentées sur la **Figure 5.1**. Une des différences essentielles de l'excitation CHS avec le passage adiabatique rapide classique est le fait que celle-ci balaye un intervalle spectral de largeur finie (égale à $2\beta\mu$), même lorsqu'on la suppose de durée infinie.

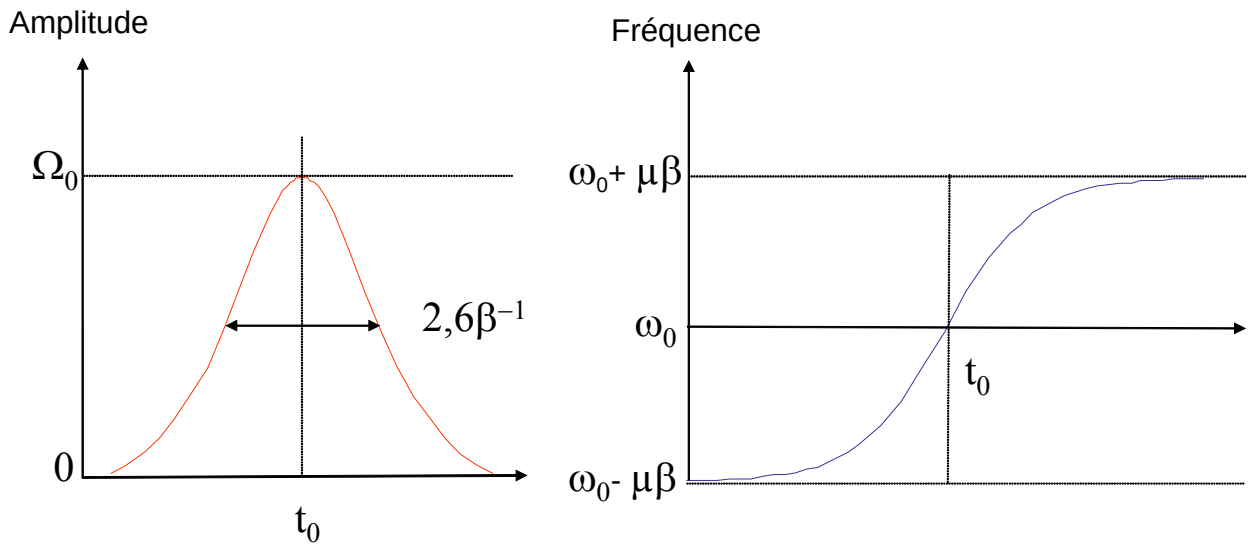

Figure 5.1 : Variation temporelle de l'amplitude d'une impulsion CHS et de sa fréquence instantanée autour de ω_0.

Nous allons présenter l'évolution de l'état quantique d'un système à deux niveaux soumis à une impulsion CHS de durée infinie. Contrairement aux cas des oscillations de Rabi et du passage adiabatique rapide classique (voir Annexe 2), la représentation de cette évolution à l'aide de l'image du vecteur de Bloch est loin d'être simple et intuitive. En revanche, comme nous l'avons signalé ci-dessus, les équations de Bloch présentent une solution analytique dans le cas d'une excitation par impulsion CHS. Nous allons donc d'abord décrire l'effet de cette excitation à partir des équations de Bloch. Ce calcul, dont nous allons présenter ici les grandes lignes, est détaillé dans la référence [4]. Nous reviendrons ensuite sur l'image du vecteur de Bloch au moment de discuter de l'optimisation de l'efficacité et de la sélectivité spectrale de cette procédure d'excitation.

La présentation détaillée des équations de Bloch et du formalisme utilisé ici est effectuée en Annexe 1. Ces équations s'écrivent :

$$\begin{aligned}\frac{dn_{21}}{dt} &= i\Omega(t)\left(\tilde{\rho}_{12}-\tilde{\rho}_{21}\right)-\Gamma_2\left(n_{21}-n_{21}^{(0)}\right)\\ \frac{d\tilde{\rho}_{12}}{dt} &= \frac{i\Omega(t)}{2}n_{21}-\left[i\left(\Delta+\dot{\varphi}(t)\right)+\Gamma_{12}\right]\tilde{\rho}_{12}\end{aligned} \tag{1.86}$$

Le vecteur de Bloch $\vec{A}=(u,v,w)$ est un vecteur représentatif de l'état du système atomique. Ses composantes sont définies de la façon suivante :

$$\begin{aligned}u &= \tilde{\rho}_{12}+\tilde{\rho}_{21}\\ v &= i\left(\tilde{\rho}_{21}-\tilde{\rho}_{12}\right)\\ w &= n_{21}=\rho_{22}-\rho_{11}\end{aligned} \tag{1.87}$$

L'évolution du système atomique en présence d'un champ excitateur est décrite par l'équation du mouvement du vecteur de Bloch:

$$\frac{d\vec{A}}{dt}=-\vec{D}\wedge\vec{A}+\left.\frac{d\vec{A}}{dt}\right|_{relax} \tag{1.88}$$

où $\vec{D}=\begin{pmatrix}\Omega\\ 0\\ \Delta+\dot{\varphi}(t)\end{pmatrix}$ représente le *vecteur de contrôle* et où $\left.\frac{d\vec{A}}{dt}\right|_{relax}=-\begin{pmatrix}\Gamma_{12}u\\ \Gamma_{12}v\\ \Gamma_2(w+1)\end{pmatrix}$

Pour résoudre les équations (1.86) avec une excitation CHS, on définit la variable f telle que :

$$u(t)+iv(t)=\frac{2f(t)}{1+|f(t)|^2} \quad \text{et} \quad w(t)=\frac{|f(t)|^2-1}{|f(t)|^2+1} \tag{1.89}$$

On peut alors réécrire les équations de Bloch de la manière suivante:

$$\frac{df}{dt}-i\Delta f-i\frac{\Omega^*}{2}f^2+i\frac{\Omega}{2}=0 \tag{1.90}$$

L'évolution des composantes u, v et w au cours du processus sont discutées en détail dans l'article joint en Annexe 4. Nous nous restreignons ici à l'étude du transfert de population. On va donc juste exprimer la valeur de la composante w en fin d'excitation. Quand $t\to+\infty$, la solution s'écrit [4]:

$$\left|f\right|_{t\to+\infty} = \frac{2\beta}{\Omega_0}\left|\frac{\Gamma\left(a+b+1-c\right)\Gamma(c-a)\Gamma(c-b)}{\Gamma(a)\Gamma(b)\Gamma(c-a-b)}\right| \tag{1.91}$$

où a, b, et c représentent respectivement:

$$a = \frac{i\mu}{2} + \left[\left(\frac{\Omega_0}{2\beta}\right)^2 - \left(\frac{\mu}{2}\right)^2\right]^{1/2} = \frac{i\mu}{2} + \frac{d}{2} \tag{1.92}$$

$$b = \frac{i\mu}{2} - \left[\left(\frac{\Omega_0}{2\beta}\right)^2 - \left(\frac{\mu}{2}\right)^2\right]^{1/2} = \frac{i\mu}{2} - \frac{d}{2} \tag{1.93}$$

$$c = \frac{1}{2} + i\left(\frac{\Delta}{2\beta} + \frac{\mu}{2}\right) \tag{1.94}$$

avec $d = \left[\left(\Omega_0/2\beta\right)^2 - \left(\mu/2\right)^2\right]^{1/2}$

Il convient ici de distinguer deux cas. Dans la référence [4], le calcul est uniquement mené dans le cas ou le paramètre d est réel, ce qui correspond à $\Omega_0 > \beta\mu$. Il peut néanmoins être étendu au cas où d est imaginaire pur, qui correspond à $\Omega_0 < \beta\mu$. On en déduira ensuite la condition sur la valeur minimale de Ω_0 qui permet d'obtenir un transfert efficace.

Considérons d'abord le cas $\Omega_0 > \beta\mu$. On obtient, en réduisant l'équation (1.91) à l'aide d'identités sur les fonctions Γ [10] :

$$\left|f\right|_{t\to+\infty}{}^2 = \frac{\cosh^2\left[\pi\frac{\mu}{2}\right] - \cos^2\left[\pi\frac{d}{2}\right]}{\cosh^2\left[\pi\frac{\Delta}{2\beta}\right] - \sin^2\left[\pi\frac{d}{2}\right]} \tag{1.95}$$

On peut alors écrire:

$$w_{t\to+\infty} = -\tanh\pi\left(\frac{\Delta}{2\beta} + \frac{\mu}{2}\right)\tanh\pi\left(\frac{\Delta}{2\beta} - \frac{\mu}{2}\right) - \cos\left(\pi d\right)\operatorname{sech}\left[\pi\left(\frac{\Delta}{2\beta} + \frac{\mu}{2}\right)\right]\operatorname{sech}\left[\pi\left(\frac{\Delta}{2\beta} - \frac{\mu}{2}\right)\right] \tag{1.96}$$

Le premier terme du membre de droite de cette équation, égal au produit de deux tangentes hyperboliques, est proche de 1 à l'intérieur du domaine $-\beta\mu < \Delta < \beta\mu$. Il est proche de -1 à l'extérieur de ce domaine, pour peu que $\mu \geq 2$. De plus, si $\mu \geq 2$, le deuxième terme du membre de droite est très faible devant 1. On peut en conclure qu'on obtient un transfert total

de population dans l'intervalle spectral $-\beta\mu < \Delta < \beta\mu$ dans le cas $\Omega_0 > \beta\mu$, pour $\mu \geq 2$. La sélectivité de ce transfert augmente avec la valeur de μ [4]. Un tel exemple de transfert de population sélectif est présenté sur la **Figure 5.2(b)**. Le calcul est réalisé dans les mêmes conditions que celui de la **Figure 5.2(a)** obtenue dans le cas d'un passage adiabatique rapide classique. On peut noter l'absence d'oscillations dans la probabilité d'excitation et la décroissance rapide dans les ailes qui permet d'éviter l'excitation résiduelle des zones non balayées en fréquence par le laser au cours du processus. La sélectivité spectrale d'un processus d'excitation CHS est excellente, contrairement au cas du passage adiabatique rapide classique (cf Annexe 2).

Si on considère le cas $\Omega_0 < \beta\mu$, pour lequel le paramètre d est imaginaire pur, on définit la variable $q = id = \sqrt{\mu^2 - \Omega_0^2/\beta^2}$ et l'équation (1.91) se réduit alors de la façon suivante :

$$|f|_{t\to+\infty}{}^2 = \frac{\sinh\left[\pi\left(\frac{\mu}{2}+\frac{q}{2}\right)\right]\sinh\left[\pi\left(\frac{\mu}{2}-\frac{q}{2}\right)\right]}{\cosh\left[\pi\left(\frac{\Delta}{2\beta}-\frac{q}{2}\right)\right]\cosh\left[\pi\left(\frac{\Delta}{2\beta}+\frac{q}{2}\right)\right]} \tag{1.97}$$

On en déduit :

$$w_{t\to+\infty} = -\tanh\pi\left(\frac{\Delta}{2\beta}+\frac{\mu}{2}\right)\tanh\pi\left(\frac{\Delta}{2\beta}-\frac{\mu}{2}\right) - \cosh(\pi q)\,\mathrm{sech}\left[\pi\left(\frac{\Delta}{2\beta}+\frac{\mu}{2}\right)\right]\mathrm{sech}\left[\pi\left(\frac{\Delta}{2\beta}-\frac{\mu}{2}\right)\right]$$

(1.98)

Cette expression est très proche de l'équation (1.96), excepté le fait que le terme $\cos[\pi d]$ a été remplacé par $\cosh[\pi q]$. On peut donc réaliser un transfert total de population dans l'intervalle spectral $-\beta\mu < \Delta < \beta\mu$ si $\mu \geq 2$ et si le second terme du membre de droite de l'équation (1.98) est très petit devant 1. Si $\mu \geq 2$, ce second terme se réduit à $\cosh(\pi q)\exp(-\pi\mu)$. Cette quantité est très petite devant l'unité si $\pi q << 1$, ce qui correspond à $\Omega_0 \square \beta\mu$. Si on s'intéresse aux valeurs plus faibles de Ω_0, pour lesquelles $\pi q > 1$, ce terme s'écrit:

$$\cosh(\pi q)\exp(-\pi\mu) \approx \frac{1}{2}\exp[\pi(q-\mu)] = \frac{1}{2}\exp\left[-\frac{\mu\pi a^2}{1+\left[1-a^2\right]^{1/2}}\right] \tag{1.99}$$

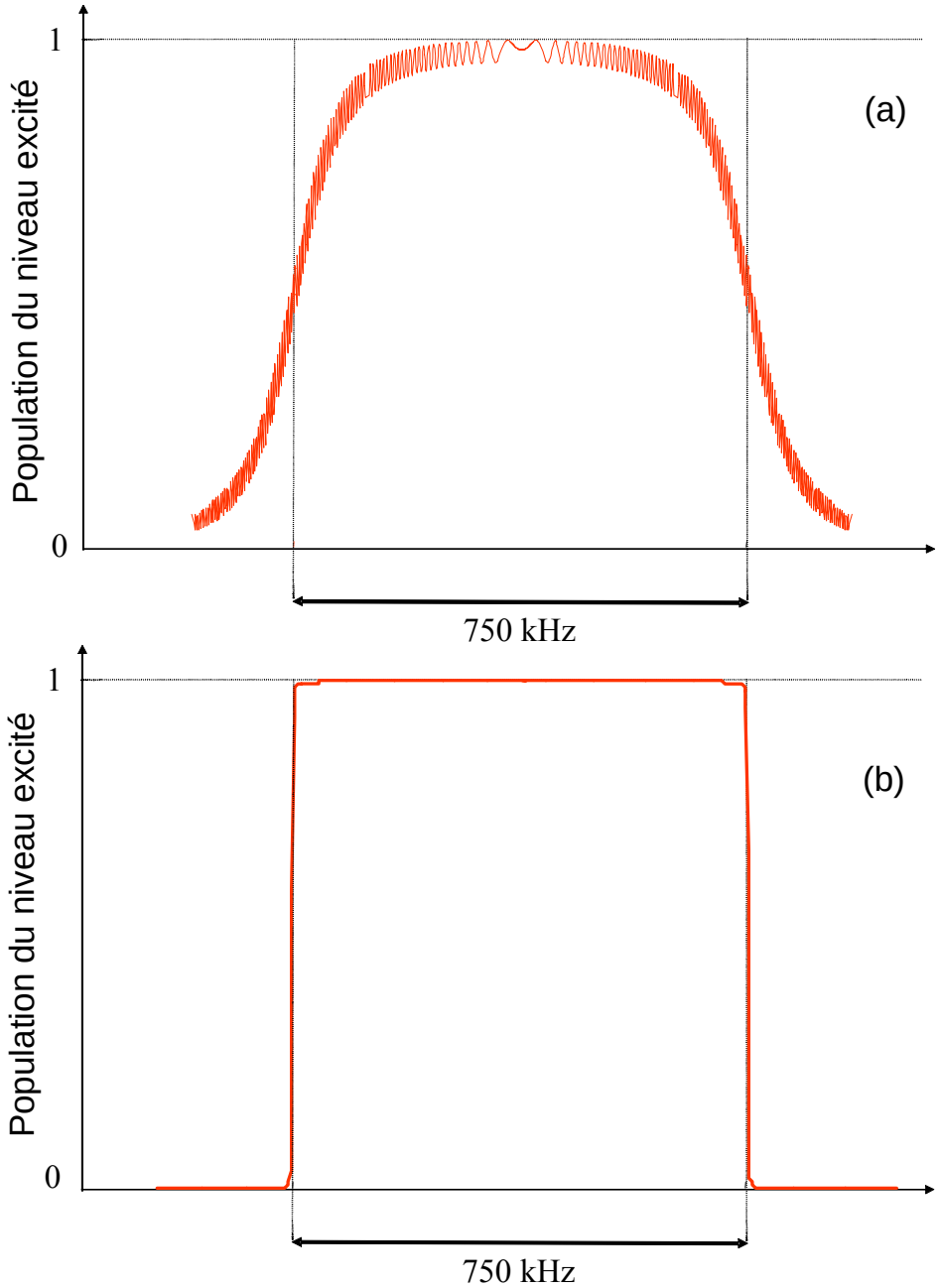

Figure 5.2: Probabilité d'excitation d'un échantillon de grande largeur inhomogène par une impulsion linéairement balayée en fréquence sur un intervalle spectral de 750 kHz au taux $r = 7.5\ 10^8\,\mathrm{Hz/s}$ (a) et par une impulsion CHS de durée finie égale à $6\beta^{-1}$ et de largeur temporelle équivalente à la durée de l'impulsion précédente ($\mu = 400$) (b). Le calcul est réalisé avec $\Omega^2 / r \square 1.27$ et en négligeant l'effet de la durée de vie finie des cohérences.

avec $a = \Omega_0 / \mu\beta$. Ceci est très petit devant 1 si:

$$\frac{\mu\pi}{2} a^2 >> 1 \tag{1.100}$$

Dans le cas d'une excitation CHS, le taux de glissement de fréquence instantané vaut:

$$r(t) = \frac{d\omega}{dt} = \mu\beta^2 \frac{1}{\cosh^2\left[\beta\left(t - t_0\right)\right]} \tag{1.101}$$

La condition (1.100) s'écrit:

$$\frac{2r_0}{\pi} << \Omega_0^2 \tag{1.102}$$

avec $r_0 = r(t_0)$ et $\Omega_0 = \Omega(t_0)$. Ceci est l'équivalent de la condition adiabatique (5) de l'Annexe 2, écrite au temps $t = t_0$. On peut d'ailleurs noter que pour une impulsion CHS, d'après les définitions (1.85) et (1.101) de $\Omega(t)$ et de $r(t)$, la valeur du quotient $\Omega(t)^2 / r(t)$ est constante et égale à Ω_0^2 / r_0. Ainsi la condition adiabatique est satisfaite à tout instant si elle l'est à $t = t_0$. Cette condition (1.102) peut se réécrire ainsi :

$$\Omega_0 >> \frac{2\beta\mu}{\sqrt{2\pi\mu}} \tag{1.103}$$

L'efficacité du transfert n'est donc pas soumise au fait que la fréquence de Rabi soit supérieure à l'intervalle spectral excité $2\beta\mu$. On peut obtenir pour de grandes valeurs de μ un transfert efficace de population avec une fréquence de Rabi beaucoup plus faible, pour peu que la condition adiabatique soit satisfaite. Cette observation nous permet d'avoir une vision physique du processus d'excitation CHS. De la même façon que pour le passage adiabatique rapide classique, on va considérer que le vecteur de Bloch suit le vecteur de contrôle tout au long de son mouvement sur la sphère de Bloch. On identifie ainsi le vecteur de Bloch à un vecteur unitaire dans la direction du vecteur de contrôle et il suffira d'examiner l'évolution du vecteur $\vec{D}$ pour connaître celle du vecteur de Bloch durant l'excitation. Ce modèle adiabatique a été utilisé dans l'article joint en Annexe 4 pour décrire l'évolution des composantes du vecteur $\vec{A}$ au cours d'un processus de CHS. Nous ne décrirons pas ici cette évolution en détail mais nous allons néanmoins présenter l'allure du mouvement du vecteur de Bloch au cours de l'excitation car celle-ci aide à la compréhension des facteurs limitant la sélectivité spectrale du processus de CHS.

Selon que le désaccord Δ entre l'atome et la fréquence centrale du laser se trouve à l'intérieur ou à l'extérieur de l'intervalle spectral $[-\beta\mu, \beta\mu]$, le vecteur $\vec{D}(\Omega, 0, \Delta + \dot{\varphi}(t))$ bascule de l'orientation basse à l'orientation haute au cours du processus ou bien reste dans le même demi-espace. En effet, si $\Delta < -\beta\mu$ (respectivement $\Delta > \beta\mu$), la composante verticale de $\vec{D}$ reste toujours négative (respectivement positive) car $\dot{\varphi}(t)$ passe de la valeur initiale $-\beta\mu$ à la valeur finale $+\beta\mu$. En tenant compte de l'orientation basse initiale du vecteur de Bloch, on peut écrire:

$$\vec{A} = \text{signe}(\beta\mu - \Delta)\vec{D} / \sqrt{\Omega^2 + (\Delta + \dot{\varphi})^2} \tag{1.104}$$

Comme $\vec{D}$ n'a pas de composante selon Ov, la composante horizontale v du vecteur de Bloch reste toujours nulle. Les composantes u et w s'écrivent:

$$\begin{aligned} u &= \text{signe}(\beta\mu - \Delta)\frac{\Omega}{\sqrt{\Omega^2 + (\Delta + \dot{\varphi})^2}} e^{2i\pi\nu_0(t-t_0)+i\varphi(t)} \\ w &= \text{signe}(\beta\mu - \Delta)\frac{\Delta + \dot{\varphi}}{\sqrt{\Omega^2 + (\Delta + \dot{\varphi})^2}} \end{aligned} \tag{1.105}$$

Il est intéressant de constater que *même en dehors de l'intervalle spectral balayé*, le vecteur de Bloch des atomes est affecté d'un mouvement. Il reste néanmoins dans le même demi-espace tout au long du processus. Pour ces atomes, la composante verticale w varie de -1 jusqu'à $-\sqrt{\Delta^2 - \beta^2\mu^2} / \sqrt{\Omega_0^2 + \Delta^2 - \beta^2\mu^2}$, puis revient à -1 en fin d'excitation. Pour une valeur donnée de Ω_0, la différence de population maximale approche d'autant plus 0 que $|\Delta| - \beta\mu$ est petit devant Ω_0 (donc que les atomes sont situés proche des bords de la zone balayée en fréquence). La composante horizontale u varie de 0 à un maximum égal à $\Omega_0 / \sqrt{\Omega_0^2 + \Delta^2 - \beta^2\mu^2}$ (à l'instant où w est maximum), puis revient à 0 en fin de processus. L'excellente sélectivité spectrale du processus de CHS provient donc du fait que les atomes situés en dehors de l'intervalle spectral balayé *reviennent* à leur état initial en fin d'excitation. Nous allons discuter maintenant de l'effet de la durée de vie finie des cohérences et de la durée finie de l'excitation sur l'efficacité du transfert et sur cette sélectivité spectrale.

5.3 Limitations et optimisation de l'efficacité du processus dans des conditions d'expérience réelle

5.3.1 Effet de la durée de vie finie des cohérences

Nous avons négligé jusqu'ici les processus de relaxation durant la phase d'excitation. On peut la plupart du temps raisonnablement ignorer la relaxation du niveau excité, mais nous devons prendre en compte la durée de vie finie des cohérences. Lors du mouvement du vecteur de Bloch sous l'effet de l'impulsion CHS, ses composantes horizontales décroissent avec le taux Γ_{12}. La longueur du vecteur de Bloch décroît donc selon:

$$\frac{d|A|^2}{dt} = -2\Gamma_{12}|A_h(t)|^2 \qquad (1.106)$$

ou $A_h = \sqrt{u^2 + v^2}$ est la norme de la composante horizontale du vecteur de Bloch. Pour les ions situés à l'intérieur de l'intervalle spectral balayé, la norme du vecteur de Bloch est inférieure à l'unité lorsqu'il atteint sa position finale (verticale orientée vers le haut) du fait de cette décroissance. La variation de la différence de population est donnée par:

$$w^2(+\infty) - w^2(-\infty) = A^2(+\infty) - A^2(-\infty) = -2\Gamma_{12}\int_{-\infty}^{+\infty}|A_h(t)|^2\,dt \qquad (1.107)$$

si on suppose que $\Gamma_{12}\int_{-\infty}^{+\infty}|A_h(t)|^2\,dt << 1$. Dans le régime adiabatique, la composante horizontale du vecteur de Bloch s'écrit:

$$|A_h(t)|^2 = \frac{\Omega^2(t)}{\Omega^2(t) + \left(\Delta + \dot{\varphi}(t)\right)^2} = \frac{\Omega_0{}^2}{\Omega_0{}^2 + \left[\Delta\cosh\left(\beta\left(t - t_0\right)\right) + \mu\beta\sinh\left(\beta\left(t - t_0\right)\right)\right]^2} \qquad (1.108)$$

L'intégrale $\int_{-\infty}^{+\infty}\left|A_h{}^2(t)\right|$ vaut:

$$\int_{-\infty}^{+\infty}\left|A_h{}^2(t)\right|dt = \frac{a}{\beta\sqrt{-1 + a^2 + y^2}}\,\mathrm{Ln}\left\{\frac{\left(a + \sqrt{-1 + a^2 + y^2}\right)^2}{\left|y^2 - 1\right|}\right\} \qquad (1.109)$$

avec $a = \Omega_0 / \mu\beta$ et $y = \Delta / \mu\beta$. Pour $a = 1$ et $\Delta = 0$, cette intégrale se réduit à $2/\beta$. On obtient alors:

$$n_2(+\infty) = 1 - \frac{\Gamma_{12}}{\beta} \tag{1.110}$$

Pour que la durée de vie finie des cohérences ne dégrade pas l'efficacité du transfert, un processus d'excitation CHS doit donc vérifier:

$$\frac{\Gamma_{12}}{\beta} << 1 \tag{1.111}$$

Ceci peut se réécrire de la façon suivante:

$$\Omega_0 \Gamma_{12} << r_0 \tag{1.112}$$

Cette équation coïncide avec la condition (6) de l'Annexe 2, qui est la condition correspondante pour un processus de passage adiabatique rapide classique. Comme dans le cas du passage adiabatique rapide, on obtient donc deux conditions (1.103) et (1.112) qui portent respectivement sur le caractère adiabatique et cohérent du processus. Ces conditions imposent des limites inférieures et supérieures à la valeur de Ω_0. Il devient donc intéressant de rechercher les conditions sur Ω_0 qui optimisent l'efficacité de la procédure d'excitation CHS. Ceci sera l'objet de la section 5.3.3.

Nous avons noté précédemment qu'à l'extérieur de l'intervalle spectral sélectionné, le vecteur de Bloch tourne sous l'action du champ électrique de contrôle et revient finalement à sa position initiale en fin de processus. Ceci permet à l'excitation CHS de durée infinie de présenter une excellente sélectivité spectrale. Le fait que les cohérences présentent une durée de vie finie peut empêcher le vecteur de Bloch de retrouver exactement sa position initiale en fin d'excitation et la sélectivité spectrale de ce processus peut s'en retrouver dégradée. Ce phénomène est illustré sur la **Figure 5.3**, où l'on compare les ailes de la distribution spectrale de la population du niveau excité en l'absence et en la présence de relaxation. Dans les ailes, l'approximation adiabatique de la population de l'état excité s'écrit :

$$n_2(+\infty) = \frac{1}{2}\frac{\Gamma_{12}}{\beta}\frac{a}{\sqrt{-1+a^2+y^2}} \mathrm{Ln}\left\{\frac{\left(a+\sqrt{-1+a^2+y^2}\right)^2}{\left|y^2-1\right|}\right\} \tag{1.113}$$

Cette expression analytique coïncide avec le résultat de la résolution numérique des équations de Bloch, comme on peut le voir sur la **Figure 5.3**.

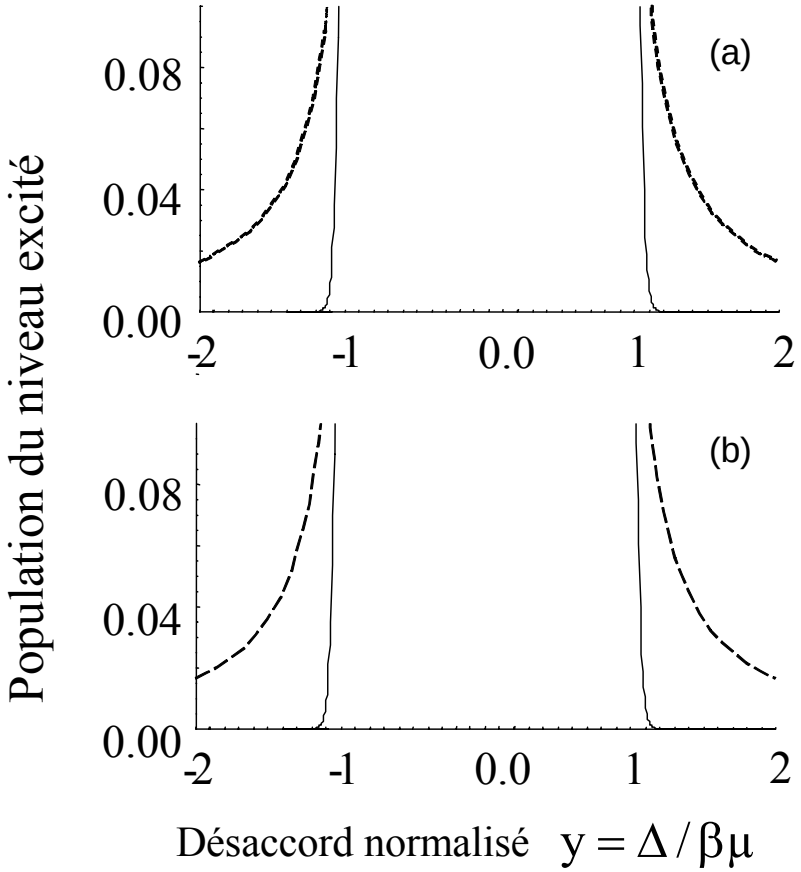

Figure 5.3: Calcul numérique (a) et représentation dans l'approximation adiabatique (b) des ailes de la distribution spectrale de la population du niveau excité en présence (tirets) et absence (trait plein) de relaxation, avec $T_2 = 8\beta^{-1}$. Les paramètres du calcul sont $\mu = 30$, $\Omega_0 / \mu\beta = 2/3$.

5.3.2 Effet de la durée finie de l'excitation

Nous allons maintenant discuter de l'effet de la durée finie de l'impulsion excitatrice sur la sélectivité spectrale du processus. Comme dans le cas du passage adiabatique rapide classique, le fait que le champ excitateur ne démarre pas à $t_i = -\infty$ se traduit par un vecteur de contrôle initial qui n'est pas exactement aligné avec l'axe vertical, mais pour une raison différente. Dans un processus de CHS, cela provient du fait que la composante horizontale initiale du vecteur de contrôle $\Omega(t_i)$ n'est pas nulle comme elle le serait avec une impulsion CHS de durée infinie. Dans un processus de RAP classique, ceci est dû au fait que la composante verticale initiale du vecteur de contrôle $\Delta + \dot{\varphi}(t_i)$ n'est pas infinie au moment du démarrage du champ. Dans les deux cas, on ne peut plus considérer que l'amplitude du mouvement de précession du vecteur de Bloch autour du vecteur de contrôle est infiniment

petite. On peut néanmoins étendre le modèle adiabatique à cette situation, en prenant en compte ce mouvement de précession. Si on définit la rotation

$$R(t) = \begin{pmatrix} \cos\theta & 0 & -\sin\theta \\ 0 & 1 & 0 \\ \sin\theta & 0 & \cos\theta \end{pmatrix} \tag{1.114}$$

où $\cos\theta = \dfrac{\Delta + \dot{\varphi}}{\sqrt{\Omega^2 + (\Delta + \dot{\varphi})^2}}$, $\sin\theta = \dfrac{\Omega}{\sqrt{\Omega^2 + (\Delta + \dot{\varphi})^2}}$, les coordonnées du vecteur de contrôle se transforment en $[D'] = R[D] = \left(0, 0, \sqrt{\Omega^2 + (\Delta + \dot{\varphi})^2}\right)$. Les coordonnées du vecteur de Bloch à l'instant initial t_i s'expriment dans le référentiel tournant de la façon suivante:

$$[A'] = R[A] = (\sin\theta_i, 0, -\cos\theta_i) \tag{1.115}$$

avec $\theta_i = \theta(t_i)$. On suppose que le vecteur de Bloch suit adiabatiquement le vecteur de contrôle, autour duquel il précesse à la fréquence $-\sqrt{\Omega^2 + (\Delta + \dot{\varphi})^2}$. A l'instant t, les coordonnées du vecteur de Bloch dans le référentiel tournant sont:

$$[B'(t)] = (\sin\theta_i \cos\Xi, -\sin\theta_i \sin\Xi, -\cos\theta_i) \tag{1.116}$$

où $\Xi = \int_{t_i}^{t} \sqrt{\Omega(t')^2 + [\Delta + \dot{\varphi}(t')]^2}\, dt'$. On retrouve les coordonnées du vecteur de Bloch en écrivant que $[A(t)] = R^{-1}(t)[A'(t)]$. On obtient:

$$\begin{cases} u = \sin\theta_i \cos\theta \cos\Xi - \cos\theta_i \sin\theta \\ v = -\sin\theta_i \sin\Xi \\ w = -\sin\theta_i \sin\theta \cos\Xi - \cos\theta_i \cos\theta \end{cases} \tag{1.117}$$

On considère une impulsion CHS symétrique de durée $2T >> \beta^{-1}$. Les équations (1.117) conduisent à l'expression suivante de la population du niveau excite $n_2(\Delta)$ dans les ailes extérieures de la zone balayée:

$$n_2(\Delta) = \frac{\Omega^2(T)}{2(\Delta^2 - \mu^2\beta^2)} \left[\frac{2\mu^2\beta^2}{\Delta^2 - \mu^2\beta^2} + 1 - \cos\phi \right] \tag{1.118}$$

Quand $0 < \Delta^2 - \mu^2\beta^2 << \mu^2\beta^2$, le terme oscillant est négligeable et la population du niveau excité présente une variation hyperbolique en fonction de la distance au bord de la zone balayée. La dépendance en $1-\cos\phi$ est dominante quand $\Delta^2 >> 2\mu^2\beta^2$. Ces caractéristiques sont visibles sur la **Figure 5.4**, dans laquelle sont présentées les ailes de la distribution spectrale de population du niveau excité, calculées dans des conditions de durée finie de l'excitation. Le modèle adiabatique présente un excellent accord avec le résultat de la résolution numérique des équations de Bloch.

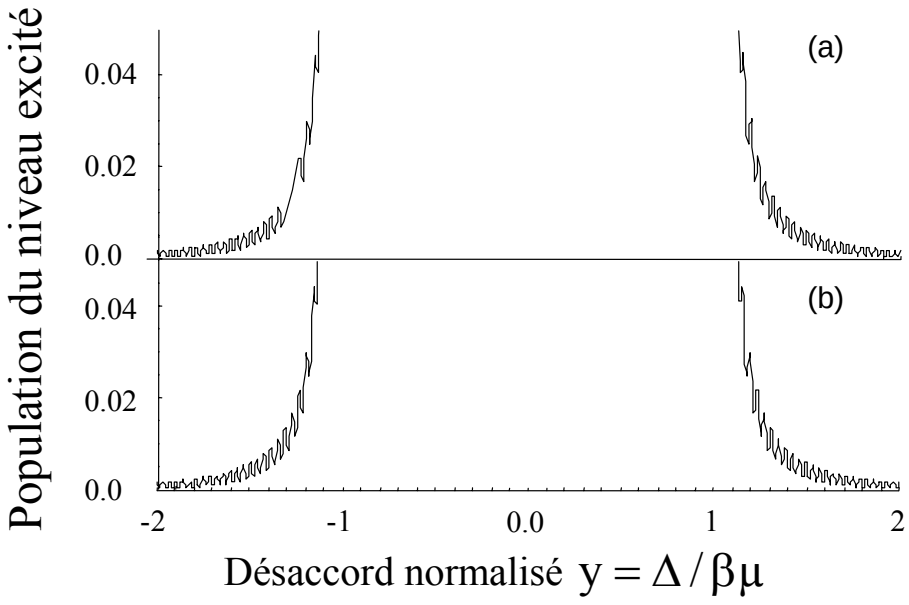

Figure 5.4: Calcul numérique (a) et modèle adiabatique (b) des ailes de la distribution spectrale du niveau excité après une impulsion CHS de durée $6\beta^{-1}$, en l'absence de relaxation. Les paramètres du calcul sont $\mu = 30$ et $\Omega_0 / \mu\beta = 2/3$.

En conclusion, on voit que la durée de vie finie des cohérences et la durée finie de l'impulsion excitatrice peuvent dégrader la sélectivité spectrale du processus d'excitation CHS. La durée totale de l'impulsion en terme de β^{-1} doit être ajustée de façon à ce que son effet sur la sélectivité spectrale soit petit devant l'effet de la durée de vie de cohérence. Ce processus n'en reste pas moins intéressant. En effet, il permet d'obtenir un transfert efficace de population sans oscillation de la probabilité d'excitation dans la zone sélectionnée. De plus, il peut présenter une très bonne sélectivité spectrale dans des matériaux présentant de longues durées de vie des cohérences, en utilisant des impulsions CHS de durée suffisamment longues.

5.3.3 Optimisation de l'efficacité du processus de CHS

Nous avons vu dans les sections précédentes qu'il existe deux conditions qui bornent les valeurs possibles de Ω_0 qui permettent d'obtenir un transfert efficace. La première est la condition (1.102), qui garantit le caractère adiabatique du processus et qui impose une limite inférieure à Ω_0. La seconde est la condition (1.112), qui garantit le caractère cohérent de l'excitation et qui impose une limite supérieure à Ω_0. On considère une impulsion CHS de durée et de largeur à mi-hauteur fixes, ce qui revient à donner une valeur déterminée au paramètre β. Les conditions (1.102) et (1.112) peuvent se réécrire de la façon suivante :

$$\sqrt{\frac{2}{\pi}}\sqrt{\mu\beta^2} << \Omega_0 << \mu\beta^2\ T_2 \qquad (1.119)$$

avec T_2 la durée de vie de cohérence, qui est un paramètre fixe du système étudié. On note $2\Delta_m = 2\mu\beta$ l'intervalle spectral balayé par l'impulsion CHS, que l'on cherche à porter dans l'état excité. L'équation (1.119) se réécrit :

$$\sqrt{\frac{2}{\pi}}\frac{1}{\sqrt{\mu}} << \frac{\Omega_0}{\Delta_m} << \beta T_2 \qquad (1.120)$$

Les deux conditions de l'équation (1.120) peuvent être simultanément vérifiées si:

$$\beta\sqrt{\mu} = \sqrt{r_0} >> \sqrt{\frac{2}{\pi}}\frac{1}{T_2} \qquad (1.121)$$

La durée de vie finie des cohérences impose donc un minimum sur la vitesse de balayage en fréquence de l'intervalle spectral considéré. Lorsque ceci est respecté, on peut s'intéresser à l'efficacité du transfert lorsque Ω_0/Δ_m varie. On peut voir sur la **Figure 5.5** un réseau de courbes représentant la variation du taux de transfert au centre de l'intervalle (correspondant à un désaccord normalisé $y = 0$) en fonction de Ω_0/Δ_m. Ces différentes courbes sont tracées pour différentes valeurs de μ (donc pour différentes valeurs de l'intervalle spectral balayé $2\Delta_m = 2\mu\beta$). Toutes ces courbes présentent les mêmes caractéristiques principales : un maximum, encadré par une décroissance brusque pour des valeurs plus faibles de Ω_0/Δ_m, et une décroissance lente pour des valeurs plus fortes de ce paramètre. La décroissance brusque est due au non-respect de la condition adiabatique. Dans cette zone, la fréquence de Rabi du champ excitateur est trop faible pour que le vecteur de Bloch puisse le suivre adiabatiquement.

On voit que le respect de cette condition est crucial car la probabilité de transition s'écroule dés que la fréquence de Rabi décroît par rapport à sa valeur optimale. La décroissance lente est due à l'effet de la durée de vie finie des cohérences. Dans cette zone, plus la fréquence de Rabi augmente, plus le temps d'interaction des ions avec le champ augmente, et plus le processus est sensible à cette durée de vie finie. La valeur optimale de Ω_0 / Δ_m correspond à celle qui offre le meilleur compromis entre ces deux causes de diminution de l'efficacité de transfert.

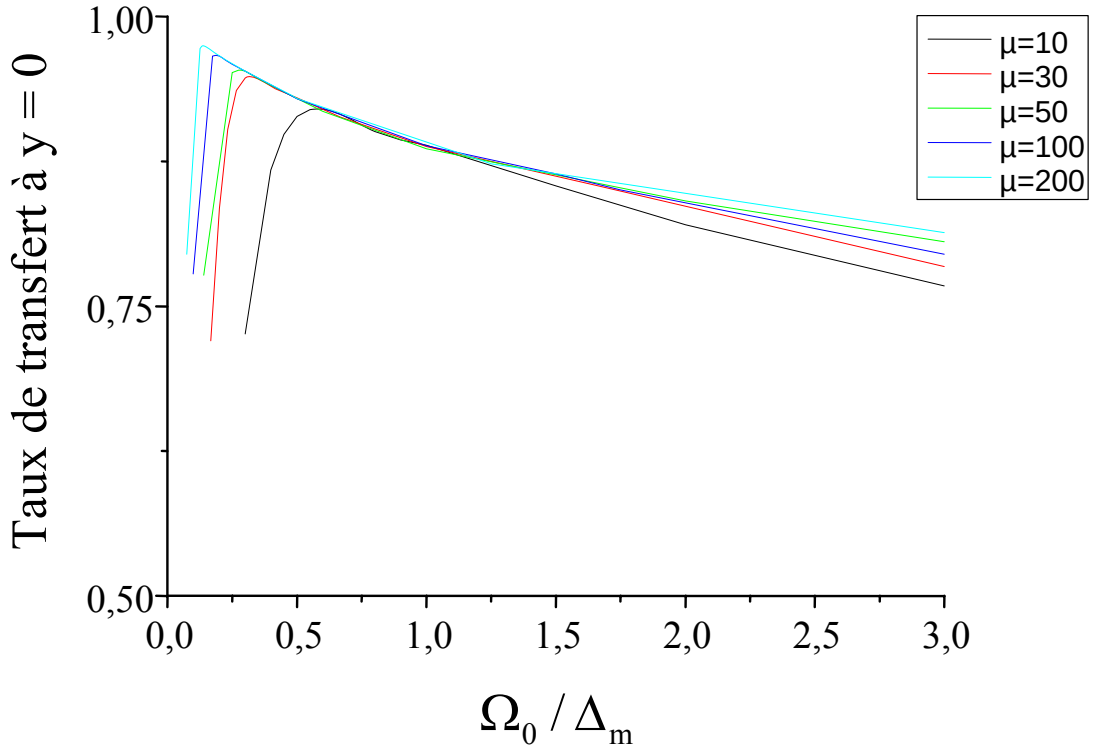

Figure 5.5 : Variation du taux de transfert vers l'état excité en fonction de Ω_0 / Δ_m. Les calculs ont été réalisés avec une impulsion CHS symétrique de durée $6\beta^{-1}$. La durée de vie de cohérence a été prise égale à $T_2 = 8\beta^{-1}$.

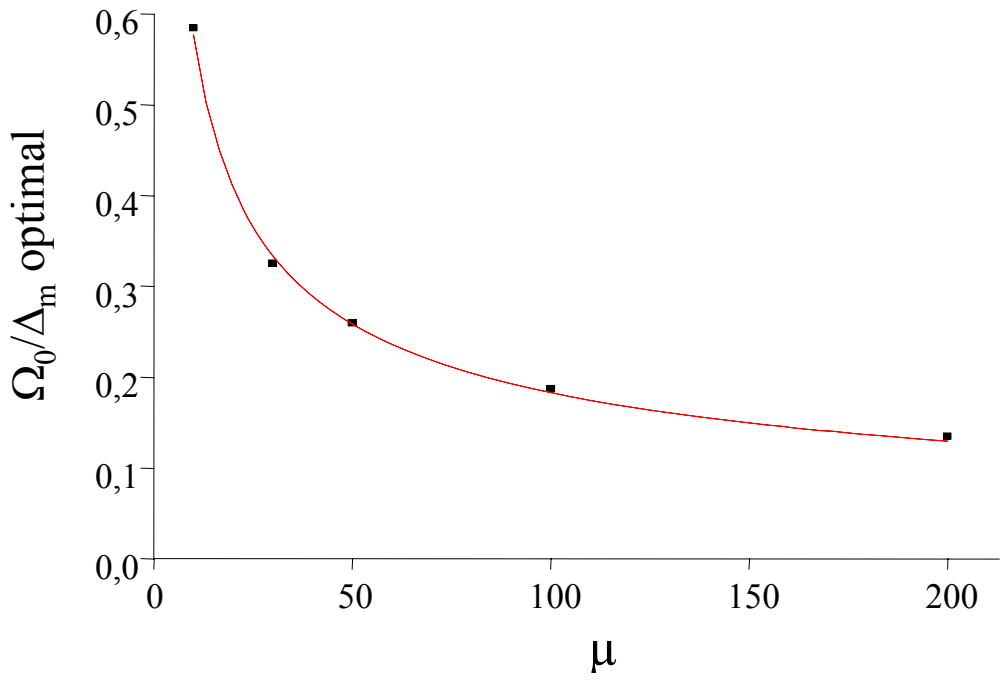

Figure 5.6 : Variation de la valeur optimale de Ω_0/Δ_m en fonction de μ (points noirs) et ajustement à la fonction $\Omega_0/\Delta_m = 1,84/\sqrt{\mu}$ (trait rouge). Les calculs ont été réalisés avec les mêmes paramètres que la **Figure 5.5**.

La variation de la valeur optimale de Ω_0/Δ_m en fonction de μ est représentée sur la **Figure 5.6**. Elle s'ajuste parfaitement à la fonction $\Omega_0/\Delta_m = 1,84/\sqrt{\mu}$. Puisque $\Delta_m = \beta\mu$, ceci se réécrit de la façon suivante :

$$\Omega_0^2(\text{optimal}) = 3,39\ \mu\beta^2 = 3,39\ r_0 \qquad (1.122)$$

On voit que la valeur optimale de Ω_0^2 est proportionnelle à la borne inférieure de la condition adiabatique (1.102), $\Omega_0^2(\min) = 2r_0/\pi$. Le facteur de proportionnalité vaut $\Omega_0^2(\text{optimal})/\Omega_0^2(\min) = 5,32$, ce qui correspond à un rapport des fréquences de Rabi de $\Omega_0(\text{optimal})/\Omega_0(\min) = 2,31$. Pour obtenir le maximum d'efficacité, il faut donc que la fréquence de Rabi soit juste légèrement supérieure au minimum imposé par le respect de la condition adiabatique. Au-delà, l'efficacité de transfert diminue sous l'effet de la durée de vie finie des cohérences. Autrement dit, la condition adiabatique est facilement vérifiée, sans nécessiter de valeurs très élevées de Ω_0. C'est la durée de vie finie des cohérences, paramètre fixe du système étudié, qui limite ultimement l'efficacité du transfert lorsque cette condition est vérifiée.

Le temps de basculement est de l'ordre de $\Omega_0 / r_0 = \Omega_0 / \mu\beta^2$. Pour la valeur optimale de Ω_0, ce temps de basculement se réécrit $\Omega_0(\text{optimal}) / r_0 = 1,84 / \beta\sqrt{\mu}$. Lorsque μ augmente, la taille de l'intervalle spectral balayé $2\Delta_m = 2\mu\beta$ augmente. Ceci correspond, à β constant, à un balayage plus rapide de cet intervalle spectral. Dans ce cas, le temps de basculement diminue, et le système est moins sensible à l'effet de la durée de vie des cohérences. Il en résulte une augmentation de l'efficacité du transfert pour la valeur optimale de Ω_0 lorsque μ augmente, comme on peut le constater sur le réseau de courbes de la **Figure 5.5**. Pour obtenir une grande efficacité de transfert, on a donc intérêt à balayer l'intervalle spectral le plus vite possible, tant que la condition adiabatique reste vérifiée. Expérimentalement, on sera limité par la fréquence de Rabi maximale du laser.

Il est intéressant de noter que la valeur optimale de $\Omega_0 / \Delta_m = \Omega_0 / \mu\beta$ est inférieure à 1 pour toutes les valeurs de μ. Bien que les auteurs ayant présenté les premiers les propriétés de l'impulsion CHS se soient restreints au cas $\Omega_0 > \mu\beta$ [4], il apparaît non seulement que l'on peut réaliser un transfert efficace dans le cas $\Omega_0 < \mu\beta$, mais aussi que c'est dans cette dernière zone que l'on peut obtenir le maximum d'efficacité de transfert dans des conditions d'expérience réelle (impulsions de durée finie, durée de vie finie des cohérences). La vraie condition imposant une borne inférieure à Ω_0 en terme d'efficacité de transfert est la condition adiabatique, ce qui confirme bien le caractère adiabatique du processus d'excitation CHS.

On peut s'interroger sur la robustesse de l'excitation CHS vis-à-vis des variations de Ω_0, comme on le fait dans l'Annexe 2 pour les autres procédures d'excitation que l'on passe en revue. Dans un système possédant une durée de vie de cohérence infinie, on obtiendrait une efficacité de transfert de $\sqsupset 100\%$ quel que soit Ω_0, dès lors que la condition adiabatique est vérifiée. Dans un système réel, même lorsque la condition adiabatique est vérifiée, l'efficacité de transfert présente une décroissance lente avec Ω_0 du fait de l'effet de la durée de vie finie des cohérences. Puisque cette décroissance est lente, des petites variations de Ω_0 n'entraînent pas une variation dramatique du taux de transfert comme cela peut être le cas lorsqu'on utilise des impulsions π (pour lesquelles la variation du taux de transfert en fonction de Ω_0 est sinusoïdale). On peut en conclure que la procédure d'excitation CHS est *quasi-robuste* vis-à-vis des variations de Ω_0. Pour les investigations expérimentales, on a néanmoins intérêt à connaître avec précision la fréquence de Rabi employée pour se placer au voisinage des conditions optimales.

En plus de l'efficacité de transfert au centre de l'intervalle spectral balayé, il est intéressant d'observer la variation du taux de transfert dans les ailes de la structure dans les mêmes conditions d'excitation. On peut voir sur la **Figure 5.7** un réseau de courbes représentant le taux de transfert dans les ailes en fonction de Ω_0 / Δ_m pour différentes valeurs de μ. Le taux de transfert est représenté pour des ions situés à une distance de $\beta\mu / 4$ du bord de l'intervalle spectral balayé (correspondant à un désaccord normalisé $y = 1.25$). Ces taux de transfert présentent une croissance monotone avec le paramètre Ω_0 / Δ_m qui, à β constant, est proportionnel au temps de basculement Ω_0 / r_0. L'augmentation de ce temps de basculement rend le phénomène plus sensible à l'effet de la durée de vie finie des cohérences, ce qui empêche les atomes situés dans les ailes de la structure de revenir dans leur état initial à l'issue du processus de CHS (comme on l'a signalé dans la section 5.3.1).

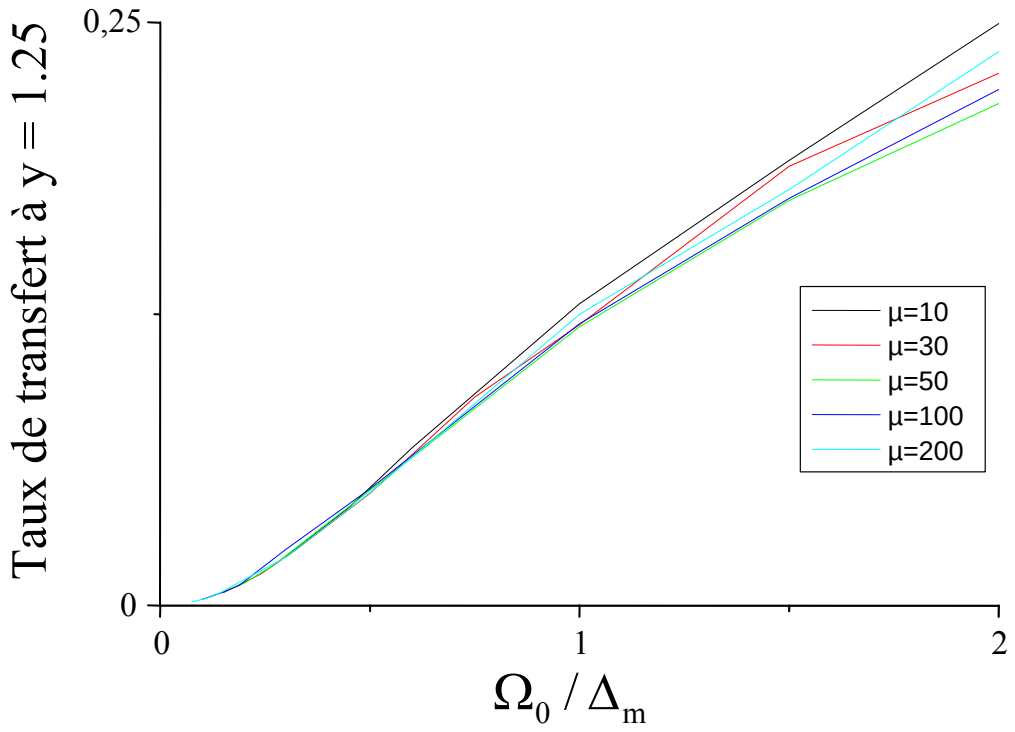

Figure 5.7 : Variation du taux de transfert vers l'état excité en fonction de Ω_0 / Δ_m pour un désaccord normalisé $y = 1,25$. Les calculs ont été réalisés avec une impulsion CHS symétrique de durée $6\beta^{-1}$. La durée de vie de cohérence a été prise égale à $T_2 = 8\beta^{-1}$.

La probabilité d'excitation de ces atomes situés dans les ailes pour la valeur optimale de Ω_0 est reportée sur la **Figure 5.8** pour les différentes valeurs de μ. On observe une

décroissance de cette probabilité d'excitation en fonction de μ, puisque le temps de basculement correspondant ($\Omega_0(\text{optimal})/r_0 = 1,84/\beta\sqrt{\mu}$) diminue lorsque μ augmente. Cette décroissance s'ajuste convenablement à la fonction (1.113), qui représente l'expression adiabatique de la probabilité d'excitation des atomes situés dans les ailes. Encore une fois, on voit que l'on a intérêt utiliser la plus grande valeur de μ possible, ce qui revient à balayer l'intervalle spectral le plus vite possible. La valeur maximale de μ qui permette de respecter la condition adiabatique est imposée expérimentalement par la fréquence de Rabi maximale du laser excitateur. Pour une fréquence de Rabi maximale déterminée, cette valeur maximale de μ est donnée par la relation (1.122).

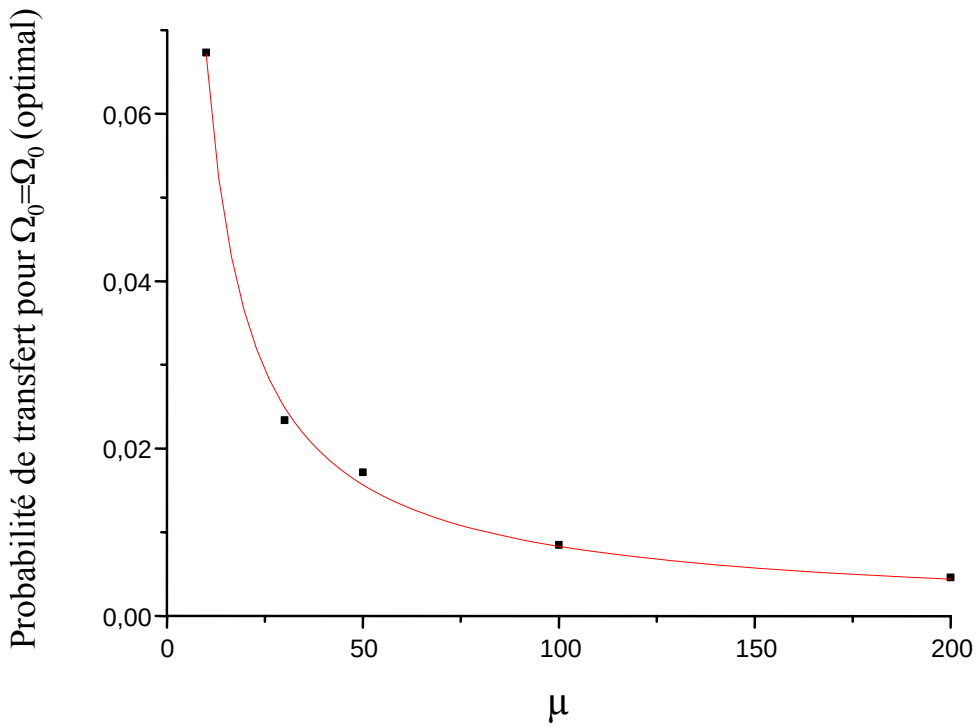

Figure 5.8 : Probabilité d'excitation des ions possédant un désaccord normalisé $y = 1.25$ dans le cas d'une fréquence de Rabi optimale (points noirs), et ajustement par la fonction décrivant l'approximation adiabatique de cette probabilité d'excitation (trait plein rouge).

5.4 Résultats expérimentaux de transfert de population

Les expériences sont réalisées sur un cristal identique à celui utilisé pour les expériences décrites dans le Chapitre 3, mais dont l'épaisseur est de 2mm le long de la direction de propagation de la lumière $[1,\bar{1},0]$. Le champ électrique est polarisé selon la direction [0, 0, 1], ce qui signifie que l'on excite de façon équivalente les sites 3, 4, 5 et 6 et que les sites 1 et 2 ne sont pas couplés à l'excitation. La densité optique correspondante est de l'ordre de 0,1.

Comme la différence de population $n_1 - n_2$ est proportionnelle à la densité optique, nous allons sonder l'efficacité du transfert de population en mesurant la transmission d'un faisceau lumineux atténué à travers l'échantillon préalablement excité par une impulsion CHS. Le montage expérimental est représenté sur la **Figure 5.9**. Il correspond au montage utilisé pour réaliser les expériences décrites dans le Chapitre 3 à quelques différences près. Les impulsions CHS sont mises en forme en amplitude et en phase par le modulateur accousto-optique AO1, commandé par le générateur de forme arbitraire Sony-Tektronix AWG 520 qui travaille maintenant à une fréquence centrale de 80 MHz. Le rayon du faisceau lumineux (waist) à $1/e^2$ sur le cristal est de $w_1 = 33\ \mu m$. La puissance du laser à l'entrée du cryostat est $P_1 \approx 0.6\ mW$. D'après la valeur du moment dipolaire électrique rapportée dans la référence [11], cela correspond à une fréquence de Rabi maximale $\Omega_0 \approx 2.0\ 10^6 s^{-1}$. Le cristal est imagé sur un trou de filtrage de 100 µm de diamètre, de façon à ne sonder que la partie centrale de la région exposée. Le diamètre du faisceau à $1/e^2$ sur le trou de filtrage est de $2w_2$ = 260 µm. Comme dans les expériences décrites dans le Chapitre 3, la lumière transmise est détectée par la photodiode à avalanche Hamamatsu C5460, qui est protégée de l'excitation par le modulateur AO2.

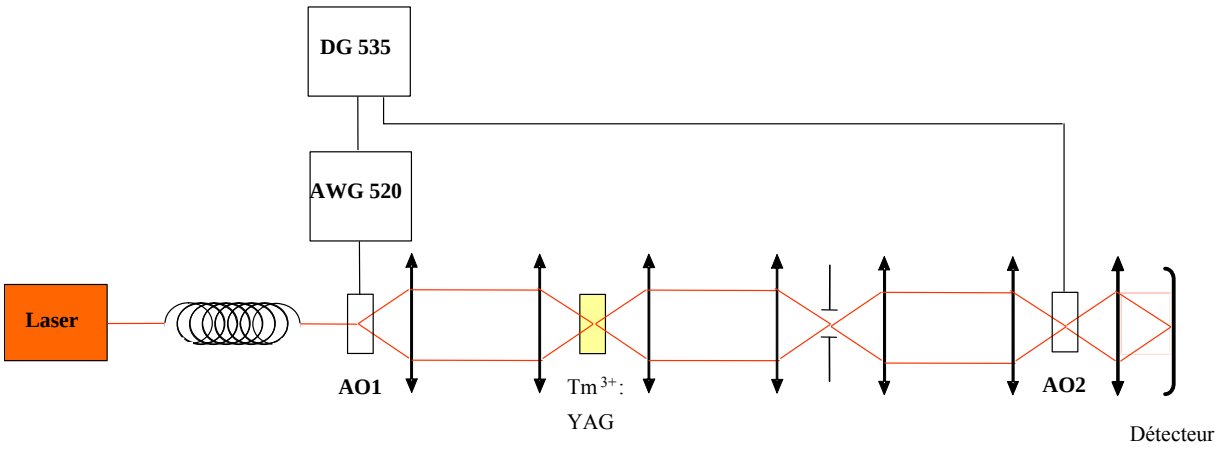

Figure 5.9: Montage expérimental incluant les dispositifs optiques et électroniques. Le rayon lumineux est filtré spatialement à travers une fibre optique. Les impulsions CHS sont mises en forme par le modulateur acousto-optique AO1. Un générateur d'impulsions (DG 535) synchronise le générateur de forme arbitraire (Sony-Tektronix AWG 520) qui commande AO1. AO1 est imagé sur le cristal, qui est refroidi à 1.5 K dans un cryostat. Le cristal est imagé sur un trou d'épingle. Le modulateur AO2 est commandé par le générateur d'impulsions et protège le détecteur de l'excitation.

Le chronogramme d'une séquence d'excitation-sonde est présenté sur la **Figure 5.10**. Durant la séquence d'excitation, le modulateur AO1 met en forme l'impulsion CHS alors que le modulateur AO2 est fermé pour protéger le détecteur. La fréquence du laser est balayée sur un intervalle spectral de 750 kHz pendant un temps $\tau = 75\ \mu s = 6\beta^{-1}$, ce qui correspond à une valeur de $\mu = 29.45$ et à une variation de $\beta(t - t_0)$ de -3 à +3. L'amplitude du champ électrique au moment de l'établissement et de la coupure est inférieure à $1/10^e$ de sa valeur maximale. Lors de la phase de lecture, le faisceau sonde est très fortement atténué par le modulateur AO1 tandis que AO2 est ouvert. Durant cette phase, le laser est linéairement balayé en fréquence sur un domaine spectral deux fois plus large que l'intervalle balayé lors de la phase d'excitation, de façon à sonder également les ions non exposés. Le taux de glissement de fréquence est réduit à la valeur $r_P = 3.75\ 10^9\ Hz/s$ lors de la phase de sonde, de façon à ce que la résolution de la lecture, donnée par $\sqrt{r_P}$, soit de l'ordre de $\square$ 60 kHz. On s'attend à observer une amplification du faisceau sonde dans l'intervalle spectral excité par l'impulsion CHS.

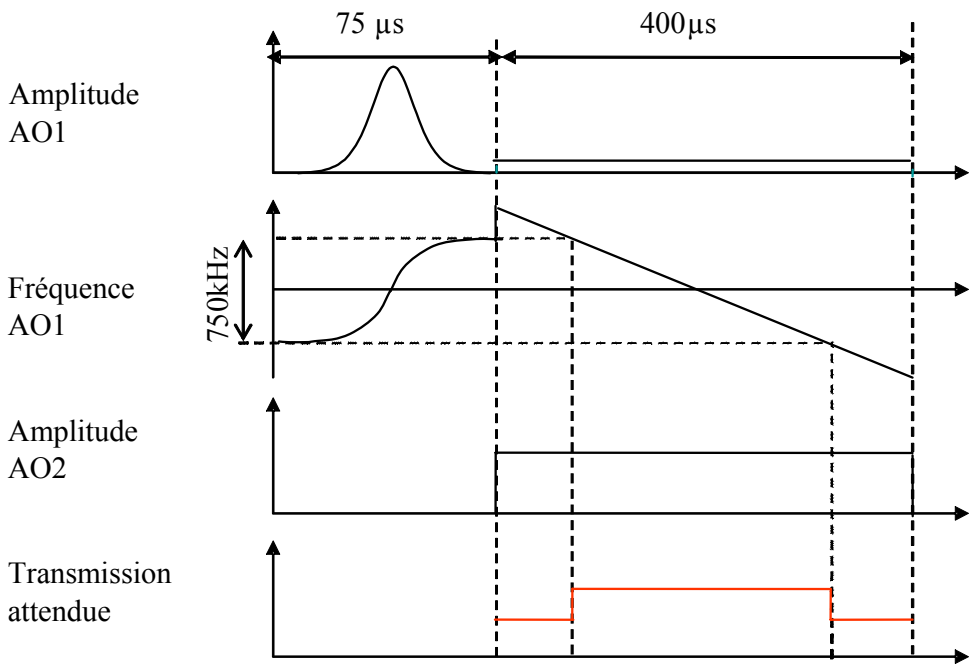

Figure 5.10: Chronogramme d'une expérience d'excitation-sonde. Pendant la phase d'excitation, l'impulsion CHS est mise en forme en amplitude et en phase par AO1 et AO2 est fermé. Pendant la phase de sonde, l'amplitude du laser est atténuée et sa fréquence est linéairement balayée par AO1. AO2 est alors ouvert. L'intervalle spectral excité sera exploré au centre du balayage en fréquence du faisceau sondé. On s'attend à une amplification du faisceau sonde dans cette zone spectrale.

La densité optique D s'exprime de la manière suivante:

$$D = \log\left(\frac{I_0}{I}\right) \tag{1.123}$$

où I_0 et I représentent respectivement l'intensité incidente et l'intensité transmise. La densité optique est proportionnelle à la différence de population $n_1 - n_2$. On suppose que tous les ions sont dans l'état fondamental avant l'excitation. Soient $D^{(0)}$ et $D^{(1)}(t)$ la densité optique respectivement avant et à un instant t après l'excitation. Le rapport de ces densités optiques s'écrit :

$$\frac{D^{(1)}(t)}{D^{(0)}} = n_1(t) - n_2(t)\,. \tag{1.124}$$

Juste après l'excitation, la population est partagée entre les niveaux 1 et 2, donc:

$$n_1(0) + n_2(0) = 1 \tag{1.125}$$

On suppose que la population du niveau excité décroît exponentiellement au taux $\kappa = \kappa_{21} + \kappa_{23} = 2000\ s^{-1}$ avec un taux de branchement vers le niveau métastable $^3F_4$ et vers le niveau fondamental $^3H_6$ respectivement égaux à η = 0.75 et 1-η. On peut alors exprimer $D^{(1)}(t)$ seulement en fonction de $n_2(0)$:

$$\frac{D^{(1)}(t)}{D^0} = 1 - n_2(0)\left(\eta + (2-\eta)\exp(-\kappa t)\right) \tag{1.126}$$

On obtient finalement des équations (1.123) et (1.126) l'expression de $n_2(0)$:

$$n_2(0) = \frac{1}{\eta + (2-\eta)\exp(-\kappa t)} \frac{\log\left(I_{TP}(t)/I_{TU}\right)}{\log\left(I_0/I_{TU}\right)} \tag{1.127}$$

où I_{TU} et I_{TP} représentent respectivement l'intensité transmise à travers l'échantillon non-exposé et à travers l'échantillon excité. L'intensité I_{TU} est obtenue dans les ailes lointaines du profil de transmission, loin en dehors de la zone spectrale balayée. L'intensité amplifiée I_{TP} est obtenue en régime de "coup unique", où le taux de répétition de l'expérience, égal à 10 Hz, est ~ 10 fois plus petit que le taux de désexcitation du niveau métastable. L'intensité incidente I_0 coïncide avec l'intensité transmise à travers l'échantillon totalement blanchi. Ceci est mesuré en régime d'accumulation, dans lequel la séquence d'excitation-sonde est répétée à un taux de 2 KHz. Les ions excités sont alors pompés vers le niveau métastable par la répétition de l'excitation, et la transition atomique correspondante est complètement blanchie.

La distribution spectrale de la population de l'état excité correspondante est représentée avec le profil calculé sur la **Figure 5.11**. Le transfert de population expérimental est de ~ 94%, légèrement supérieur à la valeur calculée. Cela peut signifier que l'on surestime la fréquence de Rabi puisque, comme on peut le voir dans la section précédente, le taux de transfert maximum pour $\mu \sim 30$ est de l'ordre de 94% pour une fréquence de Rabi de l'ordre de $\Omega_0 \sim 0.8\ 10^6\ s^{-1}$. L'imprécision sur la fréquence de Rabi pourrait être due à la difficulté de focaliser correctement le faisceau à l'intérieur du cryostat. Cette supposition est corroborée par l'observation de l'émission de lumière cohérente par les ions qui est présentée dans l'article joint en Annexe 4. Le profil de transmission en régime d'accumulation a été utilisé pour calibrer l'intensité incidente. Ce profil donne également des informations sur la sélectivité spectrale. En effet, l'échantillon soumis à une excitation répétée semble être totalement blanchi en dehors de la zone balayée. Ceci est une signature de l'excitation dans les ailes associée à la durée de vie finie des cohérences, comme on l'a discuté dans la section précédente.

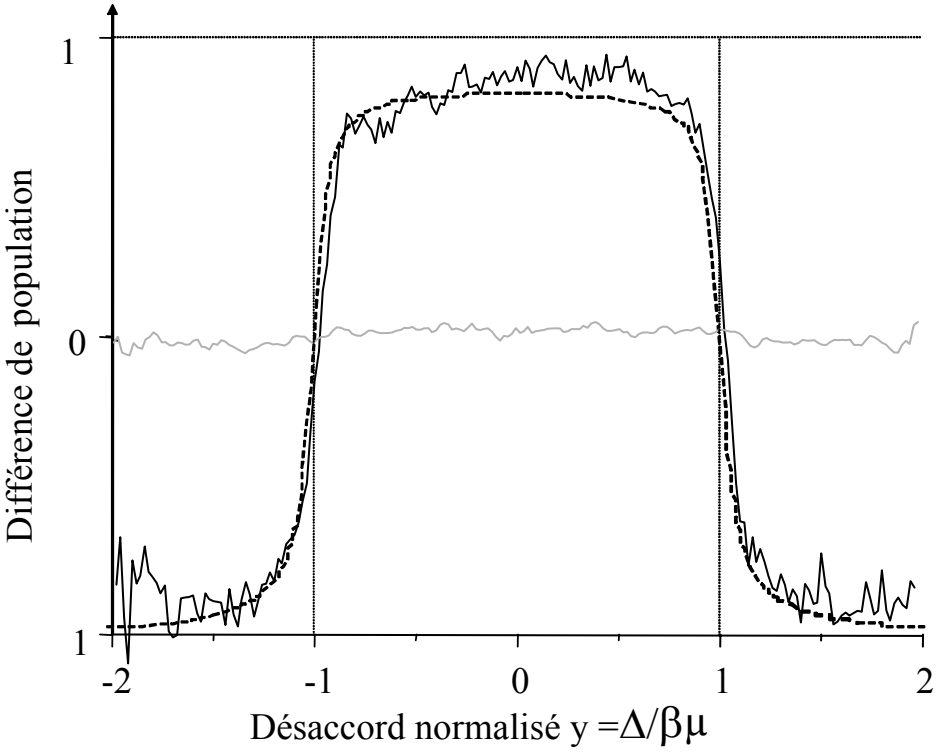

Figure 5.11: Distribution spectrale de la population du niveau excité calculée (traits pointillés) et mesurée (traits pleins) juste après excitation par une impulsion CHS de durée $6\beta^{-1} = 75\mu s$. Les paramètres de l'excitation sont $\mu = 30$, $\beta = 0.08\ \mu s^{-1}$ et $\Omega_0 / \mu\beta = 0.9$. La durée de vie de cohérence est $T_2 = 8\beta^{-1} = 100\mu s$. Le trait plein en gris représente le régime d'accumulation avec un taux de répétition de 2 kHz.

5.5 Conclusion

Conformément aux prédictions théoriques, l'excitation CHS semble donc être un bon moyen de réaliser un transfert efficace de population dans un ensemble macroscopique d'ions présentant un élargissement inhomogène important. La sélectivité spectrale du processus nécessite que la durée de l'impulsion soit très petite devant la durée de vie de cohérence, condition qui n'est pas totalement satisfaite dans l'expérience présentée ici. Néanmoins, en utilisant des impulsions CHS plus courtes, on doit pouvoir arriver à réduire l'excitation dans les ailes que l'on a observée. Cela nécessite de disposer d'une fréquence de Rabi plus importante, donc d'une puissance laser plus importante, pour que la condition adiabatique reste satisfaite avec des taux de glissement de fréquence plus grands.

Références

[1] D. Allen, J. H. Eberly, *Optical resonance and two-level atoms*, Wiley, New York (1975)

[2] A. Bambini, P. R. Berman, Phys. Rev. A **23**, 2496 (1981).

[3] F. T. Hioe, Phys. Rev. A **30**, 2100 (1984).

[4] M. S. Silver, R. I. Joseph, D. I. Hoult, Phys. Rev. A **31**, 2753 (1985)

[5] M. S. Silver, R. I. Joseph, C. - N. Chen, V. J. Sank, D. I. Hoult, Nature **310**, 683 (1984)

[6] F. C. Spano, W. S. Warren, Phys. Rev. A **37**, 1013 (1988).

[7] M. R. Fetterman, J. C. Davis, D. Goswami, W. Yang, W. S. Warren, Phys. Rev. Lett. **82**, 3984 (1999).

[8] M. R. Fetterman, PHD Thesis, Princeton University (1999)

[9] I. Roos, K.Molmer, Phys. Rev. A **69**, 22321 (2004).

[10] M. Abramowitz, I. A. Stegun, *Handbook of Mathematical Functions*, National Bureau of Standards, Washington, DC, 1964

[11] Y. Sun, G. M. Wang, R. L. Cone, R. W. Equall, M. J. M. Leask, Phys. Rev. B **62**, 15443 (2000)

CONCLUSION

Nous avons présenté dans ce mémoire différents travaux théoriques et expérimentaux ouvrant la voie à la réalisation de mémoires quantiques dans des ions de terre rare en matrice cristalline, que nous avons choisis en raison de la longue durée de vie des cohérences optique et Raman. Parmi les différents ions de terre rare disponibles, nous avons justifié le choix de travailler sur l'ion Tm^{3+}, et nous avons détaillé le principe de la création d'un système à trois niveaux efficace dans $Tm^{3+}:YAG$ en utilisant un champ magnétique extérieur.

Les résultats expérimentaux de spectroscopie de ce système à trois niveaux ont permis de mesurer les facteurs gyromagnétiques de $Tm^{3+}:YAG$ avec une précision satisfaisante, et en bon accord avec les valeurs théoriques. La très forte anisotropie du tenseur gyromagnétique (avec la composante dominante dans la direction du moment dipolaire électrique) a été vérifiée. Ces mesures permettent d'avoir une première idée du système à trois niveaux réalisé et des taux de branchement que l'on peut espérer atteindre entre les transitions. Les prévisions théoriques laissent penser que l'on peut obtenir des taux relativement élevés. Néanmoins, on n'a pas encore pu réaliser une mesure directe et précise de ce taux de branchement.

Pour le mesurer, il faudra réaliser une mesure des fréquences de Rabi sur les deux transitions du système à trois niveaux considéré. Ceci nécessitera au préalable d'effectuer la préparation du système de telle manière qu'un seul type de système à trois niveaux absorbe sur ces deux transitions, conformément à la procédure de préparation que l'on a présentée. La mesure des probabilités de transition aux deux fréquences du système sélectionné donnera directement accès au taux de branchement entre les deux transitions.

Il sera également intéressant de réaliser une mesure de la durée de vie des niveaux hyperfins et des cohérences hyperfines, qui sont encore inconnues à ce jour. Il apparaît d'ores et déjà que la durée de vie des niveaux hyperfins peut varier de quelques secondes à au moins quelques dizaines de minutes selon les sites excités et l'orientation du champ magnétique appliqué. Néanmoins, aucune mesure précise n'a encore été réalisée. La durée de vie des niveaux hyperfins intervient dans les opérations de pompage optique requises pour la préparation du système à trois niveaux. Les durées de vie des cohérence hyperfines, quant à

elles, limitent la durée de stockage de l'information quantique. On envisage de mesurer ces temps de cohérence en réalisant des expériences d'échos de photons, du type écho Raman.

L'étape suivante consistera à réaliser des processus de type transparence électromagnétiquement induite (*EIT*) dans ces matériaux. Là encore, ceci nécessitera au préalable de préparer le système de façon à disposer d'un groupe d'ions spectralement fin dans l'état fondamental, isolé sur les deux transitions considérées. La préparation d'un tel groupe d'ions permettra de manipuler celui-ci de façon cohérente et de tenter d'observer les phénomènes de transparence électromagnétiquement induite, de ralentissement de la lumière et de stockage d'impulsion lumineuse classique. Ces phénomènes ont déjà été observés par M. S. Shahriar et P. R. Hemmer dans des ions de terre rare en matrice cristalline [1-3], mais avec un laser excitateur à colorant offrant une stabilité et un temps de cohérence très inférieurs à ceux du laser utilisé dans les expériences présentées dans ce travail de thèse.

Il sera ensuite intéressant de tenter de réaliser le stockage d'une impulsion lumineuse possédant des propriétés quantiques, ce qui n'a encore jamais été réalisé dans un solide. On pourra pour cela s'appuyer sur le mécanisme de polariton noir [4], ou sur les processus d'intrication par rotation de Faraday induite par excitation non résonante [5-6] ou par diffusion Raman spontanée [7]. Il reste encore à déterminer quelles sortes de propriétés quantiques de la lumière seraient les plus appropriées pour être stockées dans ce matériau : impulsion avec un petit nombre de photons, état cohérent compressé (*squeezé*), vide compressé…

La principale difficulté à laquelle on risque de se heurter pour réaliser ces expériences est la faible absorption du champ électrique par les ions de terre rare, qui provient du fait que les transitions excitées sont quasi-interdites. Pour réaliser des processus de type EIT, il est en effet nécessaire que le milieu matériel soit *optiquement épais*, c'est-à-dire qu'il absorbe complètement le champ électrique signal. La densité optique des matériaux utilisés jusqu'ici était relativement faible, et ceci pour deux raisons. La première est que l'on utilisait des échantillons peu dopés pour ne pas dégrader la durée de vie de cohérence par interaction ion-ion, et la deuxième est que l'on travaille en général seulement avec les ions appartenant à certains sites, de façon à contrôler la fréquence de Rabi du champ excitateur.

Une solution possible pour augmenter l'absorption du matériau serait d'utiliser des cristaux présentant un dopage plus important, de l'ordre de 0.5%. A cette concentration, les interactions ion-ion restent sans grande influence sur la durée de vie de cohérence. C'est dans ces conditions qu'ont été réalisées les expériences dans le groupe de M. S. Shahriar et P. R. Hemmer [1-3], avec des cristaux de dimension 3mm le long de la direction de propagation et un faisceau laser de diamètre environ 100μm dans le matériau.

Une autre solution possible pour augmenter l'absorption du matériau serait d'utiliser un échantillon plus long dans la direction de propagation. Ceci nécessiterait d'élargir le faisceau laser dans le cristal de façon à ce que la profondeur de champ soit supérieure à la longueur de l'échantillon. La profondeur de champ est égale au double de la distance de Rayleigh $d_R = \pi\ w^2 / \lambda$, où w représente le diamètre du faisceau focalisé dans le cristal et λ la longueur d'onde. Elargir le faisceau dans l'échantillon est possible, car celui-ci était jusque-là très focalisé de manière à obtenir la fréquence de Rabi la plus grande possible (notamment dans le cadre des expériences sur l'excitation cohérente optique). Néanmoins, cette solution n'est pas sans risque, car elle peut provoquer à la longue un échauffement du matériau. Les matériaux massifs sont en effet plus difficiles à refroidir par cryogénie. Cet obstacle pourrait éventuellement être contourné en utilisant un empilement de lames de faible épaisseur, comme l'ont réalisé A. Mouhsen et al. pour effectuer la spectroscopie haute résolution de films minces [8].

On pourrait également envisager d'utiliser un échantillon optiquement mince placé dans une cavité, de manière à obtenir une absorption effective importante du champ électrique par le cristal. Un tel dispositif a permis à T. W. Mossberg et al. d'observer des phénomènes d'échos de photons dans Tm^{3+} :YAG présentant une très grande efficacité [9].

Les travaux réalisés dans le groupe de M. S. Shahriar et P. R. Hemmer permettent néanmoins d'être optimistes quant à la possibilité de réalisation de telles opérations dans des cristaux dopés terre rare. La perspective de les réaliser avec le laser ultra-stable dont on dispose semble très prometteuse.

Références

[1] B. S. Ham, P. R. Hemmer, M. S. Shahriar, Optics. Comm **144**, 227 (1997)

[2] B. S. Ham, P. R. Hemmer, M. S. Shahriar, Phys. Rev. A **59**, R2583 (1999)

[3] A. V. Turukhin, V. S. Sudarshanam, M. S. Sharhiar, J. A. Musser, B. S. Ham, P. R. Hemmer, Phys. Rev. Lett. **88**, 23602 (2002)

[4] M. Fleischauer, M. D. Lukin, Phys. Rev. Lett. **84**, 5094, (2000)

[5] A. Kuzmich, K. Mølmer, E. S. Polzik, Phys. Rev. Lett. **79**, 4782 (1997)

[6] A. Kuzmich, E. S. Polzik, Phys. Rev. Lett. **85**, 5639 (2000)

[7] A. Kuzmich, W. P. Bowen, A. D. Boozer, A. Boca, , C. W. Chou, L. M. Duan, H. J. Kimble, Nature **423**, 731 (2003)

[8] M. Orrit, J. Bernard, H. Talon, A. Mouhsen, Thin Solid Films **210/211**, 141 (1992)

[9] T. Wang, C. Greiner, T. W. Mossberg, Opt. Lett. **23**, 1736 (1998)