



HAL
open science

DIFFUSION MULTIPLE DE LA LUMIERE EN PRESENCE DE GAIN DANS UN NUAGE D'ATOMES FROIDS : VERS UN LASER ALEATOIRE.

Franck Michaud

► **To cite this version:**

Franck Michaud. DIFFUSION MULTIPLE DE LA LUMIERE EN PRESENCE DE GAIN DANS UN NUAGE D'ATOMES FROIDS : VERS UN LASER ALEATOIRE.. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Nice Sophia Antipolis, 2008. Français. NNT : . tel-00331527v7

HAL Id: tel-00331527

<https://theses.hal.science/tel-00331527v7>

Submitted on 2 Feb 2009

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.

INSTITUT NON LINÉAIRE DE NICE

UNIVERSITÉ NICE SOPHIA ANTIPOLIS, U.F.R. SCIENTIFIQUE

ÉCOLE DOCTORALE DE SCIENCES FONDAMENTALES APPLIQUÉES

THÈSE

présentée par

Franck Michaud

pour obtenir

le grade de DOCTEUR EN SCIENCES

DE L'UNIVERSITÉ NICE SOPHIA ANTIPOLIS.

Spécialité : PHYSIQUE

Sujet :

**DIFFUSION MULTIPLE DE LA LUMIERE EN PRESENCE DE GAIN
DANS UN NUAGE D'ATOMES FROIDS :
VERS UN LASER ALEATOIRE**

Thèse soutenue le 14 Novembre 2008 devant le jury composé de :

M. Rémi Carminati
M. Phillipe Verkerk
M. Jean-Yves Courtois
M. Wojciech Gawlik
M. Christian Vanneste
M. Robin Kaiser

Rapporteur
Rapporteur
Examineur
Examineur
Président du jury
Directeur de thèse

Remerciements

Je tiens à remercier en premier lieu Robin Kaiser pour avoir encadré avec beaucoup de dévouement mon travail de thèse. Son foisonnement d'idées, sa grande culture scientifique et son engouement pour la recherche, resteront pour moi une référence. Je tiens également à remercier la DGA au nom de Bruno Desruelle pour avoir financé cette thèse

Mes remerciements se dirigent ensuite aux membres du jury qui ont accepté d'être référants de cette thèse. Je remercie Philippe Verkerk et Rémi Carmona d'avoir accepté d'être rapporteurs du manuscrit. Je tiens notamment à remercier Philippe Verkerk, qui grâce à sa très bonne connaissance des thèmes scientifiques abordés, a pu aider à améliorer la qualité finale du manuscrit. Je tiens ensuite à remercier les autres membres du jury : Christian Vanneste qui a suivi avec soin les dernières étapes de rédaction du manuscrit, Wojtek Gawlik pour sa gentillesse et pour s'être déplacé depuis Cracovie, et Jean-Yves courtois, précurseur théoricien du gain Raman dans les atomes froids, qui a accepté d'être membre du jury malgré un emploi du temps chargé.

Je remercie toutes les personnes que j'ai côtoyées au laboratoire. Je commencerais par Guillaume Labeyrie avec qui j'ai commencé lors d'un stage précédent ma thèse, et qui m'a initié à "faire un MOT". Je n'oublis pas José Tabosa, visiteur brésilien, avec qui j'ai commencé les expériences de gain. Je le remercie pour sa gentillesse. Mes remerciements vont ensuite à Gian Lucas Gattobigio également en thèse sur la manip, qui a toujours égayé la pièce avec sa verve italienne. Je lui souhaite bonne chance pour la suite. Je remercie également beaucoup William Guérin, qui est arrivé en Post-doc un peu avant ma dernière année de thèse, et qui a donné un réel élan à nos recherches. Je le remercie pour toutes les astuces qu'il m'a transmises, allant de l'asservissement des diodes, aux fichiers TeX de la thèse, et au dépannage coquace de batterie de voiture (toujours garder le moteur allumé!). Nous avons passé de bon moment, notamment dans les refuges du Mercantour, en compagnie de Simone Bux, experte du CARL. Je lui souhaite également bonne chance pour la fin du post doc, et surtout pour la suite. Je remercie également l'équipe Strontium, Maryvonne Chalony et David Wilkowski. Je suis reconnaissant envers David Wilkowski pour sa disponibilité et pour m'avoir permis d'effectuer des vacances d'enseignement. Je remercie également dans le désordre l'équipe technique du labo : Jean-Charles Berri à la mécanique, Jean Claude ...

et Arnaud Dussaucy à l'électronique, et Christian Taggiasco à la l'informatique. Je souhaite une bonne thèse aux nouveaux arrivants Nicolas Mercadier, et Tom Bienaimé, et de profiter des avantages des alentours de Nice !

Mes derniers remerciements se tournent maintenant vers ma famille, mon père, ma mère, ma grand-mère et mon parrain pour leur permanent soutien. Je remercie aussi ma chérie Stéphanie et toute sa famille pour leur accueil toujours chaleureux.

Table des matières

Introduction	7
1 Diffusion de la lumière dans les milieux désordonnés	11
1.1 Milieu passif : vers la localisation de la lumière	13
1.1.1 Introduction	13
1.1.2 Définitions des grandeurs	14
1.1.2.1 Section efficace de diffusion	14
1.1.2.2 Loi de Beer Lambert	16
1.1.2.3 Longueurs caractéristiques	18
1.1.3 Régime diffusif	20
1.1.4 Régime de localisation faible	22
1.1.5 Régime de localisation forte	24
1.1.6 Atomes froids et désordre	26
1.2 Milieu actif : vers un laser aléatoire	27
1.2.1 Gain et désordre	28
1.2.2 Régime diffusif : “the photonic bomb”	29
1.2.3 Laser aléatoire cohérent	31
1.2.4 Laser aléatoire et atomes froids	33
1.3 Résumé	33
2 Le dispositif expérimental	35
2.1 Piégeage d’atomes par laser	35
2.1.1 Le refroidissement Doppler	35
2.1.2 Coefficient de diffusion	37
2.1.3 Le piège magnéto-optique	38
2.2 Notre expérience	40
2.3 Grandeurs caractéristiques du nuage d’atomes	41
2.3.1 Épaisseur optique	41
2.3.2 Fluorescence du nuage	43
2.3.3 Atomes froids et désordre	43
2.4 Instabilités dynamiques	44
2.4.1 Présentation	44
2.4.2 Force répulsive	46
2.4.3 Etude expérimentale	47

2.4.4	Publication : “Self-Sustained Oscillation in a large Magneto-Optical Trap”	51
2.5	Résumé	56
3	Mécanismes de gain dans un nuage d’atomes froids	57
3.1	Mécanisme de gain dans un laser classique : généralités	58
3.1.1	Milieu laser et pompage	59
3.1.2	Amplification laser	62
3.2	Formalisation de l’interaction résonante matière-lumière : les équations de Bloch optiques	63
3.2.1	Hamiltonien du système atome et champ	63
3.2.2	Matrice densité	64
3.2.3	Approximation du champ tournant et décomposition harmonique dans l’espace de Fourier	64
3.3	Atomes à deux niveaux d’énergie	65
3.3.1	Cas d’un atome soumis à une onde monochromatique	65
3.3.1.1	Equations de Bloch optique	65
3.3.1.2	Polarisabilité diélectrique	68
3.3.2	Cas d’atomes à 2 niveaux soumis à deux ondes pompe et sonde, de fréquences différentes	70
3.3.2.1	Calcul perturbatif	70
3.3.2.2	Calcul exact : courbe de transmission et fluorescence	71
3.3.3	Interprétation physique et résumé	79
3.4	Cas d’une transition $J = 1 \rightarrow J = 2$, effet Raman	80
3.4.1	Résolution dans le cas perturbatif	81
3.5	Mélange à 4 ondes	83
3.5.1	Approche classique	84
3.5.2	Approche quantique : cas d’un atome à deux niveaux	87
3.5.3	Mélange à quatre ondes en polarisation \perp , et cas non-dégénéré	89
3.6	Résonance Induite par Recul (RIR)	90
3.7	Données expérimentales sur le gain et le mélange à quatre ondes	92
3.7.1	Montage expérimental	92
3.7.2	Observation du gain Mollow	97
3.7.3	Observation du gain Raman	100
3.7.4	Mélange à quatre ondes dégénéré et non dégénéré	106
3.7.5	Publication : “Bunching-induced asymmetry in degenerate four-wave mixing with cold atoms”	109
3.8	Résumé	117

4	Laser à atomes froids	119
4.1	Introduction	119
4.2	Interférences entre mélange à quatre ondes et gain Raman	119
4.2.1	Configuration de l'expérience et résultats	119
4.2.2	Analyse de la courbe de gain	121
4.2.2.1	Battement de fréquence	121
4.2.2.2	Effet de cavité	124
4.2.3	Publication : "Interference between Raman gain and four-wave mixing in cold atoms"	127
4.3	Laser à atomes froids	136
4.3.1	Cavité laser	136
4.3.2	Fonctionnement et détection	139
4.3.3	Lasers multiples	141
4.3.3.1	Laser Mollow	142
4.3.3.2	Laser Raman	149
4.3.3.3	Laser à mélange à quatre ondes	153
4.3.3.4	Régimes intermédiaires	157
4.3.4	Publication : "Mechanisms for Lasing with Cold Atoms as the Gain Medium"	161
4.4	Résumé et perspectives : vers un laser aléatoire	166
4.4.1	Résumé	166
4.4.2	Vers un laser aléatoire	167
A	Détail du fonctionnement de l'expérience	173
B	Données Rubidium 85	177
C	Mode transverse d'une cavité laser	181
C.1	Modes Gaussiens	181
C.2	Modes d'Hermite-Gauss	181
C.3	Modes de Laguerre-Gauss	182
	Bibliographie	183

Introduction

Contexte scientifique

En 1958, P.W Anderson publie l'article "Absence of Diffusion in Certain Random Lattice" [1], où pour la première fois est exposée l'idée de la localisation d'une onde lors de sa propagation dans un milieu désordonné, où la densité de diffuseurs est très élevée. L'origine de ce travail était l'explication de la transition métal-isolant intervenant dans certains matériaux semi-conducteurs [2], mais le domaine d'application s'est depuis vastement étendu vers d'autres domaines, comme le transfert radiatif [3], la sismologie [4], et la physique atomique [5]. De plus, la preuve expérimentale du phénomène de localisation est un défi important dans lequel se sont engagées beaucoup d'équipes d'expérimentateurs [6–12].

Les recherches sur l'observation directe de la localisation d'Anderson ont ainsi créé de nouveaux axes d'étude, telles que la rétrodiffusion cohérente, la localisation faible et la diffusion multiple [13], que nous évoquerons dans cette thèse.

En 1967, V.S. Letokhov publie l'article "Generation of light by a scattering medium with a negative resonance absorption" [14], et évoque pour la première fois, l'idée d'utiliser l'effet de la diffusion multiple pour amplifier une onde se propageant dans un milieu désordonné possédant du gain. C'est un procédé qui fut plus tard qualifié de "laser aléatoire" [15–18], et qui est actuellement un domaine de recherche actif [19, 20]. Le laser aléatoire peut être vu comme un nouveau moyen de produire un laser sans aucun alignement optique, et pouvant être placé sur n'importe quel support.

Suivant la réponse spectrale du milieu, on peut distinguer deux catégories de laser aléatoire [21, 22] :

- laser aléatoire incohérent : l'onde se propage par diffusion dans le milieu à gain, et la diffusion multiple permet d'allonger le parcours de l'onde dans le milieu. L'amplification se fait par un processus d'émission spontanée amplifiée [23], et l'émission laser résulte de la superposition du rayonnement de tous les modes étendus. Le terme "laser" évoqué ici peut ainsi prêter à confusion. C'est le spectre de gain, et non la géométrie du milieu qui définit la longueur d'onde d'émission, mais on verra qu'il existe néanmoins un effet de seuil [24].
- laser aléatoire cohérent : il s'agit d'un cas semblable à celui cité précédemment, mais dans les milieux très désordonnés où les modes de propagation

de l'onde peuvent être localisés [25, 26], et ainsi créer des effets de cavité. Le spectre émis est alors composé de pics, correspondant chacun à un mode laser propre.

Un parallèle est donc créé entre la localisation d'Anderson et le laser aléatoire. D'autre part, les milieux désordonnés diffusants possédant du gain, peuvent favoriser les boucles de diffusion longues (ou modes ayant les temps de vie les plus grands), et on peut ainsi mettre plus facilement en évidence la présence des modes du système passif [27].

Plan du mémoire

Cette thèse s'effectue donc dans le contexte de la réalisation expérimentale d'un laser aléatoire. On verra dans le chapitre 1 “**Diffusion de la lumière dans les milieux désordonnés**” une revue non exhaustive de la diffusion de la lumière dans les milieux désordonnés, tout en s'attachant à développer les deux notions essentielles que sont la localisation d'Anderson et le laser aléatoire.

La localisation d'Anderson sera présentée comme le cas limite de la propagation par diffusion d'une onde dans un milieu passif (i.e. sans gain), lorsque la densité de diffuseurs est tellement grande, que le libre parcours moyen de l'onde dans le milieu devient inférieur à sa longueur d'onde. On traitera ensuite le cas de la propagation par diffusion d'une onde dans un milieu actif (i.e. à gain), et on présentera les résultats de quelques expériences pionnières dans ce domaine. On donnera également plus de détails sur la distinction entre les deux cas de laser aléatoire, cohérent et incohérent, cités ci dessus.

Le milieu diffusant que nous utilisons est un nuage d'atomes froids de Rubidium, piégés dans un piège magneto-optique. Il s'agit d'un milieu original dans l'étude de la diffusion multiple de la lumière, et dans le chapitre 1 “**Diffusion de la lumière dans les milieux désordonnés**”, on donnera quelques exemples d'expériences déjà effectuées sur les propriétés de diffusion d'un nuage d'atomes froids (“radiation trapping” [28, 29], cône de rétrodiffusion cohérente [30]). Dans le chapitre 2, “**Le dispositif expérimental**”, on donnera les notions nécessaires pour comprendre le piégeage d'atomes par laser [31], ainsi que les principales caractéristiques du piège magnéto-optique que nous utilisons. Nous consacrerons une partie à l'étude des instabilités dynamiques du nuage d'atomes [32–34], car il s'agit d'un exemple intéressant d'effets collectifs dus à la diffusion multiple de la lumière dans un nuage comportant un grand nombre d'atomes piégés.

L'utilisation des atomes froids comporte des avantages dans l'étude de la diffusion multiple, face à d'autres milieux plus classiquement utilisés comme les suspensions de particules diffusantes macroscopiques. Par rapport au cas d'un

gaz d'atomes chauds, on s'affranchit de l'effet Doppler dû à la vitesse cinétique des atomes. Les atomes froids sont des diffuseurs possédant une grande section efficace de diffusion à résonance et qui sont tous exactement identiques par principe. De plus, les modèles quantiques, d'atomes à deux niveaux d'énergie par exemple, modélisent parfaitement les principaux aspects de la diffusion et du gain, contrairement aux cas des particules macroscopiques, dont la modélisation des interactions est extrêmement délicate. Il existe néanmoins plusieurs effets de décohérence [35] dus à la vitesse résiduelle des atomes, et on devra y attacher une grande importance.

La combinaison du gain et de la diffusion multiple de la lumière, tout en gardant une certaine cohérence entre les processus, est notre problématique essentielle. Cette thèse porte principalement sur la génération de gain dans le nuage d'atomes froids, comme étape préliminaire à la réalisation d'un laser aléatoire. Les chapitres suivants 3 et 4, "**Mécanismes de gain dans un nuage d'atomes froids**", et "**Laser à atomes froids**" donneront une étude détaillée, expérimentale et théorique, du gain dans les atomes froids.

On exposera en particulier trois mécanismes de gain dans le chapitre 3 : le gain "Mollow" [36], le gain "Raman" [37–39], et mélange à quatre ondes (ou Four Waves Mixing, FWM) [40,41]. On commencera par donner les modèles théoriques respectifs de chacun des gains, puis on en fera étude expérimentale détaillée.

Dans le chapitre 4, on donnera une application intéressante de l'utilisation de ces trois types de gain, à savoir la réalisation d'un laser, en plaçant le nuage d'atomes froids dans une cavité laser [42]. On verra que suivant les paramètres de pompage, on pourra passer continûment d'un type d'émission laser à une autre, basée sur les différents mécanismes de gain étudiés.

Dans le chapitre 3, on donnera également quelques éléments de calcul afin de comprendre les propriétés de la lumière diffusée par le nuage d'atomes, parallèlement à l'observation du gain. On verra qu'il n'est pas évident de combiner gain et diffusion dans notre système car les atomes froids sont à la fois les diffuseurs et les porteurs du gain, ce qui est une différence essentielle par rapport aux autres expériences menées avec les échantillons de diffuseurs dits "classique" (poudre TiO_2 en suspension dans un colorant, peinture blanche ...).

Nous donnerons à la fin du chapitre 4, les prochains axes d'études sur lesquels nous travaillons : un mécanisme efficace de gain à résonance atomique, afin d'optimiser la diffusion, et des techniques de mesure de la lumière diffusée à une certaine fréquence (détection homodyne, autocorrélation d'intensité [43], etc...).

Ce travail a de plus été l'objet de publications scientifiques, qui sont jointes à la suite des parties traitant le sujet :

- “Self-Sustained Oscillations in a Large Magneto-Optical Trap” (Phys. Rev. Lett), chapitre 2, partie (2.4.4).
- “Bunching-induced asymmetry in degenerate four-wave mixing with cold atoms” (Phys. Rev. A), chapitre 3, partie (3.7.5).
- “Interference between Raman gain and four-wave mixing in cold atoms”, (Journal Of Opt. Soc. B), chapitre 4, partie (4.2.3).
- “Mechanisms for Lasing with Cold Atoms as the Gain Medium” (Phys. Rev. Lett), chapitre 4, partie (4.3.4).

CHAPITRE 1

Diffusion de la lumière dans les milieux désordonnés

Dans ce chapitre, nous traiterons des aspects théoriques de la propagation d'une onde par diffusion dans un milieu désordonné. On qualifie un milieu de désordonné lorsqu'il est composé d'une multitude de particules, ici diffusantes, réparties aléatoirement dans l'espace (Fig. 1.1).



FIG. 1.1 – Le brouillard est un exemple simple de milieu désordonné dont chaque gouttelette d'eau diffuse la lumière.

Par définition, une onde est dite diffusée élastiquement, lorsque suite à une interaction avec un diffuseur, sa direction de propagation est modifiée et sa fréquence reste identique (on ne parlera pas de diffusion inélastique, où la fréquence de l'onde est modifiée). De la même manière que Fresnel a décomposé une onde plane après diffraction en une multitude d'ondes partielles sphériques, l'expression d'une onde diffusée en champ lointain est la suivante [44] :

$$E_d(\vec{r}) = E_{inc} e^{i\vec{k}_{inc} \cdot \vec{r}_d} f(\theta) \frac{e^{ik_0|\vec{r} - \vec{r}_d|}}{|\vec{r} - \vec{r}_d|} \quad (1.1)$$

Dans cette expression, E_d n'indique que la dépendance spatiale de l'onde diffusée. La fonction $f(\theta)$ reste l'inconnue principale : elle représente l'amplitude de l'onde diffusée dans la direction θ . Toute la difficulté des problèmes de diffusion est

de trouver l'expression de $f(\theta)$ qui dépend de la nature des diffuseurs et de la polarisation du champ incident.

On accroît ensuite la complexité du problème lorsque l'on envoie une onde dans un milieu désordonné, composé d'une multitude de diffuseurs. Au cours des multiples diffusions, l'onde se décompose en une multitude d'ondes partielles pouvant chacune parcourir plusieurs chemins de diffusion différents, de sorte que la propagation de l'onde doit être traitée de manière statistique, via l'équation de diffusion. Finalement, l'amplitude totale diffusée par le milieu est la somme de tous les parcours de chaque onde partielle.

Dans une première partie, nous présenterons les éléments nécessaires afin d'étudier la propagation d'une onde dans un milieu désordonné d'abord passif. On verra dans un premier temps que l'on peut considérer ce problème via le transport d'énergie de l'onde, en négligeant tout effet d'interférences entre les différents chemins parcourus. On verra ensuite que le rôle des interférences peut devenir prépondérant dans des milieux où le désordre est très fort¹. Cela peut conduire à une absence totale de diffusion de l'onde, appelée phénomène de **localisation d'Anderson** [1].

Dans une seconde partie, on étudiera la propagation d'une onde dans un milieu désordonné actif, c'est à dire avec du gain. Les développements récents de la recherche sur la propagation des ondes dans les milieux désordonnés ont conduit à l'idée d'utiliser la diffusion multiple comme un atout, car elle permet d'allonger considérablement la distance du chemin optique parcouru dans le milieu. On comprend qu'en ajoutant du gain sur le trajet, l'onde peut ainsi y être amplifiée. Le **laser aléatoire** naît de cette idée de combiner gain et diffusion multiple, le milieu jouant lui même le rôle d'une cavité laser [15].

On complétera enfin la théorie de la diffusion en y incluant quelques éléments supplémentaires afin de traiter la diffusion multiple dans les milieux actifs. On verra entre autre, que le laser aléatoire présente, comme un laser classique, un effet de seuil [21]. Les propriétés de la lumière émises par un tel système feront également l'objet de discussion qualitative dans cette thèse.

Ce premier chapitre est une présentation générale de la diffusion de la lumière dans un milieu quelconque. On donnera néanmoins plusieurs exemples directement applicables aux atomes froids de Rubidium, et cela nous servira de base pour les chapitres suivants.

¹A 3 dimension, on parle de désordre très fort lorsque la distance entre deux événements de diffusion successifs devient de l'ordre de grandeur de la longueur d'onde.

1.1 Milieu passif : vers la localisation de la lumière

1.1.1 Introduction

Dans beaucoup de domaines de la physique traitant de la propagation d'ondes dans un milieu complexe, la diffusion est à éviter car elle est source de perte. Par exemple, la diffusion de la lumière sur les impuretés contenues dans le cristal amplificateur d'un laser font perdre du signal au mode fondamental de la cavité, ou encore les réflexions multiples d'une onde radar sur les vaguelettes de la surface de l'eau, modifient la réflexion spéculaire détectée. Mais dans notre cas, la diffusion aléatoire de la lumière est l'ingrédient prépondérant de la physique que nous voulons étudier.

Dans cette partie on donnera les bases théoriques utiles afin de traiter la propagation d'une onde dans un milieu désordonné passif. Une onde cohérente pénétrant dans un tel milieu est diffusée aléatoirement de nombreuses fois et perd rapidement sa cohérence spatiale. Malgré cela, on peut trouver quelques signaux déterministes parmi ce désordre apparent, et décrire correctement la propagation de l'onde [13].

Historiquement les scientifiques ont commencé à étudier la propagation des ondes lumineuses issues des étoiles dans les gaz ou poussières interstellaires [45] (nébuleuses, nuages ionisés, etc...), et actuellement, les aspects de la propagation d'une onde dans un milieu désordonné occupent un vaste champ d'activité avec l'étude de milieux variés tels que les tissus humains, ou les cristaux photoniques, et est également source d'applications comme l'imagerie médicale ou l'analyse non destructive des matériaux [46].

Nous présenterons en premier lieu la théorie de diffusion classique qui permet d'étudier la propagation d'une onde en général (onde lumineuse, onde sonore ou même onde électronique, sans interaction), mais on se limitera au cas des ondes lumineuses dans les exemples développés. On discutera ensuite des limites de ce modèle dans des milieux où le désordre devient trop important. On devra distinguer deux approches : le transport de l'onde en raisonnant en intensité (régime de diffusion dit classique), ne faisant pas intervenir l'aspect ondulatoire, et l'approche justement ondulatoire, où les interférences produisent quelques effets tels que le cône de rétrodiffusion cohérente (régime dit de localisation faible [47]). Dans le cas où le désordre devient trop important, le transport de l'énergie est totalement dominé par les effets d'interférences et on montrera que le transport de l'onde peut être arrêté (régime de localisation forte, ou localisation d'Anderson [1]).

On commencera par définir les grandeurs caractéristiques du système, afin de pouvoir délimiter plus précisément les zones de validité de ces différents régimes.

1.1.2 Définitions des grandeurs

1.1.2.1 Section efficace de diffusion

La section efficace de diffusion permet de mesurer la probabilité de l'interaction entre une particule projectile et une particule cible, et fut introduite en premier lieu en physique nucléaire. Elle possède la dimension d'une surface : l'unité est le Barn ($1 \text{ Barn} = 1 \text{ cm}^2$) et est définie comme suit :

$$\sigma = \frac{T_{diff}}{(T_{inc}/S)N} \quad (1.2)$$

où T_{diff} est le taux de particules diffusées par unité de temps, et T_{inc} le taux de particules incidentes par unité de temps. N est le nombre de diffuseurs contenus dans la surface S considérée du flux de particules. La section efficace contient de manière implicite tous les éléments du processus physique de diffusion et est définie de manière générale, que l'on traite de la diffusion de particules ou d'ondes lumineuses. On se limitera néanmoins dans la suite, à traiter que le cas des ondes lumineuses.

En pratique, la détection étant limitée par la surface du détecteur, on ne mesure qu'une fraction de toutes les diffusions possibles. On introduit alors la section efficace différentielle de diffusion notée $\frac{d\sigma}{d\Omega}$, avec Ω l'angle solide de détection (Fig 1.2). Elle est reliée à la section efficace de diffusion totale si on intègre sur toutes les directions, par la relation :

$$\sigma = \int \int \frac{d\sigma}{d\Omega} d\Omega \quad (1.3)$$

On peut écrire la section efficace différentielle différemment :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = |f(\theta)|^2 \quad (1.4)$$

où $f(\theta)$ est la fonction représentant l'amplitude de diffusion dans la direction θ (Figure 1.2) déjà introduite au début de ce chapitre (formule 1.1).

Un raisonnement sur la conservation de l'énergie entre la section efficace et l'amplitude de diffusion vers l'avant $f(0)$, permet de relier directement ces deux grandeurs². Ce résultat constitue **Le théorème optique** [48, 49] dont l'expression en champ lointain est donnée par :

$$\sigma = \frac{4\pi}{k} \Im(f(0)) \quad (1.5)$$

Nous nous intéressons essentiellement dans ce manuscrit à la lumière diffusée par une assemblée d'atomes. En considérant un rayonnement isotrope la fonction

²Cette propriété découle de la conservation du flux lors d'un processus de diffusion élastique

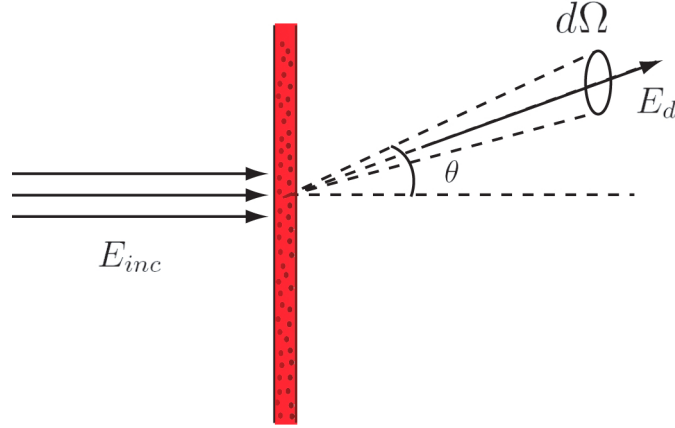


FIG. 1.2 – Section efficace de diffusion d'un ensemble de particules dans l'angle solide $d\Omega$. E_{inc} est le champ incident, on regarde le champ diffusé E_d dans un angle θ donné.

$f(\theta)$ s'identifie à la polarisabilité atomique, notée α_{at} , à un facteur de proportionnalité près donné par des considérations de la théorie de l'électromagnétisme :

$$f(\theta) = \frac{k^2}{4\pi} \alpha_{at} \quad (1.6)$$

On peut donner dès maintenant l'expression de la polarisabilité atomique dans le cas d'un modèle d'un atome à deux niveaux (Chap 3, partie 3.3.1.2) :

$$\alpha_{at} = -\frac{3\pi\Gamma c^3}{\omega_{at}^3} \left(\frac{1}{(\omega - \omega_{at}) - i\Gamma/2} \right) \quad (1.7)$$

Γ^{-1} est la durée de vie de l'état excité de l'atome et ω_{at} est la fréquence de la transition atomique excitée par une onde désaccordée de fréquence ω .

En injectant (1.7) dans l'équation du théorème optique (1.5), on obtient l'expression de la section efficace de diffusion d'un atome :

$$\sigma(\omega) = \frac{3\lambda^2}{2\pi} \left(\frac{1}{1 + 4\frac{(\omega - \omega_{at})^2}{\Gamma^2}} \right) \quad (1.8)$$

On déduit de cette expression que le phénomène de diffusion est maximal pour une onde à résonance avec la transition atomique, et on peut définir $\sigma_0 = 3\lambda^2/2\pi$, la section efficace de diffusion à résonance. Cette expression est valable seulement si l'onde est faiblement saturante, c'est à dire si son intensité reste petite devant l'intensité de saturation de l'atome I_{sat} , qui vaut :

$$I_{sat} = \frac{c\epsilon_0\Gamma^2\hbar^2}{4d^2} \quad (1.9)$$

où d est le dipôle atomique. Dans le cas de l'atome de Rubidium 85, $I_{sat} = 1.6$ mW/cm².

Si on augmente l'intensité de l'onde de sorte qu'elle ne soit plus négligeable par rapport à I_{sat} , la section efficace de diffusion sera donnée par l'expression suivante :

$$\sigma(\omega) = \frac{3\lambda^2}{2\pi} \left(\frac{1}{1 + \frac{I}{I_{sat}} + 4\frac{(\omega - \omega_{at})^2}{\Gamma^2}} \right) \quad (1.10)$$

On peut introduire ici le paramètre de saturation s , et le taux de diffusion de chaque atome Γ_{diff} [31] qui représente le nombre moyen de cycles de fluorescence par unité de temps :

$$s = \frac{I/I_{sat}}{1 + 4\frac{(\omega - \omega_{at})^2}{\Gamma^2}} \quad (1.11)$$

$$\Gamma_{diff} = \frac{\Gamma}{2} \frac{s}{s + 1} \quad (1.12)$$

On conclut de cette dernière expression que si l'onde est très saturante ($s \gg 1$), le taux de diffusion est borné à $\Gamma/2$.

Nous avons établi dans ce paragraphe les lois de diffusion lorsqu'une onde lumineuse proche de résonance arrive sur un diffuseur atomique. De manière plus générale, l'expérience nous montre que lorsqu'on éclaire un milieu diffusant, l'énergie de l'onde est répartie dans tout l'espace et on peut établir une loi sur la transmission de l'onde dans le milieu. Ce sera le propos du paragraphe suivant.

1.1.2.2 Loi de Beer Lambert

Une onde pénétrant dans un milieu composé de multiples diffuseurs va se propager aléatoirement et son vecteur d'onde va être modifié à chaque diffusion (Fig. (1.3)). Ces phénomènes de diffusion vont répartir l'énergie de l'onde dans toutes les directions de l'espace au détriment du mode cohérent³ (voir partie (1.1.2.1)).

Considérons dans un premier temps une onde peu saturante ($I \ll I_{sat}$) se propageant dans le milieu selon l'axe x et qui rencontre une densité n de diffuseurs. On rappelle que la quantité d'énergie portée par un photon est $\hbar\omega$, et en se servant du taux de diffusion Γ_{diff} de chaque atome introduit dans le paragraphe précédent (formule 1.12), l'évolution $I(x)$ de l'intensité de l'onde est donnée par :

$$\frac{dI(x)}{dx} = -n\hbar\omega\Gamma_{diff} \quad (1.13)$$

³Le mode cohérent est défini comme la diffusion vers l'avant, d'amplitude $f(0)$.

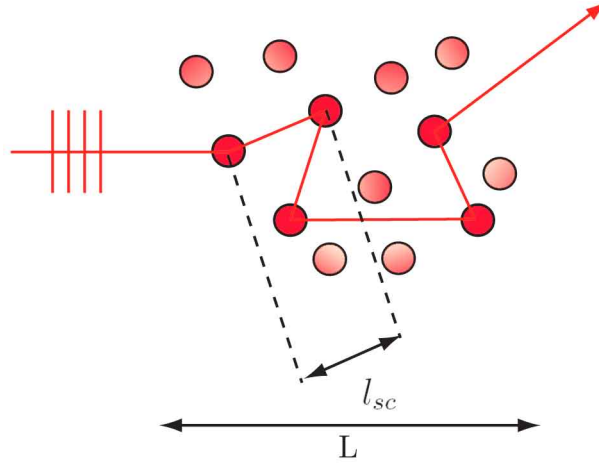


FIG. 1.3 – Propagation d'une onde par diffusion multiple dans un milieu désordonné. l_{sc} est le libre parcours moyen de diffusion (distance moyenne entre deux diffusions). L est la taille caractéristique de l'échantillon.

avec $\Gamma_{diff} \sim \frac{\Gamma}{2} s$ (faible saturation), on obtient la loi de Beer-Lambert classique :

$$\frac{dI(x)}{dx} + n\hbar\omega \frac{\Gamma}{2} \frac{I(x)}{I_{sat}} \frac{1}{1 + 4\frac{(\omega - \omega_{at})^2}{\Gamma^2}} = 0 \quad (1.14)$$

En remplaçant Γ par sa valeur [50, 51],

$$\Gamma = \frac{8\pi^2 d^2}{3\epsilon_0 \hbar \lambda^3} \quad (1.15)$$

on obtient la solution bien connue, appelée loi de Beer Lambert, en intégrant (1.14) sur une longueur L :

$$I(L) = I(0) e^{-\sigma(\omega) \int_0^L n dx} \quad (1.16)$$

On peut définir de l'expression (1.16), une grandeur appelée **l'épaisseur optique**, notée b :

$$b(\omega) = n\sigma(\omega)L \quad (1.17)$$

Ce paramètre est très important car il s'agit d'une grandeur qui caractérise le **degré de transparence** du milieu du point de vue de l'onde. En effet, en écrivant la transmission T du milieu, définie par le rapport de l'intensité transmise dans le mode cohérent et l'intensité incidente, on obtient :

$$T = \frac{I(L)}{I(0)} = e^{-b(\omega)} \quad (1.18)$$

On montrera également dans la partie suivante que le nombre d'événements de diffusions dans le système est directement proportionnel au carré de la valeur de l'épaisseur optique.

Maintenant dans le cas contraire, si l'onde est très saturante ($I \gg I_{sat}$), on ne peut plus définir l'épaisseur optique comme précédemment. On a en effet, $\Gamma_{diff} \sim \Gamma/2$, et l'équation (1.13) devient :

$$\frac{dI(x)}{dx} = -n\hbar\omega \frac{\Gamma}{2} \quad (1.19)$$

Ainsi, pour les intensités élevées, la loi de transmission devient de type linéaire⁴ :

$$I(L) = I(0) - n\hbar\omega \frac{\Gamma}{2} L \quad (1.20)$$

Enfin, dans un dernier cas où $I \sim I_{sat}$ l'équation (1.13) devient :

$$\frac{dI(x)}{dx} = -n\hbar\omega \frac{\Gamma}{2} \frac{I(x)}{I_{sat} \left(1 + 4 \frac{(\omega - \omega_{at})^2}{\Gamma^2} \right) + I(x)} \quad (1.21)$$

et les solutions sont du type :

$$4 \frac{(\omega - \omega_{at})^2}{\Gamma^2} I_{sat} \ln \left(\frac{I(L)}{I(0)} \right) + I(L) - I(0) = -n\hbar\omega \frac{\Gamma}{2} L \quad (1.22)$$

On devra alors résoudre numériquement cette dernière équation pour obtenir la valeur de l'intensité transmise.

1.1.2.3 Longueurs caractéristiques

Selon la densité de diffuseurs présents dans le milieu où l'onde se propage, on distingue plusieurs régimes. Pour cela, on introduit un paramètre appelé **libre parcours moyen de diffusion** noté l_{sc} qui traduit la distance moyenne que parcourt l'onde entre chaque événement de diffusion (Fig. (1.3)). Par définition on a :

$$l_{sc} = \frac{1}{n\sigma} \quad (1.23)$$

On peut remarquer que dans le cas des faibles saturations, l'épaisseur optique du milieu peut s'écrire d'après (1.17) :

$$b = \frac{L}{l_{sc}} \quad (1.24)$$

⁴On sature la réponse non linéaire des atomes.

Il est également utile de définir le **libre parcours moyen de transport** l_t qui caractérise la longueur moyenne après laquelle la propagation de l'onde devient aléatoire :

$$l_t = \frac{l_{sc}}{1 - \langle \cos \theta \rangle} \quad (1.25)$$

Néanmoins, dans la suite on se limitera au cas de la diffusion isotrope, où $\langle \cos \theta \rangle = 0$, la moyenne du cosinus de l'angle de diffusion est nulle, ce qui implique $l_t = l_{sc}$.

On distingue premièrement le **régime balistique** : la taille du milieu L est de l'ordre du libre parcours moyen l_{sc} ($L \sim l_{sc}$). L'onde n'effectue pratiquement pas de diffusion et sa trajectoire n'est pratiquement pas déviée. C'est un régime que nous cherchons à éviter car la diffusion multiple y est négligeable. On verra dans notre expérience que c'est pourtant ce qu'il peut se produire lorsque l'on ajoute du gain dans le milieu car les atomes sont à la fois les porteurs de gain et les diffuseurs. On reviendra sur cette problématique dans les prochains paragraphes.

On parle ensuite de **régime diffusif** lorsque le nombre de diffusions devient plus important, et fait perdre à terme l'information sur trajectoire initiale de l'onde incidente. Son domaine de validité est le suivant :

$$\lambda \ll l_{sc} \ll L \ll l_{abs} \quad (1.26)$$

où λ est la longueur d'onde de l'onde qui se propage, L la dimension de l'échantillon et l_{abs} est la longueur d'absorption. L'absorption est ici un nouvel élément à prendre en compte. En effet, les milieux diffusifs sont souvent absorbants, et du point de vue de l'expérimentateur la signature de la diffusion et de l'absorption présente peu de différence. Dans notre cas, nous utilisons un nuage d'atomes froids, et l'absorption du milieu est inexistante, ce qui présente bien des avantages. Cependant à défaut d'absorption, on introduira dans la partie suivante un terme de gain. Le gain peut être vu en fait comme une absorption négative (on peut définir la longueur de gain lorsque que la longueur d'absorption devient négative $l_g = -l_{abs}$), mais afin de d'exploiter ce gain, on veillera au contraire à respecter l'inégalité $\lambda \ll l_{sc} \sim l_g \ll L$, afin de combiner gain et diffusion.

On peut maintenant définir un nouveau paramètre kl_t , qui est produit du vecteur d'onde $k = \frac{2\pi}{\lambda}$ et du libre parcours moyen de transport (ou du libre parcours moyen de diffusion dans notre cas), qui décrit le degré de **désordre** du système. Selon la valeur du paramètre de désordre du milieu, la physique de la diffusion de la lumière peut être totalement modifiée, d'où l'introduction de la classification suivante [52] :

- **Régime diffusif**, $kl_t \gg 1$. On traite la propagation de la lumière grâce à la théorie classique de la diffusion. On peut notamment redémontrer la loi d’Ohm. Le prochain paragraphe est consacré à l’étude de ce régime.
- **Régime de localisation faible**. La seule condition est que $kl_t > 1$, donc on se place a priori toujours en régime diffusif, mais on prend en compte les effets d’interférences. Ceux-ci vont devenir de plus en plus forts à mesure que l’on se rapproche de $kl_t = 1$. Ce sera l’objet de la partie (1.1.4).
- **Régime de localisation forte**, aussi appelé **régime de localisation d’Anderson** : $kl_t \simeq 1$. Il y a absence de diffusion dans le milieu, l’onde est piégée par un processus interférentiel devenant dominant [1]. Ce régime est tellement particulier qu’il ne peut pas être classé comme un sous régime du régime diffusif. Il s’agit d’un état de propagation totalement inédit qui n’est pas prédictible par la théorie de diffusion classique. Ce régime fait l’objet de recherches intenses, surtout en physique de la matière condensée, et est introduit dans la partie (1.1.5).

1.1.3 Régime diffusif

On considère le cas de diffusion isotrope. Lorsque $\lambda \ll l_{sc} \ll L$, la propagation de l’intensité diffusée dans un milieu sans absorption, suit l’équation de diffusion déduite des lois phénoménologiques de Fick :

$$\frac{\partial}{\partial t} I(\mathbf{r}, t) = D \nabla^2 I(\mathbf{r}, t) \quad (1.27)$$

où D est le coefficient de diffusion :

$$D = \frac{1}{3} v l_{sc} \quad (1.28)$$

$v = l_{sc}/t_{sc}$ est la vitesse de transport. t_{sc} prend en compte le temps que met l’onde pour passer d’un diffuseur à l’autre ainsi que le temps d’interaction dans les diffuseurs appelé “temps de vol”⁵.

L’équation (1.27) ne tient pas compte des interférences pouvant se produire dans le milieu, mais donne de bons résultats sur le calcul de l’intensité diffusée dans la limite de faible désordre. On remarque qu’en régime stationnaire on obtient un résultat similaire à la loi d’Ohm pour l’intensité transmise $T \sim x/L$, où L est la dimension de l’échantillon et x la distance totale parcourue par l’onde.

L’inégalité $l_{sc} \ll L$, est équivalente à dire que le milieu possède une grande épaisseur optique, ce qui assure un nombre important d’événements de diffusion. On peut en effet montrer que le nombre d’événements de diffusion est proportionnel au carré de l’épaisseur optique, en effectuant un raisonnement basé sur la

⁵ou “dwell time”.

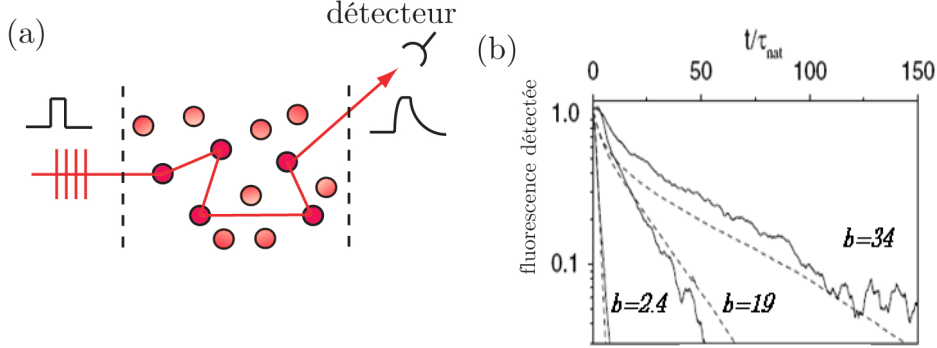


FIG. 1.4 – (a) Expérience visant à mesurer l’allongement d’une impulsion suite à la diffusion multiple (b) Décroissance de la fluorescence en fonction du temps (en échelle exponentielle) mesurée sur un piège magnéto-optique éclairé par un laser résonant avec les atomes. $\tau_{nat} \simeq 6$ MHz. La loi de puissance de décroissance de la fluorescence en temps est de type exponentiel dans le régime diffusif. Courbes expérimentales issues de [28]

théorie de la marche aléatoire. Le nombre de diffusion N_{diff} est égal au rapport du temps total passé par l’onde dans le milieu τ sur le temps caractéristique d’une diffusion t_{sc} :

$$N_{diff} = \frac{\tau}{t_{sc}} \quad (1.29)$$

On a de plus pour une marche au hasard : $\tau = L^2/D$, et $D \propto l_{sc}^2/t_{sc}$ [53]. Ainsi, dans le cas des faibles saturations où l’épaisseur optique b peut s’écrire $b = L/l_{sc}$, on retrouve bien :

$$N_{diff} = \frac{\tau}{t_{sc}} \propto \frac{L^2}{l_t^2} = b^2 \quad (1.30)$$

Une approche plus détaillée, basée sur les solutions en terme de modes de l’équation de diffusion (1.27), donne les mêmes résultats qualitatifs [54].

La présence de nombreux événements de diffusion allonge la longueur du chemin optique de l’onde dans le milieu et donc, l’onde y passe un temps plus grand qu’en régime balistique. Par exemple, on peut effectuer une mesure résolue en temps de la lumière diffusée par un échantillon après avoir été éclairé avec une impulsion incidente de courte durée [28, 29]. On assiste alors à un allongement de cette impulsion, qui devient plus important à mesure que l’épaisseur optique augmente (Fig. (1.4)).

Il existe une théorie plus complète que l’équation de diffusion classique, appelée **équation de transfert radiatif** (ou Radiative Transfer Equation, RTE) [45, 55] qui permet de passer continûment du régime diffusif au régime balistique.

Cette équation, basée sur la conservation de l'énergie, décrit la propagation d'une onde en terme de flux multidirectionnels d'énergie (ou Luminance) $I(\vec{r}, \vec{u}, t)$ pour tous points du milieu étudié (dans l'approximation où l'onde ne repasse jamais par les mêmes diffuseurs). L'expression de l'équation de transfert radiatif est donnée ci dessous :

$$\frac{1}{c} \frac{\partial I(\vec{r}, \vec{u}, t)}{\partial t} + \vec{u} \cdot \vec{\nabla} I(\vec{r}, \vec{u}, t) = - \left(\frac{1}{l_t} + \frac{1}{l_{abs}} \right) I(\vec{r}, \vec{u}, t) + \frac{1}{4\pi} \frac{1}{l_t} \int_{4\pi} p(\vec{u}, \vec{u}') I(\vec{r}, \vec{u}', t) d\Omega \quad (1.31)$$

Le terme de gauche de l'équation (1.31) représente le transport spatio-temporel de l'onde, et les termes de droite représentent les pertes par diffusion et par absorption. Le dernier terme, sous forme intégrale, représente toutes les diffusions venant d'une autre direction \vec{u}' , qui après un événement de diffusion vont dans la direction \vec{u} avec une probabilité $p(\vec{u}, \vec{u}')$.

Cette méthode est plus exacte que le calcul du vecteur de Poynting, dont l'intensité représente la densité de puissance véhiculée par l'onde lumineuse. Contrairement à la luminance qui est résolue pour chaque direction de propagation \vec{u} , le vecteur de Poynting ne considère que l'intégrale sur toutes les directions, et donc ne tient pas compte avec la même rigueur des changements de direction lors des diffusions. Par contre, la RTE ne prend pas en compte les interférences possibles lors de la propagation.

On verra dans le prochain paragraphe qu'il faut utiliser directement les équations de Maxwell afin de tenir compte des aspects ondulatoires.

1.1.4 Régime de localisation faible

Dans la partie précédente, on a raisonné en terme de particules classiques, c'est à dire sans interférences. Cela nous a conduit à négliger les effets d'interférence lumineuse dans certains parcours de diffusion possibles, tels que des boucles parcourues en sens opposés l'une de l'autre, par les différentes ondes partielles. On ne parlera dans ce paragraphe que des boucles "ouvertes" (Fig. (1.5)) : en effet, on se place dans ce paragraphe dans le cas d'un milieu de faible désordre, et on pourra négliger la probabilité d'apparition de boucles "fermées" (qui ce sera le contenu du prochain paragraphe, dans lequel on va considérer le cas des milieux à désordre très fort $kl_t \sim 1$).

Dans les conditions du régime diffusif, les effets d'interférence existent mais sont très faibles. Par contre, en augmentant le désordre (tout en gardant la condition $\lambda < l_t$), les interférences deviennent de plus en plus marquées. Ce régime intermédiaire est appelé régime de **localisation faible**. Le phénomène de diffusion est décrit via les équations de Maxwell, à partir desquelles on obtient

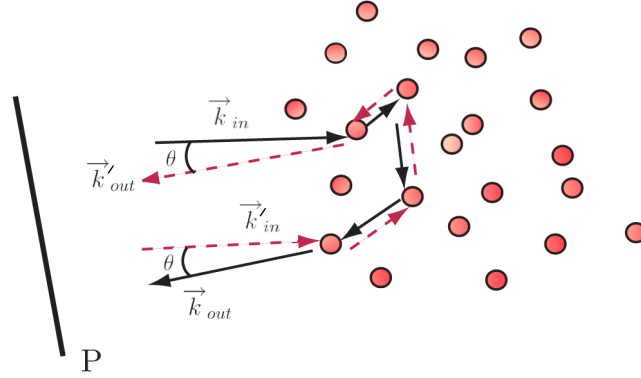


FIG. 1.5 – Un chemin de diffusion est parcouru dans les deux sens de propagation par deux ondes partielles entrant respectivement avec un vecteur d'onde \vec{k}_{in} et \vec{k}'_{in} , et sortant avec un vecteur d'onde \vec{k}_{out} et \vec{k}'_{out} . Le plan P est le plan d'observation en champ lointain

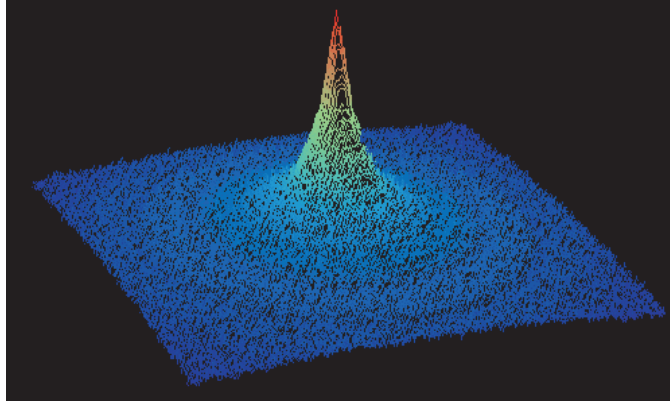


FIG. 1.6 – Cône de rétrodiffusion cohérente observé sur un nuage d'atome froids de rubidium. Image issue de [56]

l'équation de Helmholtz de propagation d'une onde :

$$\nabla^2 \psi + k^2 \psi = -u \sum_i \delta(\mathbf{r} - \mathbf{R}_i) \psi \quad (1.32)$$

où $u \sum_i \delta(\mathbf{r} - \mathbf{R}_i) \psi$ est le terme source de l'équation de Helmholtz représentant les diffuseurs ($u = \alpha k^2$) où α est la polarisabilité de chaque diffuseur. Cette équation permet de formaliser certains phénomènes apparaissant lorsque l'onde ψ est diffusée au moins plus de deux fois dans le milieu.

Un des effets les plus connus de la localisation faible est la présence d'un **cône de rétrodiffusion cohérente** dans l'intensité diffusée vers l'arrière [57]. Il s'agit

d'une interférence entre deux ondes parcourant une boucle de diffusion ouverte, en sens inverse l'une de l'autre (Fig. 1.5). Ce cône de retrodiffusion a été observé dans divers milieux (papier, lait), comme les plus étranges (surface de la lune et anneaux de saturne).

Sur le plan P du schéma de la figure (1.5), si l'angle θ est non nul, le parcours des deux ondes présente une différence de marche non nulle, et forme une figure d'interférence sinusoïdale. En pratique, il existe une multitude de chemins de rétrodiffusion conduisant en moyenne à un brouillage des interférences. Néanmoins, les interférences entre les divers chemins demeurent toujours constructives autour de $\theta \sim 0$. On y observe ainsi un pic de sur-intensité appelé cône de rétrodiffusion cohérente (Fig. 1.6). En particulier, la largeur à mi-hauteur $\Delta\theta$ du cône de rétrodiffusion est fonction du paramètre de désordre :

$$\Delta\theta = \frac{1}{kl_t} \quad (1.33)$$

Un tel cône de rétrodiffusion cohérente a été observé dans le gaz d'atomes froids évoqué jusqu'à présent [56], et toute la théorie y est parfaitement maîtrisée [58]. C'est une des raisons motivantes pour continuer à exploiter ce milieu dans la suite.

Le régime de localisation faible est un précurseur au régime de localisation forte, où à mesure que le paramètre de désordre kl_t s'approche de l'unité, le caractère ondulatoire devient prédominant sur le caractère diffusif.

1.1.5 Régime de localisation forte

Lorsque l'on augmente le désordre du milieu, on arrive à un régime où la diffusion classique n'est plus valable. Lorsque le paramètre de désordre kl_t s'approche de l'unité, les interférences sont prépondérantes. Ce régime a été prédit en 1958 par P.W. Anderson afin d'expliquer l'écart à la loi d'Ohm intervenant dans certains matériaux conducteurs, qu'il attribue à une localisation des électrons [1]. L'apport d'Anderson a été de montrer que le coefficient de diffusion pouvait s'annuler dans des matériaux à fort désordre. Une généralisation a été effectuée quelques années plus tard avec le critère de Ioffe et Regel [59] prévoyant un seuil pour ce phénomène à $kl_t = 1$. Ce seuil est valable uniquement à 3 dimensions. En effet pour les dimensions inférieures, le phénomène de localisation est continu et ne dépend pas du désordre mais de la taille du milieu : le critère est que la longueur de localisation l_{loc} doit être inférieure à la taille du milieu. Dans ce régime, il faut apporter d'importantes corrections au coefficient de diffusion, et une approche parfois utilisée est de le rendre dépendant du temps [46, 60] :

$$D(t) \simeq D_0 \left(1 - \frac{1}{kl_t} \right) f(t) \quad (1.34)$$

où D_0 est le coefficient de diffusion classique et $f(t)$ est une fonction dépendante du temps.

A trois dimensions, le passage du régime non localisé au régime localisé possède les caractéristiques d'une transition de phase appelée également transition d'Anderson. Il s'agit par exemple, d'une transition métal-isolant pour les matériaux conducteurs d'électricité.

Plus précisément, lorsqu'il s'agit de diffusion d'ondes lumineuses, la transition de phase se traduit par la localisation de tous les modes diffusifs qui sont solutions de l'équation de propagation. En régime non localisé, les solutions harmoniques de l'équation de propagation sont composées de modes dits "étendus" spatialement et peuvent se recouvrir entre eux. En régime de localisation forte ($kl_t < 1$) tous ces modes deviennent localisés spatialement dans certaines régions du milieu, d'où l'annulation du caractère diffusif (Fig. 1.7 (b)).

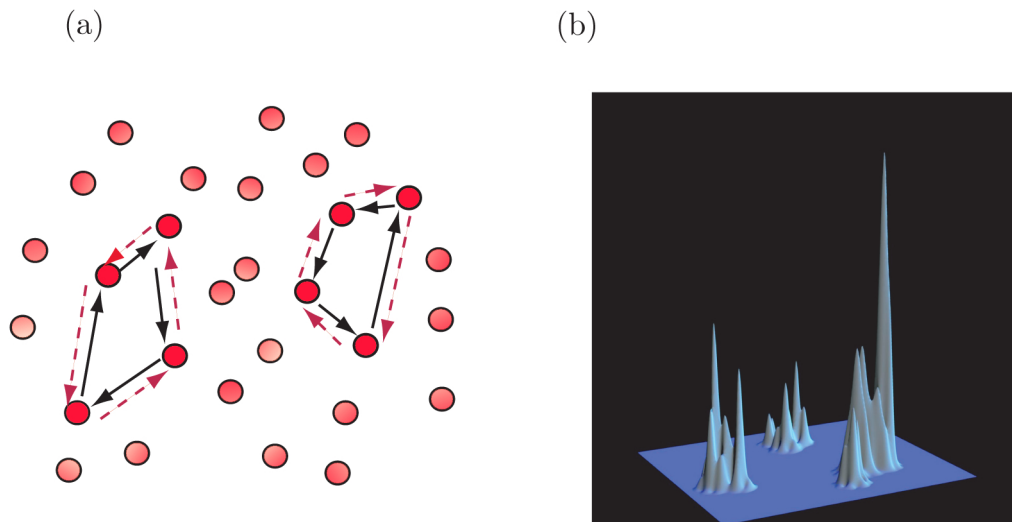


FIG. 1.7 – (a) boucles fermées parcourues par les ondes localisées dans le régime de localisation d'Anderson. (b) Représentation numérique de modes spatialement localisés.

Expérimentalement, un moyen de savoir si on se trouve en régime de localisation forte est de mesurer la transmission diffuse $T(t)$ de l'échantillon au cours du temps. En régime diffusif, $T(t)$ suit une loi de décroissance exponentielle pour les temps longs (Figure 1.8 (a) et 1.4 (b)). Lorsque l'on franchit le seuil de localisation, cette loi de décroissance change et suit une loi de puissance $T(t) \sim 1/t^{1+a}$ avec $a \approx 0.85$ [46] (Figure 1.8 (b)).

Plusieurs groupes expérimentaux travaillent activement sur l'observation expérimentale de la localisation d'Anderson d'une onde. Bien qu'Anderson ait originellement élaboré son modèle pour les fonctions d'ondes électroniques, les expérimentateurs utilisent de préférences les ondes électromagnétiques (lumière

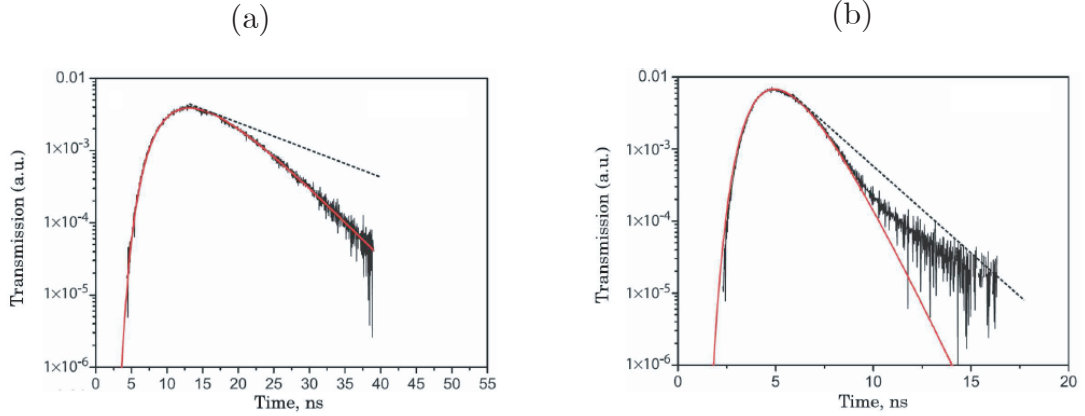


FIG. 1.8 – Mesure de transmission d’une impulsion optique à travers une poudre de particules de rutile TiO_2 . (a) Coefficient de transmission $T(t)$ résolu en temps. En régime diffusif, la décroissance est exponentielle (donnée de l’expérience $kl_t = 6.3$). (b) Lorsque le désordre est très fort, on observe un écart aux temps longs. Cette courbe montre que la deviation à la loi de diffusion en régime diffusif est amorcée, en accord à la théorie de la localisation. Mais il est important de noter que cette expérience n’a pas été faite en régime réellement localisé (d’après les mesures expérimentales $kl_t = 2.5$). Ces courbes sont issues de [12].

[6–8, 12], micro-ondes [61]) ou ondes acoustiques [62], car elles ne présentent pas d’interaction entre elles, contrairement aux électrons. Néanmoins, l’interprétation des résultats reste très difficile du fait de la complexité des modèles élaborés, notamment du fait que les échantillons possèdent de l’absorption qui masque les effets de la localisation.

Plus récemment, notons aussi que l’observation de localisation d’Anderson d’ondes de matière à une dimension a été réalisée grâce à un condensat de Bose-Einstein placé dans un potentiel désordonné ([9, 10] pour la localisation spatiale et [63] pour la localisation dynamique).

1.1.6 Atomes froids et désordre

On a vu que la physique de la diffusion multiple dans un système désordonné est un domaine riche et vastement étudié. Du point de vue expérimental, la plupart des milieux diffusants utilisés sont des poudres de particules semi-conductrices ou encore, des échantillons de peinture blanche. Ces milieux sont avantageux du fait qu’il est possible d’y obtenir un très fort désordre. Par contre, l’interprétation des résultats s’avère assez difficile : l’interaction d’une onde avec une particule macroscopique (dimension de l’ordre du μm) est difficile à modéliser. Parmi les difficultés, on peut aussi noter la dispersion de la géométrie des

diffuseurs, et la présence d'absorption.

C'est dans ce contexte que nous utilisons un milieu original et totalement différent : un nuage d'atomes froids de ^{85}Rb dans un piège magnéto-optique. Une description précise des caractéristiques de notre montage est faite dans le chapitre suivant. Nous pouvons néanmoins rappeler que le régime dans lequel nous travaillons est essentiellement diffusif et que l'on peut y voir les effets de la localisation faible via la détection d'un cône de rétrodiffusion cohérente (Fig. 1.6) [56].

Les atomes froids sont de bons diffuseurs, possédant une section efficace de diffusion résonante élevée (voir partie (1.1.2.1)). Nous pouvons actuellement faire varier le désordre entre un régime dilué (kl_t de l'ordre de 1000), et un désordre plus fort ($kl_t = 50$) [64].

Le régime de localisation forte est quant à lui difficilement atteignable avec un piège magnéto-optique classique. Nous piégeons environ 10^{10} atomes avec une densité de 10^{10} atomes/ cm^3 et les effets de répulsion dus à la diffusion de la lumière à l'intérieur du nuage, nous empêchent d'atteindre une densité suffisante pour franchir le seuil de localisation. Il faudrait en effet atteindre une densité de 10^{13} atomes/ cm^3 , ce qui est potentiellement possible grâce à des techniques de compression avancées (voir Chap. 2, partie (2.3.3) et [64]).

Dans la partie suivante, on verra un moyen imaginé afin d'espérer observer plus facilement les effets de la localisation, consistant à mettre du gain dans le milieu. Une façon de penser, est de supposer que les modes ayant les temps de vie des plus longs seront mis en évidence, car ils seront les mieux amplifiés. On s'attend à voir des modes dits "précurseurs" de la localisation, sans que le système ne satisfasse les conditions de localisation. Cette idée a ouvert un nouveau champ de recherche appelé "**laser aléatoire**".

1.2 Milieu actif : vers un laser aléatoire

Dans cette partie, nous étudions l'effet du gain sur la propagation de la lumière dans les milieux désordonnés. Il est bien connu que faire parcourir une onde un grand nombre de fois dans un milieu à gain, via une cavité résonante de type Fabry-Pérot, permet une amplification cohérente de l'onde. La cavité permet d'amplifier de manière cohérente les modes de propagation correspondant aux modes de cavité, et le faisceau est de ce fait très directif, et possède une bonne cohérence spatiale. On cherche à éviter toute diffusion hors de l'axe de la cavité, car l'énergie perdue.

On peut au contraire, se servir des effets de la diffusion multiple afin d'allonger et replier le parcours de l'onde dans le milieu à gain. L'effet d'amplification d'une onde grâce à la diffusion multiple dans un milieu à gain s'appelle **laser aléatoire** (Fig. 1.9). Le fait d'appeler un tel système "laser" peut paraître osé quand on

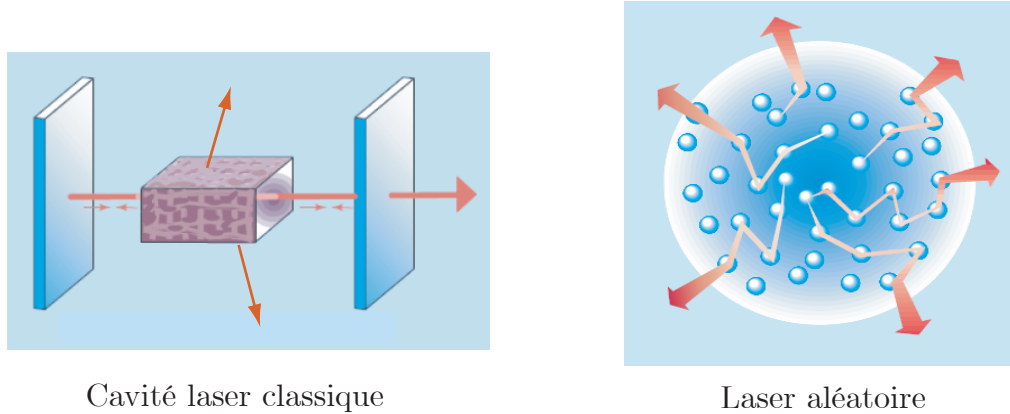


FIG. 1.9 – *Cavité laser résonante : les photons diffusés sont perdus. A l'inverse le laser aléatoire possède un rayonnement isotrope basé sur les photons diffusés et amplifiés. Image issue de [18].*

connaît le caractère aléatoire de la diffusion, mais on verra plus en détails dans les paragraphes suivants que cela peut être justifié. Rappelons ce que signifie l'acronyme LASER : Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation !

1.2.1 Gain et désordre

Dans cette partie, nous présentons les principales différences entre un laser classique et le laser aléatoire, en terme d'utilisation de la lumière diffusée et l'évaluation des pertes.

Dans un laser classique, comme dans le laser aléatoire, la condition d'oscillation repose à la fois sur la valeur du gain par simple passage dans le milieu à gain g et des pertes totales par aller-retour dans la cavité, notée \mathcal{L} :

$$g^2(1 - \mathcal{L}) > 1$$

La différence se présente principalement au niveau des pertes du système :

Dans un laser classique, elles sont essentiellement dues aux pertes sur les miroirs de la cavité Fabry-Pérot, et sont évaluées par un nombre appelé finesse. La finesse, notée \mathfrak{F} , traduit le nombre d'allers et retours qu'effectue un photon dans la cavité avant de sortir. Ainsi, on cherche à obtenir en générale une grande finesse (pour une meilleure amplification à gain fixe)⁶ qui est également synonyme

⁶Notons toutefois que les considérations sur la valeur de la finesse dépend du type laser et de l'application considérée : par exemple de notre point de vue, les diodes laser possèdent une très basse finesse, mais équipent néanmoins beaucoup de composants...

d'une cavité très sélective en fréquence, avec la largeur de résonance Δw_{cav} donnée par :

$$\frac{\Delta w_{cav}}{2\pi} = \frac{1}{\mathfrak{F}} \frac{c}{L} \quad (1.35)$$

où $L = 2L_0$ est la longueur de bouclage dans une cavité dont les miroirs sont séparés d'une longueur L_0 .

La lumière diffusée en dehors du mode de la cavité fait partie des pertes, contrairement au cas du laser aléatoire. Les pertes dans le laser aléatoire se situent sur la surface du milieu⁷, où l'onde a une forte probabilité de ressortir sans avoir fait beaucoup de diffusions. Pour réduire les pertes dans un laser aléatoire, il faut réunir les bonnes conditions entre la taille du système, le nombre de diffusions, et le gain en volume du milieu.

Pour donner un exemple plus pratique de ce que pourrait être un laser aléatoire, on peut imaginer un milieu où on place des micro-billes diffusantes en suspension dans un colorant organique (utilisé couramment dans les lasers à colorant, comme la Rhodamine 640, [65]). Le colorant sert à amplifier l'onde et les billes diffusantes permettent au faisceau de parcourir un chemin plus long dans le colorant. L'expérience montre un seuil dans l'intensité diffusée émise par le milieu en fonction de l'intensité de pompage.

Dans la partie précédente, nous avons distingué deux manières d'aborder la propagation d'une onde en milieu diffusant : la première est la diffusion classique (équation de diffusion, ou équation de transport radiatif). La deuxième est l'approche incluant les chemins de propagation fermés produisant des interférences (régime de localisation d'Anderson). On devine donc que le processus d'amplification doit être différent dans les deux cas : on verra qu'en régime diffusif, l'amplification s'apparente à de l'émission spontanée amplifiée, produisant un rayonnement incohérent, alors qu'en régime de localisation, on va amplifier l'onde avec un processus récurrent et produire des désexcitations stimulées comme dans un laser classique.

Dans la suite de ce chapitre, on va étudier le transport de la lumière avec gain d'abord en régime diffusif, qui est a priori, le régime le plus simple. Puis dans une deuxième partie, on étudiera le gain en régime localisé. On restera assez qualitatif sur ce sujet, car il s'agit d'un domaine de recherche récent du point de vue expérimental.

1.2.2 Régime diffusif : “the photonic bomb”

La diffusion de particules avec du gain est un domaine qui fut essentiellement développé pour les besoins de la physique nucléaire dans les réacteurs atomiques.

⁷Si on considère que le matériau n'est pas absorbant.

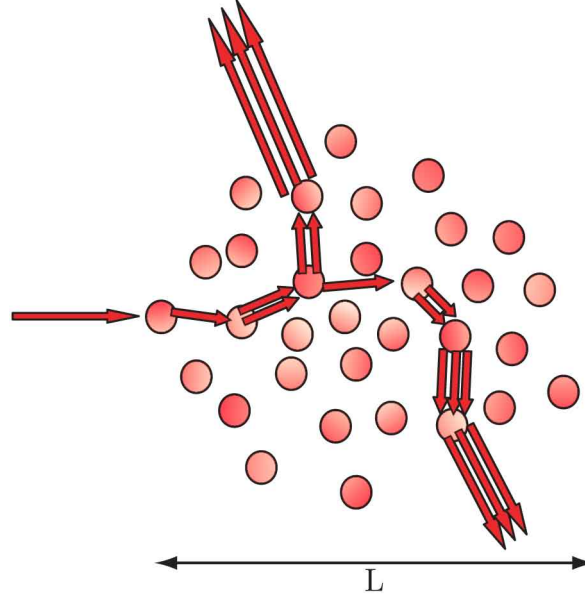


FIG. 1.10 – Amplification d'un faisceau sonde au cours des multiples diffusions.

De la même façon que l'on peut montrer l'existence d'une taille critique du réacteur pour qu'une réaction nucléaire s'emballe, il existe un même effet de seuil dans la diffusion de la lumière en présence de gain dans un milieu aléatoire (Fig. 1.10).

Cet effet fut prédit par Letokhov en 1968 [14] qui l'a qualifié de "Photonic Bomb" et observé expérimentalement par [66].

On va dans la suite expliciter plus précisément ce seuil en se servant de nos connaissances sur diffusion en milieu passif. L'équation de diffusion (1.27) s'écrit en présence de gain [21] :

$$\frac{\partial}{\partial t} I(\mathbf{r}, t) = D \nabla^2 I(\mathbf{r}, t) - \frac{v}{l_{abs}} I(\mathbf{r}, t) \quad (1.36)$$

l_{abs} est la longueur d'absorption (la communauté de la diffusion multiple parle du gain, comme une absorption négative). On peut définir la longueur de gain $l_g = -l_{abs}$. On peut évaluer l'absorption en mesurant l'intensité transmise de l'onde après propagation dans le milieu de longueur L : on mesure alors $I_{out} = I_{inc} e^{-g}$. Le gain, ou l'absorption, est alors défini comme le rapport entre l'intensité transmise et l'intensité incidente. La longueur de gain s'exprime par :

$$l_g = \frac{1}{n(\sigma_{trans} - \sigma_{diff})} \quad (1.37)$$

où n est la densité de diffuseur dans le milieu. On distingue σ_{diff} la section efficace de diffusion, de σ_{trans} la section efficace de transmission. On verra que

dans le cas de diffuseurs atomiques, ces deux quantités sont des fonctions de la polarisabilité atomique (Chap 4, partie 4.4.2) Pour résoudre l'équation (1.36), on cherche des solutions du type [21] :

$$I(\mathbf{r}, t) = \sum_n a_n \psi_n(\mathbf{r}) e^{-(DB_n^2 - v/l_g)t} \quad (1.38)$$

où n représente l'indice de l'ordre du mode de diffusion, ψ_n et B_n sont respectivement la fonction propre et la valeur propre de l'équation de Helmholtz $\nabla^2 \psi_n + B_n \psi_n = 0$. Trouver la condition de seuil du laser aléatoire revient à trouver la condition à partir de laquelle les solutions de l'équation précédente passent d'une variation décroissante à croissante. D'après l'équation (1.38), l'exponentielle devient croissante si $DB_n^2 - v/l_g$ devient négatif. On a donc une condition de seuil pour :

$$DB_n^2 - v/l_g = 0 \quad (1.39)$$

Sachant que $D = \frac{1}{3}vl_{sc}$ et en prenant la valeur propre du mode d'ordre le plus bas⁸ $B_1 = \pi/R^2$ (le milieu est considéré comme une sphère de rayon R , sa longueur est $L=2R$), on obtient un critère sur la taille du milieu :

$$L_{cr} = 2\pi \sqrt{\frac{l_{sc}l_g}{3}} \quad (1.40)$$

L'équation (1.40) nous montre que pour tous milieux dont le libre parcours moyen et le gain sont connus, on peut connaître la taille critique au delà de laquelle l'amplification va diverger. Ce critère exprime en fait la condition que le gain doit être supérieur aux pertes comme dans un laser classique : la longueur du chemin déplié parcourue par l'onde dans le milieu doit être suffisamment importante pour compenser les pertes aux interfaces.

Ainsi, l'intensité diffusée par le milieu doit marquer un changement de comportement pour $L = L_{cr}$, caractérisé par une augmentation plus rapide. Cette dynamique est identique au seuil d'un laser classique. Par contre ici les aspects de cohérence sont absents car le processus est uniquement diffusif et non résonant. D'où l'ambiguïté d'appeler ce système un "laser". Dans le spectre d'un tel laser, on s'attend à observer que tous les modes ψ_n solutions du systèmes passif, soient amplifiés. On appellera ce laser un laser aléatoire à rétroaction incohérente [21].

1.2.3 Laser aléatoire cohérent

Maintenant, on se place en régime de localisation d'Anderson et on introduit du gain dans le milieu. On n'entrera pas dans des détails théoriques car un tel système est encore mal connu. Néanmoins, l'équipe de Hui Cao a réalisé des

⁸On choisit le mode d'ordre le plus bas, car c'est celui qui a la durée de vie la plus grande dans le milieu, et qui est susceptible d'atteindre le seuil laser en premier.

expériences dans ce sens, où un milieu désordonné, pompé par une impulsion laser, émet par diffusion une lumière dont le spectre est composé de plusieurs pics fins (Fig. 1.11). La présence de ces pics serait due aux modes localisés, mais la conclusion n'est pas encore claire car on peut également observer de tels pics fin en régime diffusif [22, 26, 67].

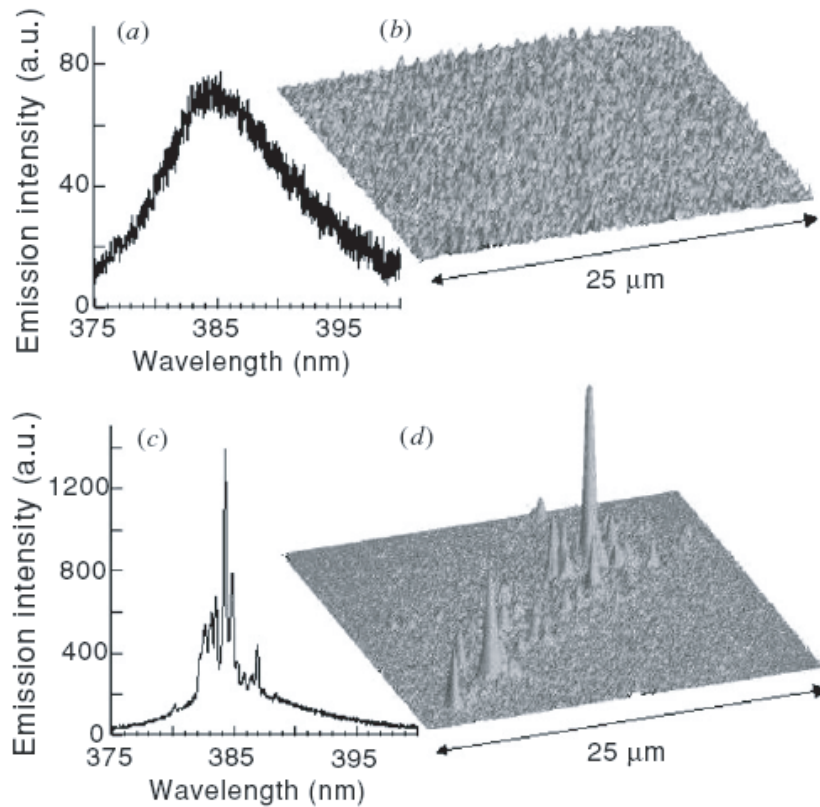


FIG. 1.11 – (a) et (b) sont respectivement le spectre d'émission d'une poudre d'Oxyde de Zinc et la distribution spatiale d'intensité à la surface de l'échantillon pour une pompe d'intensité 5,2 nJ.

(c) et (d) sont les mêmes données prises avec une pompe plus forte de 12.5nJ. Données issues de [22]

Les simulations numériques montrent qu'en présence de gain, les modes localisés se comportent comme une multitude de micro-cavités laser [68, 69].

Ce processus conduit a priori à un rayonnement multimode et isotrope, avec potentiellement des applications technologiques comme la réalisation de micro-lasers dans des circuits photoniques [26].

1.2.4 Laser aléatoire et atomes froids

Le laser aléatoire cohérent ou incohérent fait l'objet d'études expérimentales qui utilisent les mêmes genres d'échantillons diffusants que pour étudier les effets de la localisation : poudres à base de matériaux semiconducteurs, films organiques etc... Le lien entre théorie et expérience est toujours caution à interprétation, et source de débats ([6–8]).

Nous proposons une approche différente en utilisant un nuage d'atomes froids comme milieu diffusant et à gain. Le fait que les atomes froids soient un milieu diffusant ne reste plus à démontrer (partie 1.1.6), et nous montrerons dans le chapitre 3 une étude expérimentale approfondie des mécanismes de gain.

On peut dès à présent souligner une originalité fondamentale dans notre approche : les atomes sont à la fois les diffuseurs et la source de gain. Une des problématiques sera donc de chercher à réaliser simultanément de la diffusion élastique et de l'émission stimulée avec les atomes. Outre ce point important, les atomes froids sont intéressants pour étudier les problèmes de diffusion multiple :

- Les atomes piégés ont peu d'élargissement dû à l'effet Doppler. On peut parfaitement accorder un laser avec précision sur chacune des résonances atomiques pour provoquer des inversions de population afin de produire du gain.
- Il n'y a pas d'absorption. Tous les photons sont diffusés et aucune énergie n'est perdue (si on suppose bien sûr que toutes les diffusions sont élastiques, ce qui n'est pas une chose évidente lorsque l'on introduit du gain...)
- On peut faire varier l'intensité de désordre en changeant les paramètres de piégeage des atomes.

1.3 Résumé

Nous avons fait dans ce chapitre une brève revue des phénomènes de diffusion d'une onde dans les milieux désordonnés. Nous avons vu que suivant le degré de désordre du milieu, nous devons prendre en compte l'aspect ondulatoire de la lumière lors du processus de diffusion.

L'équation de diffusion classique permet de calculer l'intensité diffusée par l'échantillon dans les systèmes à faible désordre. La nature ondulatoire de l'onde est toujours présente via des effets d'interférence mais est faible dans les systèmes peu désordonnés. Elle devient par contre prépondérante lorsque l'on augmente le degré de désordre.

Dans la limite où le libre parcours moyen devient semblable à la longueur d'onde de l'onde qui se propage, le caractère diffusif de la propagation disparaît laissant place à un nouveau régime dit de localisation d'Anderson.

C'est dans ce contexte que nous étudions la diffusion multiple de la lumière dans un gaz d'atomes froids piégés. La bonne connaissance de l'interaction laser-matière développée depuis plus d'une quarantaine d'années, nous permet de comparer résultats expérimentaux et théoriques avec une grande précision.

Notre but est d'étudier la diffusion de la lumière dans le gaz d'atomes froids en présence de gain. Ce gain permet d'amplifier la lumière diffusée et conduit à des effets comparables à une émission laser, regroupés sous le nom de laser aléatoire.

Dans le chapitre suivant nous allons présenter une description de notre piège magneto-optique, permettant de piéger le gaz d'atomes.

Le dispositif expérimental

Nous présentons dans cette partie une description du montage expérimental. Nous commencerons par un bref rappel des techniques de refroidissement et de piégeage d'un gaz d'atomes dans un **piège magnéto-optique**. Notre expérience possède la particularité de pouvoir piéger un grand nombre d'atomes, et on expliquera les principales grandeurs mesurables, utiles dans la suite (épaisseur optique, fluorescence du nuage, etc...). On précisera les techniques de mesure de chacune d'elles, et on verra quelques techniques mises en place afin d'augmenter la densité du nuage d'atomes froids, afin de correspondre aux critères d'un milieu dit fortement désordonné.

Un nuage à grand nombre d'atomes est nécessaire (10^{10} atomes) pour l'étude du gain et du laser aléatoire, or un tel nuage peut aussi présenter d'autres caractéristiques d'un point de vue dynamique : des effets collectifs via les interactions à longue portée sont observables. Dans la dernière partie de ce chapitre, on fera un résumé sur ces instabilités dynamiques, qui présentent de nombreuses similitudes avec les instabilités présentes dans les plasmas chauds confinés.

2.1 Piégeage d'atomes par laser

2.1.1 Le refroidissement Doppler

Lorsqu'un atome absorbe un photon d'impulsion $\hbar\mathbf{k}$ d'un faisceau laser, son impulsion change, et le changement de vitesse s'exprime par la vitesse de recul :

$$v_{rec} = \frac{\hbar k}{m} \quad (2.1)$$

C'est la possibilité de transférer l'impulsion entre un atome et une onde électromagnétique qui est à la base du refroidissement Doppler. Plus précisément, l'étude de l'interaction entre la lumière et la matière permet de mettre en évidence deux forces d'origine radiative [50] :

- **la force de pression de radiation** : elle dépend du gradient de phase de l'onde incidente et est dissipative.
- **la force dipolaire** : elle est proportionnelle au gradient d'intensité et est conservative.

On peut donner l'expression de ces forces en calculant la force moyenne exercée sur un atome soumis à une radiation électromagnétique (une démarche similaire sera faite au Chap. 3, partie (3.3)). Lorsqu'un laser de fréquence ω et de vecteur d'onde \mathbf{k}_L éclaire un atome possédant 2 niveaux d'énergie (fondamental et excité), séparés par une énergie $\hbar\omega_{at}$, la force de pression de radiation peut s'écrire :

$$\mathbf{F}_{PR} = \frac{\hbar\mathbf{k}_L\Gamma}{2} \frac{s}{s+1} \quad (2.2)$$

De même, on montre que la force dipolaire s'écrit :

$$\mathbf{F}_{dip} = -\frac{\hbar\delta}{2} \frac{\nabla s}{s+1} \quad (2.3)$$

Avec Γ^{-1} la durée de vie de l'état excité et $\delta = \omega - \omega_{at}$ est le désaccord en fréquence du laser par rapport à la résonance atomique. On rappelle que s est le paramètre de saturation introduit en (1.11) :

$$s = \frac{I/I_{sat}}{1 + 4\frac{\delta^2}{\Gamma^2}} \quad (2.4)$$

La force de pression de radiation, dissipative, est utilisée afin de ralentir un atome

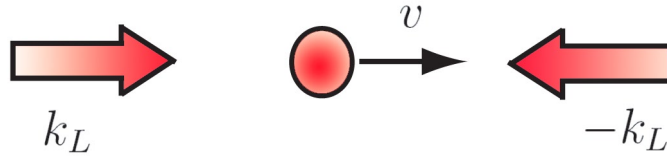


FIG. 2.1 – Refroidissement Doppler à une dimension.

en mouvement, comme dans une configuration illustrée sur la figure (2.1), où un atome ayant une vitesse initiale \mathbf{v} est éclairé par deux faisceaux laser contra-propageants. Dans le cas de faible saturation, la force de pression de radiation exercée sur l'atome par les deux lasers s'écrit :

$$F = \frac{\hbar k_L \Gamma}{2} (s_+ - s_-) \quad (2.5)$$

où on tient compte du décalage Doppler : $\delta_{doppler} = \pm \mathbf{k}_L \cdot \mathbf{v}$, selon le sens de propagation du laser. On a ainsi :

$$s_{\pm} = \frac{I/I_{sat}}{4(\delta \mp \mathbf{k}_L \cdot \mathbf{v})^2/\Gamma^2 + 1} \quad (2.6)$$

dans le cas où $\delta_{doppler}$ est petit devant Γ et δ , on peut linéariser la force résultante et écrire :

$$F(\mathbf{v}) = -m\gamma\mathbf{v} \quad (2.7)$$

avec [31]

$$\gamma = \frac{\hbar k_L^2 \Gamma}{m} s \frac{-2\delta\Gamma}{\delta^2 + \Gamma^2/4} \quad (2.8)$$

γ représente un coefficient de friction. Ainsi l'action de deux lasers contrapropagants crée une force semblable à une force de friction sur l'atome.

Ce même principe étendu aux trois dimensions de l'espace forme ce que l'on nomme une **mélasse optique**. L'agitation thermique des atomes piégés diminue, et on peut atteindre des températures de l'ordre de 100 microkelvins. La température minimale de refroidissement possible est limitée par le processus d'absorption-émission de photons par l'atome, dont l'impulsion résiduelle est v_{rec} . On donnera plus de précision sur ce sujet dans le prochain paragraphe. On note également que ce procédé ne permet pas encore de piéger les atomes en position.

2.1.2 Coefficient de diffusion

La force exercée sur l'atome soumis au rayonnement des lasers pièges au cours des cycles absorption-émission est une force moyenne. Des fluctuations autour de cette force moyenne, dues au phénomène d'émission spontanée, créent une marche aléatoire sur le mouvement de l'atome, qui est identique au mouvement brownien, dans l'espace des impulsions.

On peut montrer que cette marche au hasard peut s'exprimer en terme de diffusion. L'évolution de la variance de l'impulsion suit l'équation :

$$\frac{\partial(\Delta p)_{ii}^2}{\partial t} \propto -2\gamma(\Delta p)_{ii}^2 2D_{ii} \quad (i = x, y, z) \quad (2.9)$$

avec D le tenseur de diffusion qui a pour expression [70] :

$$D = \frac{\Gamma}{2} s(\hbar k)^2 \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} + \frac{\Gamma}{2} s(\hbar k)^2 \begin{pmatrix} \overline{\cos^2\theta} & 0 & 0 \\ 0 & \frac{0}{\sin^2\theta \cos^2\varphi} & 0 \\ 0 & 0 & \frac{0}{\sin^2\theta \sin^2\varphi} \end{pmatrix} \quad (2.10)$$

On a noté θ et φ les angles polaires du photon émis, et $\overline{\cos^2}$ indique une moyenne spatiale sur les valeurs angulaire de rayonnement du dipôle. Le premier terme représente la contribution sur les fluctuations de la quantité de mouvement lors de l'absorption d'un photon des faisceaux piège, alors que le second terme est dû au recul aléatoire lors de l'émission spontanée. Pour un rayonnement isotrope les trois moyennes angulaires valent 1/3 chacune. Ainsi à trois dimensions, et dans le cas de diffusion isotrope, le coefficient de diffusion D_p égal à la trace du tenseur D, vaut :

$$D_p = 3(\hbar k)^2 \Gamma s \quad (2.11)$$

Le terme de diffusion se traduit par un chauffage qui s'oppose au refroidissement par friction Doppler. La compétition entre ces deux effets

conduit à une énergie d'équilibre :

$$\frac{(\Delta p)^2}{2m} = \frac{3}{2}k_B T = \frac{D_P}{2m\gamma} \quad (2.12)$$

L'étude de cette fonction montre que la température minimale atteignable par refroidissement doppler est obtenue pour un désaccord $\delta = -\Gamma/2$ et vaut :

$$k_B T_{min} = \frac{\hbar\Gamma}{2} \quad (2.13)$$

L'application numérique pour l'atome de rubidium donne environ 140 μK .

Historiquement, les premières mesures de températures faites dans les mélasses optiques ont donné des températures plus basses. La prédiction théorique s'avère fautive car l'étude faite ci-dessus est une approche semi classique considérant un atome à deux niveaux d'énergie, et ne tient pas compte notamment de la dégénérescence des niveaux d'énergie atomique. Cela conduit en réalité à un autre mécanisme de refroidissement, appelé **refroidissement Sisyphe** [31] qui doit être introduit afin de reproduire les résultats des expériences. Avec cette méthode on peut atteindre des températures de refroidissement dites sub-doppler, de l'ordre du microKelvin, (10^{-6}K)¹.

2.1.3 Le piège magnéto-optique

On a vu la méthode de ralentissement d'atomes grâce à la force de pression de radiation. Cependant, une fois ralenti, le nuage d'atomes peut s'étaler spatialement car il n'est soumis qu'à une force de friction.

On doit donc ajouter une force de rappel en position, qui est créée en utilisant un gradient de champ magnétique produit par deux bobines placées en configuration anti-Helmholtz. Le gradient de champ magnétique résultant, dépend de la position z (Fig. 2.2), et a pour effet de déplacer les niveaux d'énergie des atomes (voir la relation (3.93) introduite dans le Chap. 3), de manière à ce que l'écart d'énergie des niveaux soit toujours à résonance avec les lasers pièges.

Comme pour la force de friction Doppler, on peut montrer que la force de rappel peut se linéariser autour du point de position $z=0$:

$$F_B = -\kappa z \quad (2.14)$$

avec [31] :

$$\kappa = \frac{\hbar k_L^2 \Gamma}{m} \mu (\overrightarrow{\text{grad}} \vec{B}) s \frac{-2\Gamma\delta}{\delta^2 + \Gamma^2/4} \quad (2.15)$$

¹On peut également refroidir d'avantage jusqu'à des températures dites sub-recoil, de l'ordre de 10^{-9}K , en adoptant des configurations où les atomes cessent d'interagir avec les lasers [71].

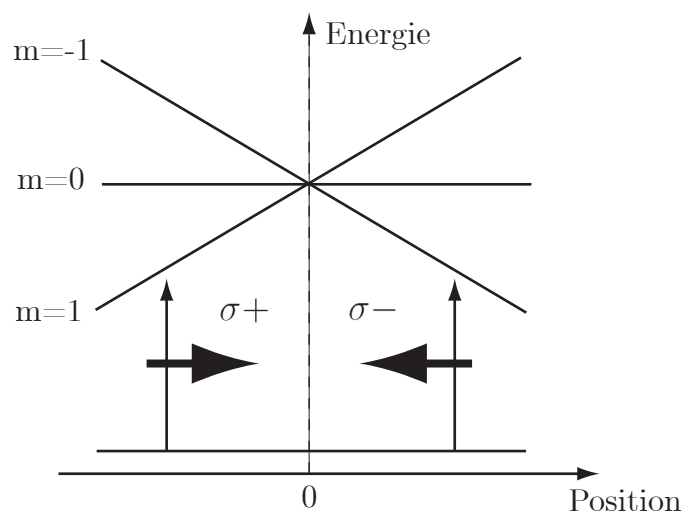


FIG. 2.2 – Principe du piège magnéto optique. Un gradient de champ magnétique créé par deux bobines en configuration anti-Helmoltz, piège les atomes en position autour du point 0. m est le nombre magnétique quantique.

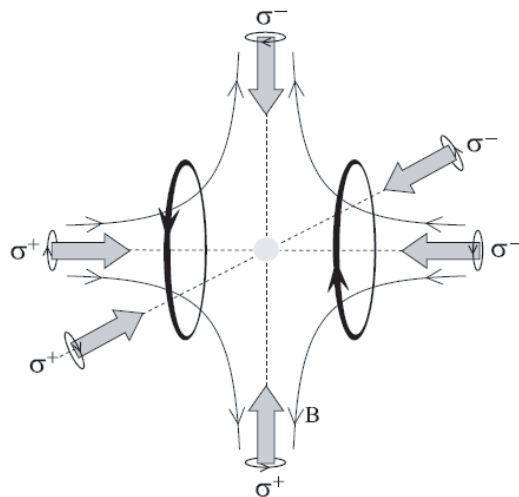


FIG. 2.3 – Représentation d'un piège magnéto optique. Six faisceaux lasers pièges polarisés circulairement, et deux bobines créant un gradient de champ magnétique. Illustration [38]

Ainsi, l'atome ralenti par la force de friction (2.7), est piégé grâce à la force de rappel (2.14).

Son mouvement suit maintenant l'équation d'un oscillateur amorti. La position stationnaire et stable des atomes se situe au centre du piège, où le champ

magnétique est nul. Dans un piège à grand nombre d'atomes, c'est l'effet de re-diffusion des photons à l'intérieur du piège qui va fixer la taille du nuage et la densité.

Cette technique de piégeage est appelé **piège magnéto optique** (ou MOT, pour Magneto Optical Trap) (Fig. 2.3) [72].

2.2 Notre expérience

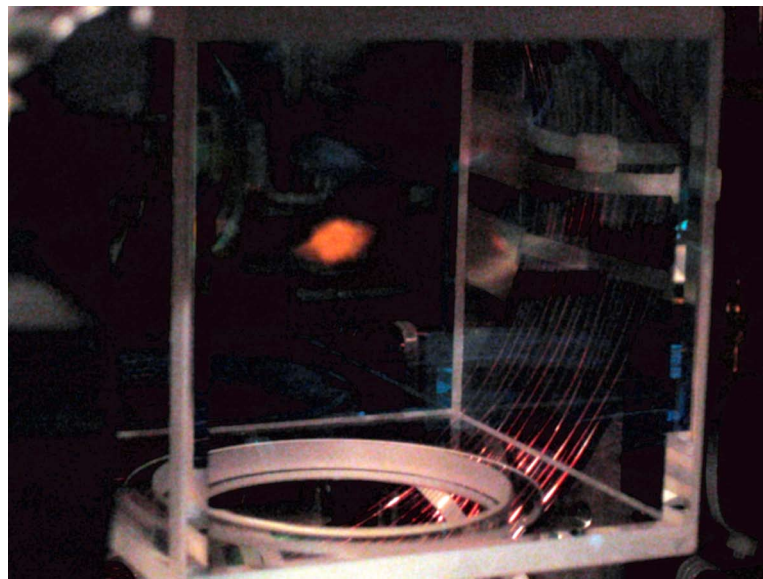


FIG. 2.4 – Photographie de la cellule à vide contenant le nuage d'atomes piégés. Cette configuration nous permet d'utiliser de larges faisceaux piège de diamètre environ 6 cm et de puissance 40 mW chacun.

Nous piégeons un nuage d'atomes de l'isotope 85 du Rubidium (Fig. 2.4). La configuration de l'expérience est optimisée afin d'utiliser de larges faisceaux pièges, nous permettant de piéger plus de 10^{10} atomes. Nous sommes typiquement dans le cas d'un MOT à grand nombre d'atomes, dont la taille (~ 1 cm) et la densité (10^{10} atomes/cm³) sont limitées par la force de répulsion due à la diffusion multiple de la lumière entre les atomes [64, 73].

Pour générer les faisceaux pièges, nous amplifions le signal d'une diode DBR (Distributed Bragg Reflector) asservie sur un cross-over² entre la raie $F = 3 \rightarrow F' = 4$ et $F = 3 \rightarrow F' = 2$ de la raie D2 du ⁸⁵Rb. Le faisceau repompeur, qui sert à repomper les atomes étant tombés par fluorescence dans le niveau

²Voir technique d'absorption saturée ([74] et Fig 2.5.)

$F = 2$, est également un laser amplifié d'une diode DBR asservie sur la transition $F = 2 \rightarrow F' = 3$ (Fig. 2.5).

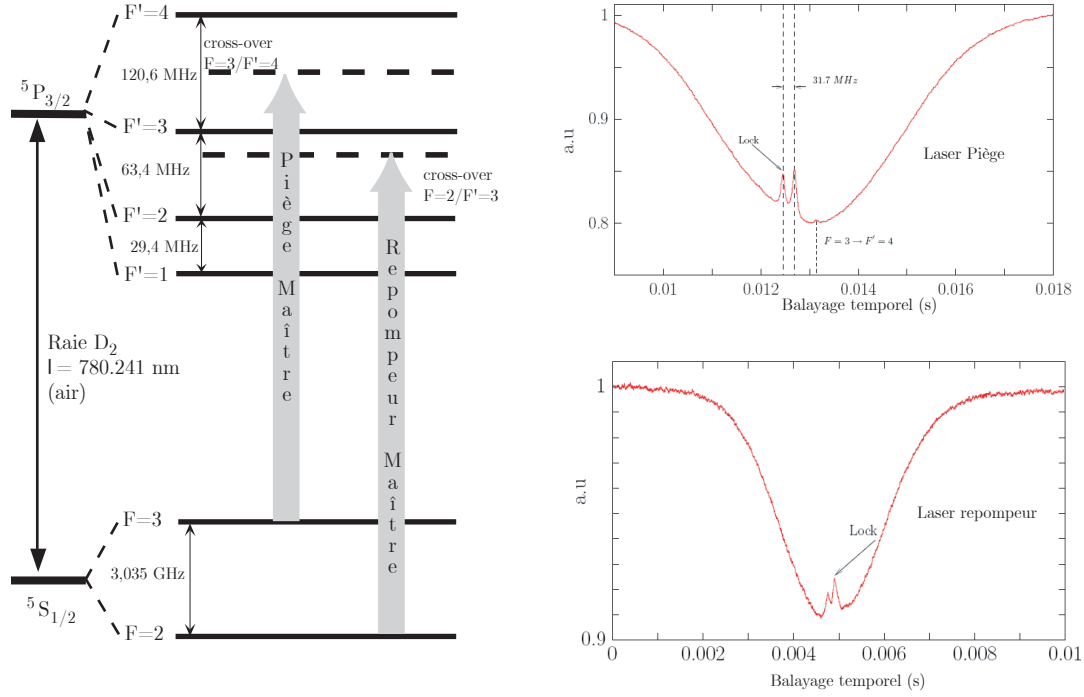


FIG. 2.5 – diagramme des niveaux d'énergie permettant le piégeage des atomes de Rubidium. A droite, spectre d'absorption saturée pour l'asservissement des diode laser sur les transitions optiques du rubidium 85.

L'amplification des faisceaux se fait en deux étapes : d'abord injection d'une diode esclave par la diode DBR maître, qui permet d'obtenir une puissance de faisceau nécessaire afin d'être de nouveau amplifié dans un "Tapered amplifier Laser" qui permet d'obtenir en sortie un faisceau d'environ 1 Watt. Un schéma détaillant les étapes d'injection est donné dans l'annexe A.

Cette puissance est répartie dans les faisceaux pièges et dans d'autres faisceaux lasers utilisés pour les mesures : un faisceau que l'on va appeler "Pompe" et un faisceau "Sonde" (Chap. 3, partie 3.7.1).

2.3 Grandeurs caractéristiques du nuage d'atomes

2.3.1 Épaisseur optique

La mesure de l'épaisseur optique du nuage d'atomes est très importante car il s'agit d'un paramètre pertinent dans les expériences de diffusion multiple de la

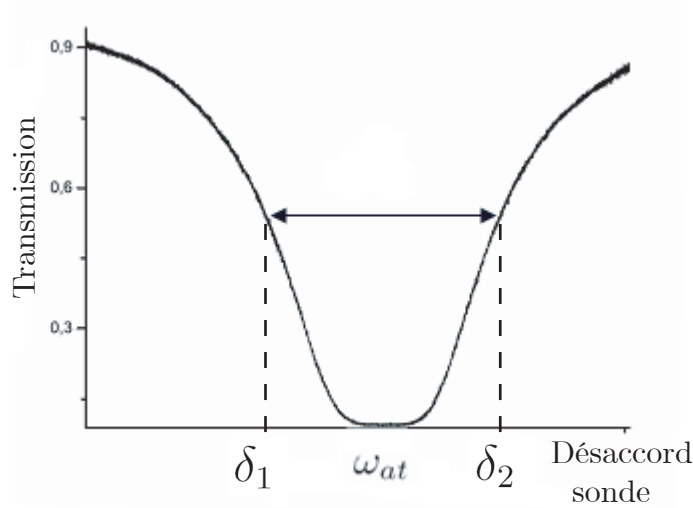


FIG. 2.6 – Courbe de transmission d’une sonde à travers le nuage d’atomes. La largeur à mi-hauteur de cette courbe nous donne l’épaisseur optique à résonance via la relation 2.17. On remarque que la transmission n’atteint pas la valeur 0 autour de la résonance atomique : il s’agit d’un biais expérimental car le détecteur mesure toujours des fréquences du spectre laser sonde que le nuage d’atomes ne diffuse pas, car trop éloignées de résonance atomique (pied d’estale dans le spectre du Tapered Amplifier, etc..).

lumière (Chap. 1, partie 1.1.2.2). On rappelle que l’épaisseur optique du nuage b est définie d’après la loi de Beer Lambert pour un faisceau peu saturant, de pulsation ω :

$$I = I_{inc} e^{-b(\delta)} \quad (2.16)$$

où $\delta = \omega - \omega_{at}$, l’écart à la résonance atomique.

On définit souvent l’épaisseur optique à résonance $b_0 = b(\delta = 0)$, et est la valeur de l’épaisseur optique utilisée conventionnellement.

En pratique, afin de mesurer l’épaisseur optique, on envoie à travers le nuage un faisceau sonde, faiblement saturant, et de taille plus petite que le nuage. On mesure la transmission de cette sonde tout en balayant sa fréquence de part et d’autre de la résonance atomique. On obtient ainsi un spectre de transmission à travers le nuage (Fig. 2.6). En mesurant les désaccords laser δ_1 et δ_2 correspondant à la largeur à mi-hauteur de cette courbe. En utilisant la relation, $b(\delta) = \frac{b_0}{1+4\delta^2/\Gamma^2}$, on peut montrer que l’on connaît ainsi l’épaisseur optique à résonance, via la relation :

$$b_0 = \ln \frac{1}{2} \left(\frac{(\delta_1 - \delta_2)^2}{\Gamma^2} - 1 \right) \quad (2.17)$$

cette méthode est utile lorsque l’on veut mesurer de grandes épaisseurs optiques auquel cas la transmission est bien trop faible pour effectuer une mesure

directe. Typiquement notre nuage d'atomes possède une épaisseur optique à résonance d'environ 40.

2.3.2 Fluorescence du nuage

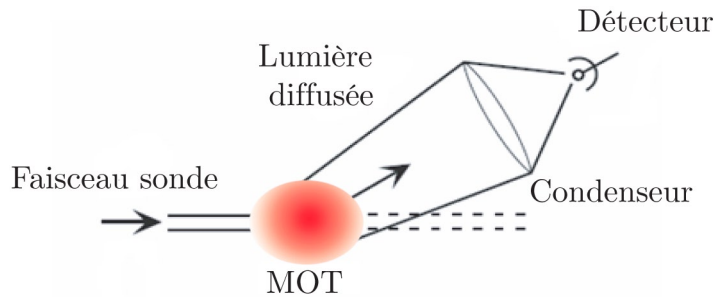


FIG. 2.7 – Montage mis en oeuvre pour collecter les photons émis par fluorescence.

La mesure complémentaire à l'épaisseur optique du nuage est la quantité de lumière diffusée. Elle nous permet d'évaluer quantitativement le nombre d'atomes piégés [64], et est essentielle dans la détection du laser aléatoire.

On mesure la fluorescence du nuage avec un détecteur collectant un maximum de lumière du piège (Fig. 2.7) via différentes méthodes :

- Mesure du spectre de la lumière diffusée grâce un Fabry-Pérot.
- Mesure du spectre de la lumière diffusée par battement avec un autre laser (technique d'hétérodynage).
- Mesure des corrélations d'intensité $g_2(\tau)$ [43].

2.3.3 Atomes froids et désordre

La densité du MOT est limitée par les effets de diffusion multiple des photons des lasers pièges et des lasers repompeurs. Dans notre nuage d'atomes, elle est typiquement de 10^{10} atomes/ cm^3 , et la mesure expérimentale de la taille du nuage et de son épaisseur optique, permet de trouver dans notre cas un paramètre de désordre kl_t l'ordre de 1000. Ceci est très insuffisant si nous voulons nous placer proche du seuil de localisation d'Anderson. Il existe néanmoins plusieurs techniques afin d'améliorer cette densité :

Le dark MOT [75]. On cache le centre du nuage du faisceau repompeur de telle sorte que les atomes du centre du piège sont dépompés dans le niveau $F = 2$ et deviennent donc insensibles aux photons pièges, mais restent confinés grâce aux atomes autour d'eux. Cette technique permet d'augmenter l'épaisseur optique, et elle nous a permis d'atteindre une épaisseur optique de l'ordre de 100.

Le piège dipolaire [76]. On se sert de la force dipolaire afin de capturer le gaz d'atomes. En pratique on focalise sur le nuage un faisceau laser de grande puissance et très désaccordé, dans le rouge de la résonance atomique. Les atomes vont être attirés par la force dipolaire (2.3), aux endroits de plus grande intensité (Fig. 2.8).

La combinaison de ces deux techniques nous a permis d'obtenir $kl_t \sim 50$ [64].

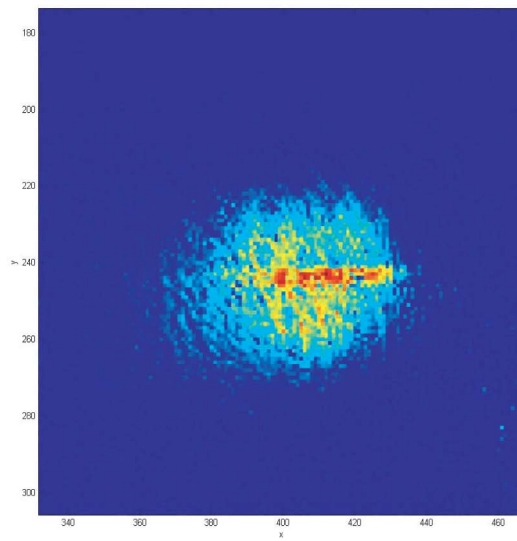


FIG. 2.8 – Image collectée par fluorescence du MOT (couleur bleu claire) et du piège dipolaire (couleur rouge). 2.10^8 atomes sont piégés dans le piège dipolaire pour une densité de 2.10^{12} atomes/cm³ et $kl_t \sim 50$.

2.4 Instabilités dynamiques

2.4.1 Présentation

Dans cette partie nous exposons un exemple de dynamique particulière d'un MOT à grand nombre d'atomes. Dans certaines conditions, on peut observer des oscillations spatiales auto-entretenues du nuage comme illustré sur la figure (2.9) ([32, 77, 78] et [33, 34]). Ces instabilités dynamiques sont dues à une compétition entre les forces de pression de radiation et une force repulsive due à la diffusion de la lumière à l'intérieur du nuage [79].

Une étude plus quantitative de cette instabilité nous montre une réelle structure physique : les oscillations observées ont une fréquence principale stable vers 55 Hz (Fig 2.10 (a)) et peuvent présenter une structure régulière en dent de scie

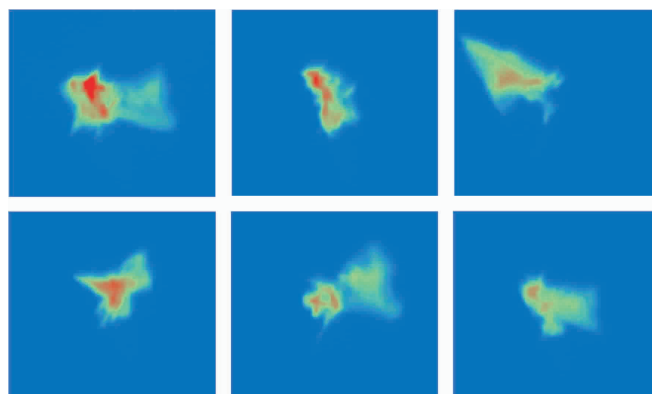


FIG. 2.9 – Images de la fluorescence du nuage d'atomes capturées avec une caméra CCD refroidie.

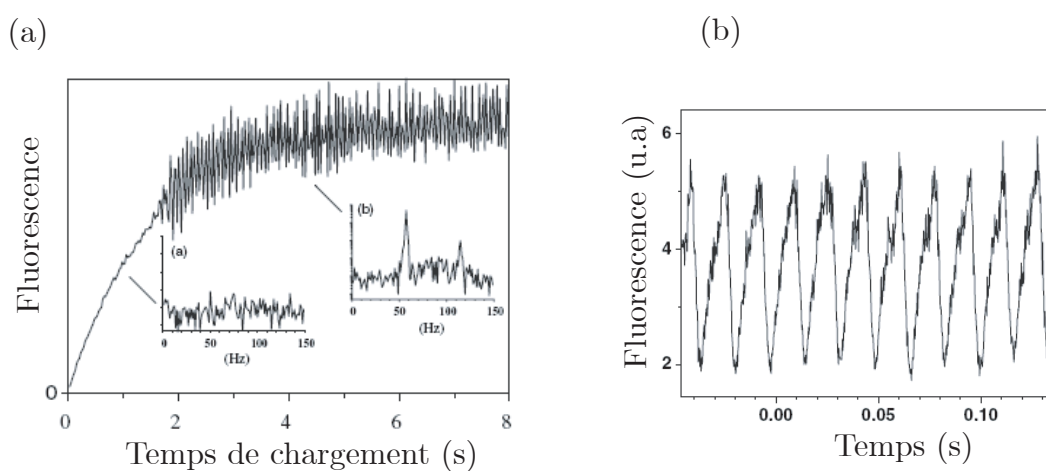


FIG. 2.10 – (a) Evolution de la fluorescence du nuage d'atomes en fonction du temps. A $t=0$ les faisceaux pièges sont allumés, la croissance de la fluorescence correspond au chargement des atomes dans le piège. Au delà d'une certaine valeur sur le nombre d'atomes, le nuage devient instable.

(b) fluorescence du centre du MOT dans le régime instable, les oscillations ont une fréquence principale de 55 Hz, présentent une structure régulière.

(Fig. 2.10 (b)). Sur la figure (2.10 (a)), on remarque les instabilités apparaissent avec un seuil sur le nombre d'atomes, et on verra que le passage du régime stable vers instable présente les caractéristiques d'une **bifurcation de Hopf super-**

critique.

Nous verrons dans la partie suivante, une brève description physique de la force de répulsion à l'origine de cette instabilité. On montrera que cette force est de type coulombienne en $1/r^2$, et cette remarque nous permettra d'établir des analogies entre notre piège et un gaz de plasma chaud confiné [78]. Cette étude est également présentée dans une publication scientifique qui est jointe partie (2.4.4). On y présente en particulier un modèle permettant de prévoir le seuil de l'instabilité [32, 77].

2.4.2 Force répulsive

La diffusion multiple de la lumière est à l'origine d'une force qui s'oppose au piégeage des atomes. Alors que la diffusion simple d'un photon par un atome provoque une fluctuation autour de la force moyenne, la diffusion double (un atome absorbe un photon émis par un autre atome du nuage) crée une force de répulsion [79].

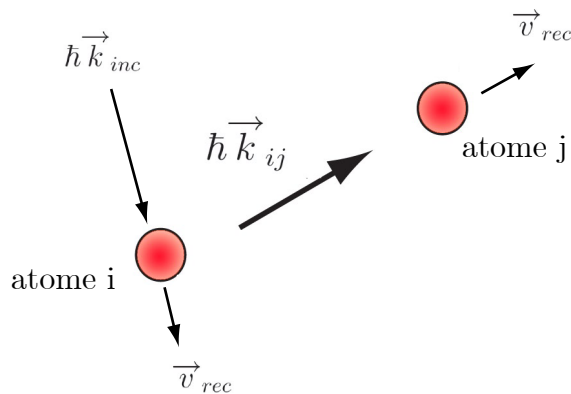


FIG. 2.11 – Diffusion double entre deux atomes. L'atome i absorbe et diffuse un photon du laser piège, l'atome j absorbe le photon diffusé par l'atome i

Pour calculer analytiquement la force due à la diffusion double, on a recours à quelques approximations (Fig. (2.11)) : on suppose que l'atome j reçoit des photons ne provenant que des lasers pièges et de l'atome i , et on néglige tous les photons diffusés par les autres atomes du MOT. De plus, on suppose à juste titre que l'intensité des lasers pièges est très grande devant celle émise par l'atome i . On fera remarquer que la description des effets de la diffusion multiple effectuée ci-après, ne se base pas sur une approche ab initio, et reste très qualitative :

Le taux de photons diffusés total sur l'atome \mathbf{j} s'écrit :

$$\Gamma_j = \frac{\Gamma}{2} \frac{s_L}{s_L + 1} \quad (2.18)$$

La part du taux de photons diffusés uniquement par l'atome \mathbf{i} sur l'atome \mathbf{j} est une pondération du résultat précédent :

$$\Gamma_{ij} = \Gamma_j \frac{s_{ij}}{s_L + 1} \quad (2.19)$$

La force exercée par l'atome \mathbf{i} sur l'atome \mathbf{j} s'écrit :

$$\vec{F}_{ij} = \hbar \vec{k}_{ij} \frac{s_L}{s_L + 1} \frac{s_{ij}}{s_L + 1} \sim \hbar \vec{k}_{ij} \frac{s_{ij}}{s_L + 1} \quad (2.20)$$

avec

$$s_{ij} = \frac{I_{ij}/I_{sat}}{1 + \frac{4}{\Gamma^2} \left(\delta^2 - \vec{k}_{ij} \cdot \vec{v}_i - \mu (\overrightarrow{grad} \vec{B}) \cdot \vec{r}'_i \right)^2}$$

et $s_L \sim I_L/I_{sat}$ où I_L est l'intensité totale des faisceaux pièges.

I_{ij} l'intensité diffusée par l'atome \mathbf{i} sur l'atome \mathbf{j} , s'écrit :

$$I_{ij} = \frac{P_{diff}}{4\pi r_{ij}^2} \quad (2.21)$$

où P_{diff} est la puissance totale diffusée de l'atome \mathbf{i} . Ce calcul nous montre finalement que l'on peut mettre l'équation (2.20) sous la forme :

$$\vec{F}_{ij} \sim \frac{G}{r_{ij}^2} \vec{u}_{ij} \quad (2.22)$$

Cette force repulsive s'oppose à la force de pression de radiation, et augmente en fonction du nombre d'atomes. Son rôle est essentiel dans le phénomène d'instabilité : elle est semblable à la force de répulsion coulombienne qui agit entre les particules chargées dans les plasmas chauds confinés des réacteurs à fusion thermonucléaire.

2.4.3 Etude expérimentale

On reporte dans cette partie quelques résultats expérimentaux sur l'analyse du seuil de l'instabilité [80], en complément à [32].

Un des paramètres à faire varier afin d'explorer la transition entre régime stable et instable, est l'épaisseur optique du nuage. Expérimentalement on peut faire varier l'épaisseur optique en changeant le nombre d'atomes piégés via le

gradient de champ magnétique appliqué : on fait varier la “raideur du piège” κ (équation 2.14).

Un autre paramètre ajustable est le désaccord des faisceaux pièges. En effet, on rappelle que l’épaisseur optique b est donnée par :

$$b(\delta) = \frac{b_0}{1 + 4\delta^2/\Gamma^2} \quad (2.23)$$

En faisant varier δ on peut donc facilement franchir le seuil d’instabilité. δ est donc un “paramètre d’ordre” du système. C’est en fonction de ce paramètre que l’on va étudier l’existence d’une bifurcation³ dans la dynamique des instabilités.

Cette bifurcation possède les particularités d’une bifurcation de Hopf supercritique : l’amplitude des oscillations est continue au franchissement du seuil, alors que la fréquence des oscillations est discontinue (elle passe brutalement de 0 à 50 Hz), (Fig. 2.12). De plus on n’observe pas d’effet significatif d’hysteresis.

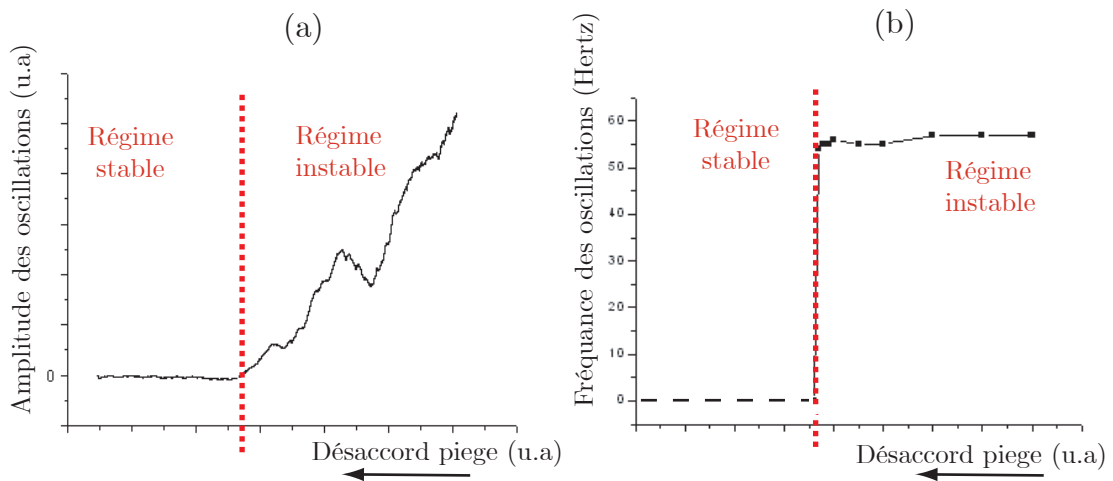


FIG. 2.12 – Caractéristique d’une bifurcation de Hopf supercritique (a) Amplitude des oscillations de l’instabilité en fonction du désaccord des faisceaux lasers pièges. Le passage au travers du seuil est continu (b) fréquence d’oscillation de l’instabilité en fonction du désaccord des faisceaux pièges. Le passage à travers le seuil est discontinu.

Nous avons également vérifié si le système pouvait être excitable en modulant un paramètre. Nous avons choisi de moduler la raideur du piège via le gradient de champ magnétique. En excitant le système autour de sa fréquence d’oscillation naturelle, on peut réaliser un accrochage en fréquence : la fréquence d’oscillation naturelle s’affine et peut suivre celle dictée pour le forçage (Fig. (2.13)), ce qui est semblable au procédé d’injection laser.

³point où observe des changements qualitatifs dans la structure de la dynamique du système

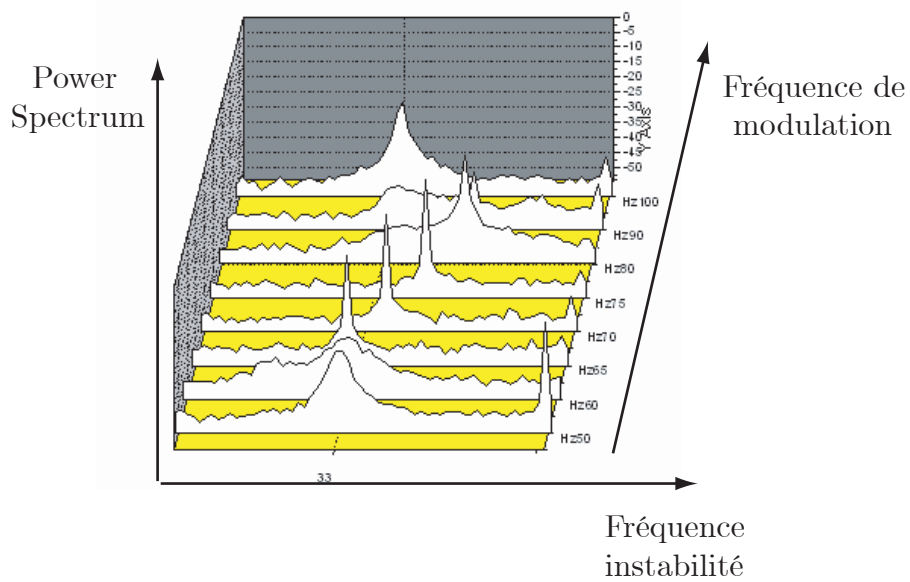


FIG. 2.13 – Spectre de l'instabilité. On montre un accrochage en fréquence lorsque l'on balaye l'excitation externe : les spectres correspondant aux fréquences de modulation 65 Hz à 80 Hz, ont chacun un pic plus fin en fréquence, dont la position est pilotée par la fréquence de modulation.

2.4.4 Publication : “Self-Sustained Oscillation in a large Magneto-Optical Trap”

Self-Sustained Oscillations in a Large Magneto-Optical Trap

G. Labeyrie, F. Michaud, and R. Kaiser

Institut Non Linéaire de Nice, UMR 6618, 1361 route des Lucioles, F-06560 Valbonne, France

(Received 24 February 2005; published 19 January 2006)

We have observed self-sustained radial oscillations in a large magneto-optical trap, containing up to 10^{10} Rb^{85} atoms. This instability is due to the competition between the confining force of the magneto-optical trap and the repulsive interaction associated with multiple scattering of light inside the cold atomic cloud. A simple analytical model allows us to formulate a criterion for the instability threshold, in fair agreement with our observations. This criterion shows that large numbers of trapped atoms $N > 10^9$ are required to observe this unstable behavior.

DOI: [10.1103/PhysRevLett.96.023003](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.96.023003)

PACS numbers: 32.80.Pj, 42.50.Vk, 52.35.-g

A large fraction of the stars in the upper Hertzsprung-Russell diagram present pulsations based on an interplay between modulated radiation pressure effects, which tends to increase the size of the star, and a collapse based on gravitational forces [1]. Instabilities also occur in other similar systems such as confined plasmas where a long-range Coulomb interaction has to be countered by a confining force to avoid an explosion of the plasma [2]. These systems are of fundamental importance for astrophysics and for controlled fusion and have thus been extensively studied in the past. However, it is either impossible (in the case of stars) or extremely difficult (in the case of confined plasmas) to perform experiments to study the full dynamics of such systems where collective effects play a dominant role. On the other side, allowing for adequate rescaling, alternative systems can present similar dynamics. A variety of interesting collective effects have thus been identified in charged colloidal systems [3]. Recently ultracold plasmas created by ionizing a cloud of laser cooled atoms became subject to increased attention [4]. Beyond the possibility of studying analogous effects as in astro and plasma physics, systems with long-range interactions are known to lead to nonextensive behavior and appropriate scaling laws are needed to predict macroscopic properties. Here we show that a large cloud of laser cooled atoms is an adequate system to study such collective effects. The radiation pressure of the multiply scattered photons in such clouds can indeed be related to a long-range Coulomb-type interaction [5]. We thus suggest an analogy between the dynamics of a large cloud of cold atoms, astrophysical systems, and plasma physics.

The effect of multiple scattering on the dynamics of the atoms is well known in the community of laser cooling of atoms, as multiple scattering has been a major limitation to obtain large phase space densities in cold atomic traps. Bose-Einstein condensation (BEC) in dilute atomic vapors has only been achieved after switching off all laser fields and using evaporation techniques [6]. More recently, multiple scattering of light in cold atoms has been used to study coherent light transport in random media [7]. This has led

to an investigation of yet unexplored regimes, namely, the limit of very large number of cold atoms in the presence of quasisonant light. Here we do not focus on the properties of the scattered light but on the mechanical effects of this light on the atoms. We have observed collective instabilities triggered by the repulsive interatomic force arising from multiple scattering, and identified a supercritical Hopf bifurcation separating the standard stable magneto-optical trap (MOT) operation from a yet undescribed unstable regime.

In order to estimate the relevance of plasma physics considerations to study multiple scattering of light by cold atoms it is worth deriving the equivalent of several plasma parameters for our system. The analogy with an $1/r^2$ repulsive Coulomb-type force [5] is obtained from evaluating the power scattered by one atom (P_{scatt}) and deriving the intensity I_2 incident on a second atom via $I_2 \propto P_{\text{scatt}}/(4\pi r^2)$. The resulting radiation pressure force scales as $1/r^2$ and one can thus define an effective charge \tilde{q} which depends on the absorption cross sections and laser intensity and is typically $\tilde{q} \approx 10^{-4}e$ [5]. A total interaction energy $\tilde{q}V = \frac{N\tilde{q}^2}{4\pi\epsilon_0 R}$ larger than the kinetic energy $k_B T$ of the particles leads to an increased diameter $L = 2R$ of the MOT when the number N of atoms exceeds $\approx 10^5$.

Alternatively the Debye length $\lambda_D = \sqrt{\epsilon_0 k_B T / n \tilde{q}^2}$ above which collective effects become important is of the order of $100 \mu\text{m}$, well below the typical size of a large MOT (several mm). Also, in our experiments the corresponding plasma frequency $\omega_D = \sqrt{n \tilde{q}^2 / m \epsilon_0}$ is slightly larger (≈ 200 Hz) than the relaxation rate of the atomic positions (≈ 50 Hz). We thus expect our cloud to behave as a weakly damped plasma. Another interesting quantity is the ratio between the nearest neighbor Coulomb interaction and the kinetic energy $\Gamma_{\text{Cb}} = \frac{\tilde{q}^2}{4\pi\epsilon_0 a} / k_B T$ with $a \approx n^{-1/3}$ [8]. We estimate this quantity to be smaller than unity in our system, excluding thus any crystallization. An important aspect of these light induced collective interactions is that the effective charge \tilde{q} depends on experimental control parameters, allowing for an engineering of the effective

charge which can be modified by orders of magnitude. Finally it might be possible to use the high phase space densities of a BEC and thus study strongly coupled plasma in the degenerate regime [9] as expected in neutron stars and white dwarfs [10].

Our cloud of cold atoms is confined in a MOT using laser-induced forces [11]. We collect Rb⁸⁵ atoms from a dilute vapor using six large *independent* laser beams (beam waist 4 cm, power per beam $P = 30$ mW) thus avoiding the intensity imbalance and feedback mechanism responsible for the instability of Ref. [12]. Under standard operating conditions, the trapping lasers are detuned from the $F = 3 \rightarrow F' = 4$ transition of the $D2$ line by $\delta = -3\Gamma$ ($\Gamma/2\pi = 6$ MHz). A magnetic field gradient ($\nabla B \approx 10$ G/cm) is applied to generate a spatially dependent Zeeman shift yielding the restoring force of the trap. A repumping laser on the $F = 2 \rightarrow F' = 3$ of the $D2$ line is used to control the total number of atoms. We thus obtain a MOT with up to $N = 10^{10}$ atoms (diameter $L = 5$ mm, $T = 80$ μ K) [13]. The size and shape of the cloud is monitored by imaging the MOTs fluorescence on a cooled CCD. The optical thickness b of the cloud at the trapping laser frequency is measured by a photodiode. To obtain a time-resolved information on the local density of the MOT, we also image a portion of the cloud on another photodiode.

Figure 1 illustrates the onset of spontaneous self-sustained oscillation for a sufficiently large number of atoms. We switched on the MOT at $t = 0$ and monitored the time evolution of the fluorescence from a portion of the MOT. This partial fluorescence signal is roughly describing the number of atoms in the observed region. Starting from $N = 0$ at $t = 0$, the trap fills with a time constant $\tau = 1.45$ s determined by the ambient Rb pressure. Below a

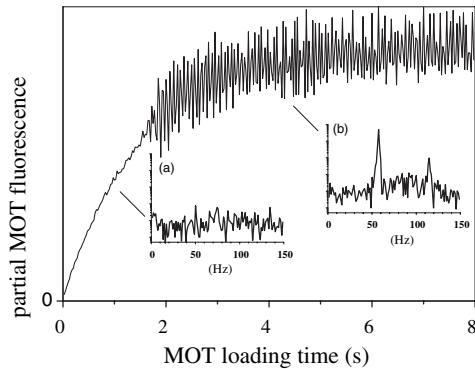


FIG. 1. Fluorescence of part of the MOT during a loading sequence. Below a critical number of atoms N_{th} , the size of the atom cloud increases without specific dynamical behavior. Above the threshold N_{th} the cloud switches to an unstable mode characterized by periodic oscillations in the partial fluorescence signal. Insets: Fourier transform of signal, with (a) a flat noise in the stable regime and (b) distinct oscillations in the unstable regime.

critical number of atoms N_{th} , the size of the atom cloud increases with number of trapped atoms [14] but no specific dynamical behavior is observed. Above the threshold N_{th} the cloud switches to an unstable behavior characterized by periodic oscillations in the partial fluorescence signal. These radial oscillations of the cloud are self-sustained in the sense that no external modulation of any control parameter is present.

In the insets of Fig. 1 are shown Fourier transforms of the partial fluorescence. Below the instability threshold [inset (a)] a flat noise background is obtained. In contrast, in an unstable MOT, obtained for a larger number of atoms, distinct oscillation frequencies [inset (b)] appear, with higher harmonic components indicating the nonharmonic oscillation of the signal.

Indeed, the dynamics in the unstable regime can be more complex than a harmonic oscillation, as further illustrated in Fig. 2 where we detect the fluorescence from the center of the MOT. A high contrast modulation of the center fluorescence is observed in this experiment. We can speculate that the fast phase of decrease of the signal corresponds to a MOT expansion (decreased density at the center), whereas we associate the increasing part of the fluorescence to a slower compression phase. We observed that the precise shape of this oscillation depends on the laser beam alignment and on the monitored region of the MOT. However, the threshold separating the stable from the unstable regime was found to be very robust with respect to trap parameters.

Investigating the MOT at the instability threshold by varying 2 of the control parameters of the experiment (detuning, magnetic field gradient), we can map the phase diagram shown in Fig. 3 (full squares). The solid line corresponds to the theoretical prediction presented at the end of this Letter. As can be seen, the overall behavior is unstable when the trapping laser frequency is brought within roughly one natural width from resonance. This critical detuning depends here rather weakly on the mag-

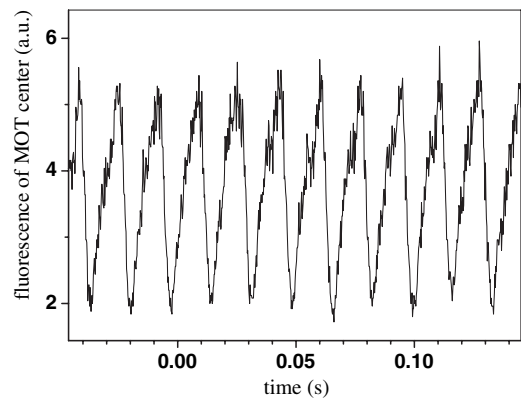


FIG. 2. Fluorescence of the MOT center. In the unstable regime, periodic oscillations appear in the absence of external modulations.

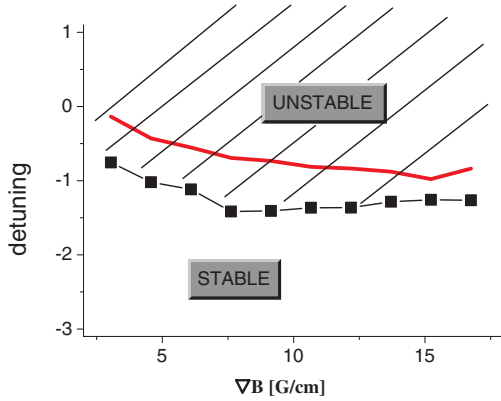


FIG. 3 (color online). Phase diagram of self-sustained oscillation: a $(\delta/\Gamma, \nabla B)$ cut in parameter space shows the separation between the stable (for larger detuning δ) and the unstable regime: experimental threshold values (squares) and 1-zone model prediction (solid line).

netic field gradient. However, the measured cloud size and number of atoms do vary quite a bit during this experiment (a factor 5 for N and a factor 2 for L). In addition, we systematically found an optical thickness $b \approx 1$ at the instability threshold. However, this is clearly not a sufficient condition for the onset of instabilities, since $b \approx 1$ is also observed in the stable region of Fig. 3.

We also carefully monitored the fluctuations of the total number of atoms when the MOT operates in the unstable regime, as, e.g., for the data in Fig. 2. We found these to be below 2%, as in the stable regime. This indicates that, for a given set of MOT parameters, the unstable cloud oscillates at fixed N .

To further characterize the transition to instability, we have checked that the amplitude of the oscillation continuously grows from zero as the control parameter (detuning or number of atoms in the experiments performed) crosses the threshold value. A Fourier analysis of the signal across the threshold showed that the instability starts at a nonzero frequency, which is closely related to the natural oscillation frequency of the harmonic trap. Furthermore, no hysteresis was observed despite explicit investigation. All these findings are consistent with a supercritical Hopf bifurcation.

Already in the stable regime, we observed some clear indications that strongly increasing the number of trapped atoms affects the way the MOT operates. As it is well known, the MOT inflates when atoms are added as a consequence of multiple scattering of light [5]. In addition to the standard $L \propto N^{1/3}$ law [5], we found for large number of atoms $N > 10^9$ a different scaling $L \propto N^{1/2}$ [14,15]. By monitoring the relaxation of the MOT after displacing it from its equilibrium position, we observed a crossover from an over-damped behavior at small N (typical for usual MOTs) to an under-damped behavior at large N . We interpret this finding as a consequence of the attenuation of the trapping beams inside the cloud, which

reduces the friction at the center of the cloud. This could be envisioned as a precursor to the instability. Indeed, we found that just below the threshold (i.e., in stable operation), the MOT is systematically in the under-damped regime.

To explain the apparition of this new instability, we developed a simple model where the screened compression force of the MOT is competing against the repulsive interaction due to multiple scattering of light inside the cloud. We stress that this instability is thus qualitatively different from that studied in Ref. [12], where the use of retro-reflected beams introduces the feedback necessary for the instability. The instability process of Ref. [12], which manifests as oscillations of the center-of-mass of the MOT, does not involve the long-range interatomic interactions which drives the behavior of our large MOT.

We propose in the following a very simple 1-zone model which exhibits an instability threshold. This model amounts to an extremely simplified mean field theory, based, however, on microscopic expressions for the light forces acting on the atoms. A more refined approach, beyond the scope of this Letter, could, e.g., involve hydrodynamical approximations [16].

We assume an homogeneous density and the size of the cloud L is related to the density n via the total number of atoms N : $n = N/L^3$. The dynamics along one symmetry axis (Ox) of a probe particle located outside of the cloud (at position $x > R = L/2$ from the trap center, with a velocity v) is then governed by the force:

$$F(x, v) = \frac{\hbar k \Gamma}{2} s_{\text{inc}} \frac{e^{-b}}{1 + \frac{4(\delta - \mu x - kv)^2}{\Gamma^2}} - \frac{\hbar k \Gamma}{2} s_{\text{inc}} \frac{1}{1 + \frac{4(\delta + \mu x + kv)^2}{\Gamma^2}} + \eta \frac{\hbar k \Gamma}{2} s_{\text{inc}} \frac{1}{1 + \frac{4\delta^2}{\Gamma^2}} (1 - e^{-b}) \left(\frac{R}{x}\right)^2. \quad (1)$$

This expression relies on the low intensity Doppler model for the magneto-optical force (incident on-resonance saturation parameter s_{inc}). The first term in this expression is the attenuated force of the laser passed through the cloud (with the corresponding Zeeman shift μx and Doppler shift kv); the second term corresponds to the nonattenuated force of the laser propagating in the opposite direction. In absence of the e^{-b} attenuation, these two terms give rise to the standard cooling (via the opposite Doppler terms kv) and trapping (via the opposite Zeeman terms μx) of cold atoms. The last term is the sum of all binary repulsive interactions which, using Gauss theorem, yields an $1/r^2$ repulsion for a probe particle outside the cloud. This term can be understood as the radiation pressure originating from the MOT with a total radiated power corresponding to attenuation of the 6 laser beams. Here η corresponds to the ratio between the absorption cross section of the inci-

dent laser frequency and the inelastically rescattered photons [5]. We now apply this model at the edge of the cloud ($x = R$). A linear stability analysis, using $x = R + \delta x e^{i\omega t}$ around the fixed point $F(R, v = 0) = 0$, yields the threshold condition for an instability ($\text{Im}(\omega) = 0$):

$$C(\delta, \mu, b, R) = e^{-b} \frac{\delta - \mu R}{1 + \frac{4(\delta - \mu R)^2}{\Gamma^2}} + \frac{\delta + \mu R}{1 + \frac{4(\delta + \mu R)^2}{\Gamma^2}} = 0. \quad (2)$$

We find that for our experimental parameters the threshold is given with a good approximation by:

$$\delta + \mu R \approx 0. \quad (3)$$

It should be stressed that in standard MOTs one usually has $\mu R \ll |\delta|$: for $|\delta| = \Gamma$ and a magnetic field gradient $\nabla B = 10$ G/cm, condition (3) implies a MOT diameter of 8 mm. It is only with N in the 10^{10} range that such MOT sizes can be obtained. In this regime, the edge of the cloud is now exploring the nonlinear part of the magneto-optical force. It can be shown from the expression of the force that the threshold condition (3) corresponds to the passage from a positive to a negative friction at the edge of the cloud. Thus, a small velocity fluctuation is amplified instead of damped and the atoms at the edge are kicked away from the center of the cloud. The cloud thus expands until its optical thickness drops below a certain level, where the MOT is back to its standard mode of operation (weak repulsion) and the atoms are pushed back toward the center.

In order to further confront our simple model to the experiment, we computed the threshold value of the detuning δ using the control parameter ∇B and the measured values of the size of the cloud R and its optical thickness b at threshold. The result corresponds to the solid line in Fig. 3 and gives the correct order of magnitude and behavior for the instability threshold. This gives us further confidence about the qualitative validity of our model, as the size of the cloud varies by more than a factor 2 along the threshold boundary. Furthermore, both the threshold criterion (3) and the simple picture of the unstable dynamics near threshold are confirmed by recent results from a more involved model [17], which includes the inhomogeneous density distribution inside the cloud (N -zone model).

We have described in this Letter the observation of self-sustained oscillation in a large cloud of laser cooled atoms, arising from the competition between the MOT's confining force and the long-range multiple scattering repulsive interaction. This new instability process affects the behavior of large MOTs containing more than 10^9 atoms, a regime increasingly found, e.g., in experimental setups producing BECs. This observation shows that large clouds of cold atoms still present a rich dynamics with a variety of yet unexplored regimes. A simple 1-zone model has been presented which allows us to predict the instability threshold and to understand the underlying physical mechanism.

Future possible investigations include the forced oscillation regime, the spectroscopy of excitation modes in this system, gas-liquid-crystal phase transitions in the degenerate regime, and feedback mechanisms allowing for stabilization of a large cloud of interacting particles. Progress on the theoretical aspects of the systems described in this Letter include exploiting mean field theory and molecular dynamic simulations. This should allow for a better understanding of the bifurcation observed in our experiment and lead to study statistical (thermodynamic) properties across the threshold. If the degenerate regime could be reached (or inducing similar interactions in a Bose-Einstein condensate) a mean field theory based on binary collisions as in usual Gross Pitaevskii equations will not be valid due to the long-range interaction, connecting this system to strongly correlated quantum systems.

We thank L. Gil, Ph. Mathias, D. Wilkowski, S. Balle, F. Bouchet, B. Cessac, and Y. Elskens for insightful conversations and E. Vaujour and M. Renaudat for help at various stages of the experiment. We acknowledge financial support by CNRS and PACA region.

-
- [1] J.P. Cox, *Theory of Stellar Pulsation* (Princeton University Press, Princeton, New Jersey, 1980).
 - [2] M.P. Evrard *et al.*, *Plasma Phys.* **21**, 999 (1979).
 - [3] J.-P. Hansen, I.R. McDonald, and E.L. Pollock, *Phys. Rev. A* **11**, 1025 (1975).
 - [4] C.E. Simien *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 143001 (2004).
 - [5] T. Walker, D. Sesko, and C. Wieman, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 408 (1990).
 - [6] M.H. Anderson *et al.*, *Science* **269**, 198 (1995); K.B. Davis *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 3969 (1995); C.C. Bradley, C.A. Sackett, J.J. Tollett, and R.G. Hulet, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 1687 (1995).
 - [7] G. Labeyrie *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 5266 (1999).
 - [8] E.L. Pollock and J.P. Hansen, *Phys. Rev. A* **8**, 3110 (1973).
 - [9] L. Foldy, *Phys. Rev.* **124**, 649 (1961).
 - [10] P. Jetzer, *Phys. Rep.* **220**, 163 (1992).
 - [11] S. Chu, *Rev. Mod. Phys.* **70**, 685 (1998); C. Cohen-Tannoudji, *Rev. Mod. Phys.* **70**, 707 (1998); W.D. Phillips, *Rev. Mod. Phys.* **70**, 721 (1998).
 - [12] D. Wilkowski, J. Ringot, D. Hennequin, and J.-C. Garreau, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 1839 (2000); A. di Stephano, P. Verkerk, and D. Hennequin, *Eur. Phys. J. D* **30**, 243 (2004).
 - [13] G. Labeyrie *et al.*, *Opt. Commun.* **243**, 157 (2004).
 - [14] K. Lindquist, M. Stephens, and C. Wieman, *Phys. Rev. A* **46**, 4082 (1992).
 - [15] The observed \sqrt{N} size dependence of large MOTs is not yet fully understood. Several physical ingredients could possibly yield such a variation: multiple scattering (beyond double scattering), nonlinear spatial dependence of the forces, or nonuniform atomic density.
 - [16] T. Pohl, T. Pattard, and J.M. Rost, *Phys. Rev. A* **70**, 033416 (2004).
 - [17] T. Pohl *et al.* (to be published).

2.5 Résumé

Dans ce chapitre nous avons décrit le milieu désordonné que nous allons utiliser dans les expériences de laser aléatoire : il s'agit d'une assemblée d'atomes de rubidium piégés dans un MOT. Le principe de piégeage est rappelé dans les parties (2.1) et (2.1.3) de ce chapitre. Nous sommes capables de piéger environ 10^{10} atomes et obtenir des densités de l'ordre de 10^{12} atomes/cm³. L'épaisseur optique du nuage est d'environ 40, et parvient à des valeurs de l'ordre de 100 grâce à divers procédés de compression [64]

Les propriétés de diffusion de la lumière par les atomes froids sont brièvement exposées dans le chapitre (1), partie (1.1.6). Nous sommes à même de mesurer toutes les grandeurs caractéristiques du piège, telles que l'épaisseur optique, et dans certaines conditions, le spectre de la lumière diffusée.

On devra dans notre cas prendre garde aux effets mécaniques exercés par la lumière sur les atomes, comme on l'a vu dans la dernière partie de ce chapitre.

Dans le chapitre suivant nous présenterons les techniques permettant de mettre du gain dans le nuage d'atomes, première étape vers la réalisation d'un laser avec les atomes froids.

Mécanismes de gain dans un nuage d'atomes froids

Les vapeurs atomiques sont des milieux bien connus pour posséder une forte non linéarité dans l'interaction atomes-rayonnement. L'étude par **spectroscopie pompe-sonde** des vapeurs atomiques chaudes est néanmoins limitée par l'effet Doppler et l'absorption du milieu. Le développement des pièges magnéto-optiques produisant des vapeurs atomiques refroidies a apporté de réelles avancées dans ce domaine au début des années 1990, permettant de réduire considérablement l'effet Doppler et ainsi donner à l'expérimentateur la possibilité de travailler avec des fréquences proches de la résonance atomique [81,82]. Cela a conduit très vite à de nombreuses découvertes comme l'observation d'effets Raman et Rayleigh stimulés dans le spectre de transmission d'une sonde [37,83,84].

C'est dans la continuité de ces recherches que nous nous servons des nombreuses possibilités d'optique non linéaire offertes par un gaz d'atomes froids, afin d'étudier plusieurs **mécanismes de gain**. On verra en effet, bien que les atomes de Rubidium ne possèdent pas une structure atomique classique comme milieu à gain¹, il existe plusieurs mécanismes de gain dans un atome à deux niveaux d'énergie².

On parlera de gain sur un faisceau **sonde**, lorsque par transmission dans le nuage d'atomes, ce dernier se voit amplifié, avec l'apport d'énergie se faisant par l'intermédiaire d'autres faisceaux lasers, appelés **pompes**.

On montrera que plusieurs processus, appelés **Rayleigh**³ (partie (3.3)) et **Raman** (partie (3.4)) stimulé, présentent des résonances possédant du gain [36,85,86]. On présentera les résultats des expériences que nous avons effectuées (partie (3.7)) dans divers schémas de polarisation pompe-sonde, afin de sélectionner différents mécanismes de gain. Nous avons observé dans certaines conditions jusqu'à 300% de gain, grâce à un nuage d'atomes froids possédant une grande épaisseur optique et des pompes de fortes intensités.

On inclura à cette partie l'étude du **mélange dégénéré et non dégénéré à quatre ondes** (partie (3.5)), autres exemples de spectroscopie pompe-sonde,

¹Structure à trois ou quatre niveaux d'énergie (Fig. 3.16, comme par exemple Nd-YAG (solide), He-Ne (gaz), Rhodamine 6G (liquide)).

²et possédant une sous-structure Zeeman.

³Appelé aussi Mollow par la suite.

nécessitant deux faisceaux pompes rétroalignés sur le nuage d'atomes, afin de reproduire un mécanisme de conjugaison de phase [87, 88]. Cette configuration permet de produire un faisceau conjugué, par réflexion du faisceau sonde sur un réseau d'indice induit dans le nuage. Nous serons ainsi à même de caractériser à la fois la transmission et la réflexion d'une sonde sur le nuage d'atomes froids pompé. On mentionnera également un autre processus de gain, appelé **Résonance Induite par Recul** (RIR) [89–91], (partie (3.6)).

Nous débuterons ce chapitre en présentant de manière générale les mécanismes de gain d'un laser classique afin de définir plusieurs notions utiles par la suite. Puis dans une partie théorique, nous présenterons le calcul la polarisabilité diélectrique α_{at} du milieu : on montrera que l'absorption, ou le gain du milieu, est en effet relié à la partie imaginaire de la polarisabilité.

Contrairement au modèles de gain bien connus des milieux amplificateurs laser à 4 niveaux d'énergie, on montrera qu'un modèle simple d'atomes à deux niveaux d'énergie permet d'expliquer l'existence de résonances conduisant à l'amplification du faisceau sonde. Puis, l'étude d'un atome à deux niveaux d'énergie possédant une sous structure Zeeman, sera nécessaire afin d'expliquer d'autre processus de gain intervenant dans le nuage d'atomes froids, comme le gain Raman, dont la largeur des résonances est en générale très inférieure à la largeur naturelle du niveau excité, impliquant une transition à plusieurs photons. De même, le mécanisme du mélange à quatre ondes dans le cas où les pompes et la sonde ont une polarisation croisée, nécessite une description à multiple niveaux d'énergie.

Bien que ce chapitre soit consacré au calcul de la lumière transmise dans le nuage d'atomes dans le mode cohérent, le calcul de la polarisabilité diélectrique nous donnera également le comportement de la lumière diffusée⁴ par les atomes. Cet aspect nous sera très utile dans l'étude future du laser aléatoire, qui nécessite la bonne combinaison entre le gain et la diffusion de la lumière. C'est pourquoi parallèlement au calcul du spectre de transmission dans les différents modèles physiques envisagés, on calculera le spectre de la lumière diffusée par le nuage d'atomes.

3.1 Mécanisme de gain dans un laser classique : généralités

Dans cette partie on présentera rapidement quelques rappels de base sur le fonctionnement d'un laser classique, composé d'une une cavité résonante placée

⁴On montrera que la lumière diffusée est proportionnelle au module carré de la polarisabilité diélectrique.

autour d'un milieu amplificateur (Fig. 3.1). On rappellera le critère de seuil laser en fonction du gain et des pertes du système. On verra ensuite comment on exprime le gain lors du passage dans le milieu amplificateur à partir d'une grandeur appelée **susceptibilité diélectrique**.

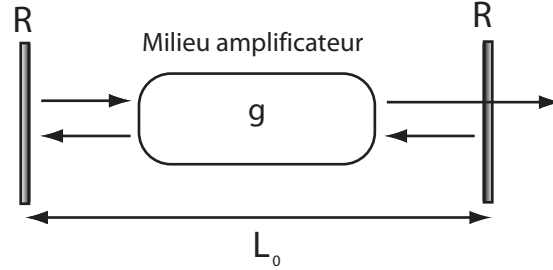


FIG. 3.1 – Cavity d'amplification linéaire. Les miroirs ont un coefficient de réflexion de valeur R et la cavity est de longueur L_0 .

3.1.1 Milieu laser et pompage

On suppose un milieu amplificateur dans lequel on peut produire un gain par simple passage lorsque ce dernier est soumis à un rayonnement pompe adapté. La cavity sert de boucle de rétroaction afin que l'onde traverse un grand nombre de fois le milieu amplificateur afin d'amplifier l'onde de manière cohérente. En prenant une cavity dont les miroirs ont un coefficient de transmission en intensité $\mathcal{T}(= 1 - R)$ et en notant \mathcal{A} toutes pertes supplémentaires⁵, en notant $\mathcal{L} = \mathcal{T} + \mathcal{A}$ les pertes totales, on obtient la condition d'oscillation laser pour :

$$g^2 (1 - \mathcal{L}) > 1 \quad (3.1)$$

La valeur de l'amplification dans un milieu de longueur L est donnée par $\mathcal{G} = e^{gL}$ où g est le gain linéique en intensité, et par unité de longueur. Une onde incidente notée I_{inc} après transmission dans le milieu s'écrit en transmission :

$$I_{trans} = I_{inc} e^{gL} \quad (3.2)$$

Nous verrons que pour une onde de pulsation ω , le gain g peut s'écrire

$$g = -\chi''(\omega) \frac{\omega}{c} \quad (3.3)$$

avec χ'' est la partie imaginaire de χ appelé **susceptibilité diélectrique** du milieu ($\chi = \chi' + i\chi''$). La susceptibilité décrit le comportement macroscopique

⁵Absorption du matériau, pertes par diffusion hors de la cavity

d'une assemblée d'atomes, et est directement proportionnelle à la polarisabilité diélectrique α_{at} ⁶ de chaque atome par la relation :

$$\chi = n \alpha_{at} \quad (3.4)$$

où n est la densité d'atomes dans le nuage. Cette expression suppose que chaque atome se comporte de manière identique, ce qui n'est pas forcément vrai dans un nuage d'atomes à grande épaisseur optique où, par exemple, les faisceaux pompes sont écrantés.

Notons que l'on peut relier la partie réelle χ' de la susceptibilité, à la partie imaginaire χ'' , via les relations de dispersion de **Kramers-Kronig**, données ci-dessous :

$$\chi'(\omega) = 1 + \frac{2}{\pi} \int_0^\infty \frac{\nu \chi''(\nu)}{\nu^2 - \omega^2} d\nu \quad (3.5)$$

$$\chi''(\omega) = -\frac{2\omega}{\pi} \int_0^\infty \frac{\chi'(\nu)}{\nu^2 - \omega^2} d\nu \quad (3.6)$$

On peut montrer qu'il est possible de mettre χ sous la forme [51] :

$$\chi = \chi_1 \frac{N_b - N_a}{N} \quad (3.7)$$

On a ici supposé la possibilité d'une inversion de population en régime stationnaire, où N_b (resp N_a) représente le nombre d'atomes dans l'état excité (resp fondamental), et N le nombre total d'atomes. $\frac{N_b - N_a}{N}$ est la valeur relative de l'inversion de population. Lorsque l'on pompe le milieu, la population du niveau excité N_b devient supérieure à celle du niveau fondamental N_a , et c'est ce qui est à l'origine de l'amplification : d'après (3.7) et (3.3), on obtient $g > 0$.

Le fait d'utiliser une cavité impose une condition de phase à respecter. A cause d'effets interférentiels, les seules fréquences se propageant dans la cavité sont celles qui respectent la relation⁷

$$\frac{\omega}{2\pi} = p \frac{c}{L} \quad (3.8)$$

où p est un nombre entier positif. Une multitude de fréquences ont donc la possibilité d'être amplifiées dans la cavité, pourvu qu'elles soient contenues dans la courbe de gain du milieu amplificateur (Fig. 3.2). Ces modes lasers longitudinaux peuvent entrer en compétition, et osciller simultanément dans la cavité.

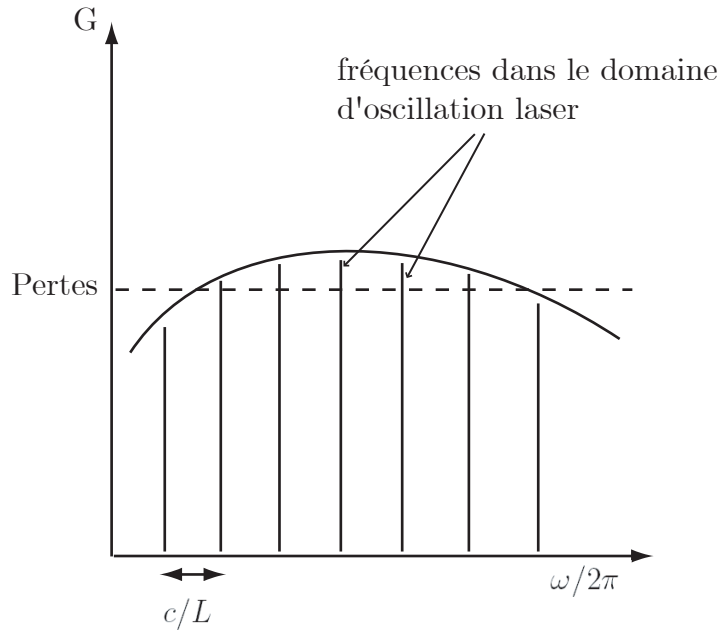


FIG. 3.2 – Fréquences d'oscillation du laser imposées par les caractéristiques de la cavité de longueur $L_0 = L/2$ et par la courbe de gain. La distance entre chaque fréquence d'oscillation est appelée *intervalle spectral libre (ISL)*.

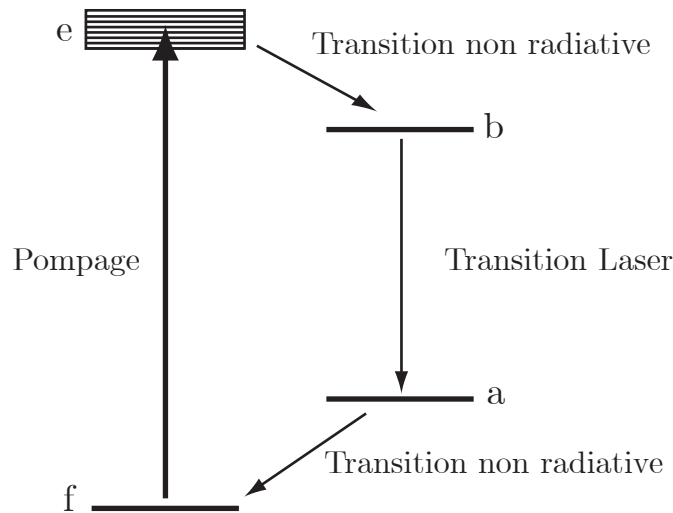


FIG. 3.3 – Schéma des niveaux d'énergie servant à modéliser un milieu amplificateur : mécanisme de pompage et émission laser. Ce schéma est nécessaire afin d'obtenir une réelle inversion de population entre les niveaux a et b permettant le gain.

3.1.2 Amplification laser

On rapporte ici le modèle usuel pour décrire la dynamique d'un laser. Le modèle le plus générique pour expliquer l'amplification laser est une inversion de population dans un système à quatre niveaux (Fig. 3.3). Quatre niveaux sont en effet nécessaires pour séparer le mécanisme de pompage de la transition laser. La transition radiative doit être lente comparée aux mécanismes de relaxation, afin de ne pas converger vers un état où les populations s'équilibrent, d'où la perte de l'effet produisant le gain. C'est le cas de la plupart des systèmes laser avec des cristaux amplificateurs : Nd :YAG, Rubis, etc...

A titre d'exemple, on donne les équations cinétiques, ou équations de pompage (en l'absence d'effet laser), pour les populations des niveaux d'énergie dans le cas d'un atome à quatre niveaux (pour transposer à un atome à deux niveaux d'énergie on prend les niveaux a et e, ainsi que b et f, identiques) [51].

$$\begin{aligned}
 \frac{d}{dt}N_e &= w(N_f - N_e) - \frac{N_e}{\tau_e} \\
 \frac{d}{dt}N_b &= \frac{N_e}{\tau_e} - \frac{N_b}{\tau_b} \\
 \frac{d}{dt}N_a &= \frac{N_b}{\tau_b} - \frac{N_a}{\tau_a} \\
 N_a + N_b + N_e + N_f &= N
 \end{aligned}
 \tag{3.9}$$

où w est le taux de pompage par unité de temps, et τ_i ($i = a, b, e, f$) sont les durées de vie des niveaux, avec pour hypothèse $\tau_e, \tau_a \ll \tau_b$.

En régime stationnaire on peut donner l'expression de l'inversion de population :

$$\frac{N_b - N_a}{N} = \frac{w\tau_b}{w\tau_b + 1}
 \tag{3.10}$$

Les atomes de Rubidium ont une structure atomique ne permettant pas de reproduire la structure classique à quatre niveaux d'énergie. Néanmoins, on verra dans les parties suivantes que l'on peut obtenir une inversion de population en régime stationnaire avec un atome à deux niveaux. Dans le chapitre 4, on fera la démonstration expérimentale d'un laser continu à atomes froids, fonctionnant avec différents mécanismes de gain, dont en particulier, le gain Mollow, qui est décrit par un modèle d'atome à deux niveaux d'énergie.

On conclut de cette partie que nous devons savoir formaliser l'interaction entre une onde et un système à au moins deux niveaux d'énergie, afin de pouvoir expliquer l'inversion de population produisant du gain. On verra dans la partie

⁶Son expression sera donnée par la relation (3.39) dans le cas d'un atome à deux niveaux d'énergie

⁷Dans le cas le plus simple où l'on considère une onde plane dans une cavité plan-plan.

suivante qu'un modèle d'atome à deux niveaux d'énergie permet en premier lieu d'expliquer bon nombre de phénomènes de diffusion et d'amplification. En effet, on peut produire du gain sans avoir recours à une inversion de population. Divers exemples sont connus et utilisés, tel que l'EIT (Electromagnetic-Induced Transparency) [92–94].

3.2 Formalisation de l'interaction résonante matière-lumière : les équations de Bloch optiques

Cette partie théorique est consacrée à la description de l'interaction entre un faisceau laser et un gaz d'atomes refroidis. Le couplage entre un atome et un laser est formalisé par un ensemble d'équations appelées équations de **Bloch optique** [50]. Elles décrivent l'évolution temporelle des variables internes des atomes (population des niveaux atomiques et cohérences optiques). Dans cette partie, on établira de manière générale les équations de Bloch optique, et dans le paragraphe qui suit, on appliquera les résultats au cas d'atomes à deux niveaux d'énergie.

3.2.1 Hamiltonien du système atome et champ

On considère dans une approche semi-classique⁸, un atome au repos dont l'hamiltonien s'écrit de manière générale :

$$\mathbf{H}_{at} = \hbar \sum_i \omega_i |i\rangle \langle i| \quad (3.11)$$

Dans l'approximation dipolaire⁹, on peut écrire l'hamiltonien de couplage atome laser de la manière suivante :

$$\mathbf{V}_{AL} = \mathbf{D} E_L = \sum_{i \neq j} d_{ij} |i\rangle \langle j| E_L \quad (3.12)$$

où \mathbf{D} est l'opérateur dipolaire électrique ($\mathbf{D} = q\mathbf{r}$), et E_L l'amplitude du champ électromagnétique.

La théorie semi-classique ne prenant pas en compte le phénomène d'émission spontanée, on introduira un autre opérateur, noté $\{\mathbf{H}'\}$, décrivant l'effet de l'émission spontanée sur le système.

⁸Le champ électromagnétique n'est pas quantifié.

⁹On étudie le champ créé par le dipôle à grande distance, comparée aux dimensions du dipôle.

3.2.2 Matrice densité

La matrice densité ρ contient toutes les informations sur les variables internes de l'atome : ses éléments diagonaux ρ_{ii} représentent les populations des différents niveaux d'énergie de l'atome, et les éléments non diagonaux ρ_{ij} représentent les cohérences hertziennes et optiques entre les niveaux d'énergie. L'évolution de la matrice densité dans le temps suit l'équation de Schrödinger :

$$i\hbar \frac{d}{dt} \rho = [\mathbf{H}, \rho] + \{\mathbf{H}'\} \quad (3.13)$$

avec

$$\mathbf{H} = \mathbf{H}_{at} + \mathbf{V}_{AL} \quad (3.14)$$

Cet ensemble d'équations donne ce que l'on appelle les équations de Bloch optique.

3.2.3 Approximation du champ tournant et décomposition harmonique dans l'espace de Fourier

Résoudre directement les équations de Bloch optique, dans le cas où l'atome est soumis à un champ électromagnétique polychromatique est un problème complexe. On a donc recours à plusieurs approximations. Une première approximation, appelée **approximation du champ tournant**, consiste à se placer dans le référentiel qui suit les oscillations du champ électromagnétique. Par exemple, si le champ oscillant à la fréquence ω pilote le dipole atomique, on effectuera le changement de variable suivant pour les cohérences optiques :

$$\tilde{\rho}_{ij} = \rho_{ij} e^{i\omega t}$$

Dans le cas d'une onde monochromatique, on peut ainsi procéder à l'élimination adiabatique des variables rapides, c'est à dire négliger les termes non-résonants à la fréquence ω . On peut alors faire disparaître les coefficients dépendant du temps dans les équations de Bloch optique. Par contre, si l'atome est soumis à plusieurs ondes de fréquences différentes (onde pompe et sonde par exemple), il n'existe plus de changement de variables permettant d'utiliser cette technique. Il faudra effectuer une décomposition, appelée décomposition de Floquet [95] du type :

$$\tilde{\rho} = \sum_n \rho^{(n)} e^{in\delta t} e^{i\omega_P t} \quad (3.15)$$

avec n varie de $-\infty$ à $+\infty$, ω_P est la fréquence de la pompe, et δ est défini par l'écart de fréquence entre l'onde pompe et sonde. En effet, les fréquences mises en jeu dans le système seront toutes des combinaisons des fréquences pompe et sonde, pouvant s'écrire comme des multiples de δ .

Dans la suite de ce chapitre, on appliquera cette méthode de résolution dans le cas concret d'un atome à deux niveaux d'énergie. On commencera par le cas où l'atome n'est soumis qu'à un seul champ électromagnétique, ce qui nous permettra de définir les grandeurs relatives au couplage atome-laser telle que **la pulsation de Rabi**, et la **polarisabilité diélectrique**. On traitera ensuite le cas où l'atome est soumis à deux champs, pompe et sonde, de fréquences différentes. Ici on distinguera deux méthodes de résolution : calcul semblable à celui de la première partie, où la sonde sera traitée perturbativement, puis calcul exact avec méthode de résolution numérique. Le but de cette partie sera de montrer qu'un atome à deux niveaux d'énergie soumis à une onde pompe, peut produire du **gain** sur un faisceau sonde.

3.3 Atomes à deux niveaux d'énergie

On considère un atome possédant deux niveaux d'énergie, fondamental et excité. La polarisation des champs n'intervient donc pas dans cette partie, et on ne raisonnera qu'avec des grandeurs scalaires. Dans la première partie de ce paragraphe, on calculera à partir des équations de Bloch optique la polarisabilité diélectrique, permettant ensuite de calculer la transmission et la diffusion d'une onde par un atome. Ensuite on effectuera le calcul pour un atome soumis à deux faisceaux, pompe et sonde, de fréquences différentes. On verra que l'on peut montrer l'existence de gain sur le faisceau sonde, appelé gain Mollow.

3.3.1 Cas d'un atome soumis à une onde monochromatique

3.3.1.1 Equations de Bloch optique

Considérons un atome à deux niveaux d'énergie $|a\rangle$ et $|b\rangle$ au repos (Fig. 3.4). On définit l'énergie du niveau fondamental $E_a = 0$ et l'énergie du niveau excité $E_b = E_0 + \hbar\omega_{at}$. L'atome est éclairé par un faisceau laser de pulsation ω s'écrivant :

$$E_L = E_0 \cos(\omega t) \quad (3.16)$$

L'hamiltonien de l'atome s'écrit d'après (3.11) :

$$\mathbf{H}_{at} = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & \hbar\omega_{at} \end{pmatrix} \quad (3.17)$$

et l'hamiltonien de couplage de l'atome avec le laser s'écrit d'après (3.12) :

$$\mathbf{V}_{AL} = \begin{pmatrix} 0 & d_{ab} \\ d_{ab} & 0 \end{pmatrix} \cdot E_L \quad (3.18)$$

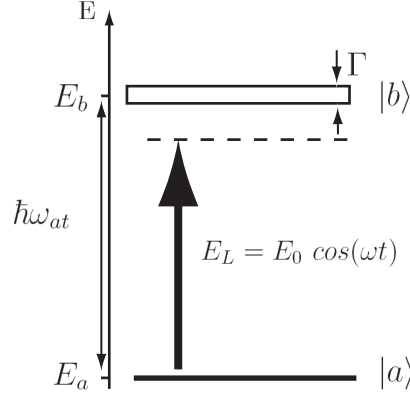


FIG. 3.4 – Atome à 2 niveaux d'énergie. Γ est la largeur naturelle de l'état excité, $1/\Gamma$ est appelé durée de vie de l'état excité.

où d_{ab} est l'élément de matrice de l'opérateur dipolaire électrique \mathbf{D} couplant les niveaux $|a\rangle$ et $|b\rangle$. On définit la matrice densité de la manière suivante :

$$\rho = \begin{pmatrix} \rho_{aa} & \rho_{ba} \\ \rho_{ab} & \rho_{bb} \end{pmatrix} \quad (3.19)$$

ρ_{aa} et ρ_{bb} représente respectivement **les populations** des niveaux d'énergie $|a\rangle$ et $|b\rangle$, avec la condition :

$$\rho_{aa} + \rho_{bb} = 1 \quad (3.20)$$

ρ_{ab} et ρ_{ba} représentent **les cohérences optiques**¹⁰.

Nous devons ajouter un opérateur de relaxation \mathbf{H}' , qui traduit l'émission spontanée entre les niveaux. De manière générale, on écrit pour les populations et les cohérences [51] :

$$\left\{ \frac{d}{dt} \rho_{ii} \right\}_{relax} = - \left(\sum_{j \neq i} \Gamma_{i \rightarrow j} \right) \rho_{ii} + \sum_{j \neq i} \Gamma_{j \rightarrow i} \rho_{jj} \quad (3.21)$$

$$\left\{ \frac{d}{dt} \rho_{ij} \right\}_{relax} = -\gamma_{ij} \rho_{ij} \quad (3.22)$$

On peut alors injecter (3.17) et (3.18) dans l'équation (3.13). En ajoutant les termes de relaxation (3.21) et (3.22), où l'on pose $\Gamma_{a \rightarrow b} = \Gamma$ et $\gamma_{ab} = \Gamma/2$ [50].

¹⁰Notons que $\rho_{ba} = \rho_{ab}^*$.

On obtient alors les équations de Bloch optique pour un système fermé :

$$\begin{aligned}
\frac{d}{dt}\rho_{bb} &= i\Omega \cos(\omega t) (\rho_{ba} - \rho_{ab}) - \Gamma\rho_{bb} \\
\frac{d}{dt}\rho_{aa} &= -i\Omega \cos(\omega t) (\rho_{ba} - \rho_{ab}) + \Gamma\rho_{bb} \\
\frac{d}{dt}\rho_{ab} &= i\omega_{at}\rho_{ab} - i\Omega \cos(\omega t) (\rho_{bb} - \rho_{aa}) - \frac{\Gamma}{2}\rho_{ab} \\
\frac{d}{dt}\rho_{ba} &= -i\omega_{at}\rho_{ba} + i\Omega \cos(\omega t) (\rho_{bb} - \rho_{aa}) - \frac{\Gamma}{2}\rho_{ba}
\end{aligned} \tag{3.23}$$

On a dans les équations ci-dessus introduit la pulsation de Rabi :

$$\Omega = \frac{-d_{ab} E_L}{\hbar} \tag{3.24}$$

La pulsation de Rabi représente l'intensité du couplage entre l'atome et l'onde. L'onde fait précéder les populations des niveaux $|a\rangle$ et $|b\rangle$ à la fréquence Ω .

Afin de poursuivre le calcul, et résoudre chaque élément de la matrice densité en régime stationnaire, on procède à l'approximation du champ tournant. On se place dans la base tournante à la fréquence de l'onde qui pilote les cohérences optiques, en faisant le changement de variable suivant :

$$\tilde{\rho}_{ba} = \rho_{ba} e^{i\omega t} \tag{3.25}$$

et on pose $\tilde{\rho}_{aa} = \rho_{aa}$, et $\tilde{\rho}_{bb} = \rho_{bb}$, car on fait l'hypothèse que les populations sont des variables qui évoluent lentement par rapport à l'oscillation du champ.

Il est alors possible de faire disparaître les dépendances temporelles rapides dans des équations de Bloch optique en supprimant les termes antirésonants¹¹. On obtient alors les nouvelles équations :

$$\begin{aligned}
\frac{d}{dt}\tilde{\rho}_{bb} &= i\frac{\Omega}{2} (\tilde{\rho}_{ba} - \tilde{\rho}_{ab}) - \Gamma\tilde{\rho}_{bb} \\
\frac{d}{dt}\tilde{\rho}_{aa} &= -i\frac{\Omega}{2} (\tilde{\rho}_{ba} - \tilde{\rho}_{ab}) + \Gamma\tilde{\rho}_{bb} \\
\frac{d}{dt}\tilde{\rho}_{ab} &= -i\delta\tilde{\rho}_{ab} - i\frac{\Omega}{2} (\tilde{\rho}_{bb} - \tilde{\rho}_{aa}) - \frac{\Gamma}{2}\tilde{\rho}_{ab} \\
\frac{d}{dt}\tilde{\rho}_{ba} &= i\delta\tilde{\rho}_{ba} + i\frac{\Omega}{2} (\tilde{\rho}_{bb} - \tilde{\rho}_{aa}) - \frac{\Gamma}{2}\tilde{\rho}_{ba}
\end{aligned} \tag{3.26}$$

avec $\delta = \omega - \omega_{at}$ est le désaccord de l'onde avec la résonance atomique.

On peut facilement résoudre les équations (3.26) en régime stationnaire, et en utilisant (3.20), on obtient :

$$\tilde{\rho}_{bb} = \frac{1}{2} \frac{\Omega^2/2}{\delta^2 + \Omega^2/2 + \frac{\Gamma^2}{4}} \tag{3.27}$$

¹¹Typiquement les termes de fréquence 2ω , $2\omega_{at}$, et $\omega + \omega_{at}$

$$\tilde{\rho}_{ab} = i \frac{\Omega}{2} \frac{\Gamma/2 - i\delta}{\delta^2 + \Omega^2/2 + \frac{\Gamma^2}{4}} \quad (3.28)$$

et on obtient d'après (3.25) :

$$\tilde{\rho}_{ab}(t) = i \frac{\Omega}{2} \frac{\Gamma/2 - i\delta}{\delta^2 + \Omega^2/2 + \frac{\Gamma^2}{4}} e^{i\omega_P t} \quad (3.29)$$

On connaît ainsi d'après (3.20), tous les éléments de la matrice densité, ce qui va nous permettre de calculer dans la suite transmission et la diffusion d'une onde.

3.3.1.2 Polarisabilité diélectrique

La connaissance de la valeur des cohérences optiques nous permet de calculer la valeur moyenne du dipôle atomique $\langle \mathbf{D} \rangle$ qui donne la valeur du champ rayonné par le dipôle [50] :

$$\langle \mathbf{D}(t) \rangle = \text{Tr}(\rho \mathbf{D}) = \Re \mathfrak{e}(2d_{ab} \rho_{ab}(t)) \quad (3.30)$$

La relation précédente revient à écrire dans l'espace de Fourier¹² :

$$\tilde{\mathbf{D}}(\omega) = 2d_{ab} \tilde{\rho}_{ab}(\omega) \quad (3.31)$$

On pose alors :

$$\tilde{\mathbf{D}}(\omega) = \epsilon_0 \alpha_{at}(\omega) \tilde{E}_L(\omega) \quad (3.32)$$

où \tilde{E}_L est la composante Fourier du champ électromagnétique. On a introduit ici $\alpha_{at}(\omega)$, appelé **polarisabilité diélectrique** de l'atome. En se plaçant dans le cas où l'intensité de l'onde est faible ($\Omega^2 \ll \delta^2$), et d'après (3.28) et (3.31), on peut écrire une relation simple :

$$\alpha_{at}(\omega) = -\frac{d_{ab}^2}{\hbar \epsilon_0} \left(\frac{1}{\delta - i\Gamma/2} \right) \quad (3.33)$$

Puis, en se servant de la relation [51],

$$\Gamma = \frac{8\pi^2 d_{ab}^2}{3\epsilon_0 \hbar \lambda^3} \quad (3.34)$$

on retrouve la forme bien connue de la polarisabilité d'un atome à deux niveaux :

$$\alpha_{at}(\omega) = -\frac{3\pi \Gamma c^3}{\omega_{at}^3} \left(\frac{1}{\delta - i\Gamma/2} \right) \quad (3.35)$$

A partir de la fonction qui représente la polarisabilité atomique, on peut caractériser la lumière diffusée et transmise :

¹²on rappelle que $\rho_{ba}(t) = \tilde{\rho}_{ba}(\omega) e^{i\omega t}$

- **La puissance moyenne transférée** d'un dipôle au champ électromagnétique est donnée par l'expression [96] :

$$P_{trans} = \langle -\tilde{E} \frac{d\tilde{D}}{dt} \rangle \quad (3.36)$$

où $\langle \rangle$ traduit une moyenne temporelle. En développant cette expression, on obtient :

$$P_{trans} = -\frac{\omega}{2} \Im(\tilde{D}\tilde{E}^*) \quad (3.37)$$

En se servant de (3.32), et en posant $\alpha_{at} = \alpha' + i\alpha''$, on obtient :

$$P_{trans} = -\epsilon_0 \frac{\omega}{2} \alpha'' |\tilde{E}|^2 \quad (3.38)$$

On montre ainsi que l'absorption du milieu (ou le gain) se fait par l'intermédiaire de la **partie imaginaire** de la polarisabilité, qui s'écrit :

$$\alpha'' = -\frac{3\pi\Gamma c^3}{\omega_{at}^3} \left(\frac{\Gamma/2}{\delta^2 + \Gamma^2/4} \right) \quad (3.39)$$

- La connaissance de la polarisabilité d'un atome nous permet également de redémontrer la valeur de la **section efficace de diffusion** introduite dans le Chap 1, partie (1.1.2.1). Dans le cas d'une diffusion Rayleigh¹³ [48], et en se servant de (3.32), on obtient la puissance diffusée par un dipôle classique donnée par :

$$P_{diff} = \frac{|\langle D(\omega) \rangle|^2}{12\pi\epsilon_0 c^3} \omega^4 = \frac{|\epsilon_0 \alpha_{at} \tilde{E}_L|^2}{12\pi\epsilon_0 c^3} \omega^4 \quad (3.40)$$

La section efficace de diffusion, notée σ , est une surface égale à la surface nécessaire afin d'assimiler la puissance diffusée à l'intensité incidente :

$$P_{diff} = \sigma I_L \quad (3.41)$$

en prenant par définition $I_L = \frac{1}{2}\epsilon_0 c |E_L|^2$. On déduit que la section efficace de diffusion est proportionnelle au **module carré** de la polarisabilité :

$$\sigma = \frac{k^4}{6\pi} |\alpha_{at}|^2 \quad (3.42)$$

et en développant l'expression précédente :

$$\sigma = \frac{3\lambda^2}{2\pi} \frac{1}{1 + 4\frac{\delta^2}{\Gamma^2}} \quad (3.43)$$

¹³diffusion élastique

Nous avons donné dans ce paragraphe les bases de l'interaction entre un atome et une onde de faible intensité. Nous allons dans la suite résoudre le cas où l'atome est soumis à une onde pompe intense et une onde sonde de faible intensité. On cherchera alors à calculer le spectre de transmission de la sonde et montrer que l'on observe du gain, par un mécanisme appelé **gain Mollow**. On commencera par résoudre le problème via un calcul perturbatif sur la sonde, formulé pour la première fois par un chercheur des laboratoire Bell : B.R Mollow [36].

3.3.2 Cas d'atomes à 2 niveaux soumis à deux ondes pompe et sonde, de fréquences différentes

3.3.2.1 Calcul perturbatif

On considère toujours un atome à deux niveaux d'énergie $|a\rangle$ et $|b\rangle$ éclairé par un laser pompe intense, de fréquence ω_P , et un laser sonde faible, de fréquence ω_S , de telle sorte que le champ total vu par l'atome est :

$$E = E_P e^{-i\omega_P t} + E_S e^{-i\omega_S t} \quad (3.44)$$

avec $E_S \ll E_P$. On note $\Delta = \omega_P - \omega_{at}$ le désaccord entre la pompe et la résonance atomique, et $\delta = \omega_S - \omega_P$, le désaccord pompe-sonde. Le calcul détaillé qui suit vient de la théorie développée dans [36]. On substitue dans les équations (3.23) le nouveau champ E . Le champ sonde induit des perturbations à différentes fréquences, et on cherche alors des solutions pour les populations et les cohérences sous la forme :

$$\rho_{ab} = \rho_{ab}^{(0)} e^{-i\omega_P t} + \rho_{ab}^{(+)} e^{-i\omega_S t} + \rho_{ab}^{(-)} e^{+i\omega_S t} \quad (3.45)$$

$$\rho_{aa} = \rho_{aa}^{(0)} + \rho_{aa}^{(+)} e^{-i\delta t} + \rho_{aa}^{(-)} e^{+i\delta t} \quad (3.46)$$

On injecte (3.45) et (3.46) dans les équations de Bloch optique (3.23), et on procède à l'approximation RWA. Nous nous intéressons au champ rayonné à la fréquence sonde ω_S , et donc d'après (3.32) et (3.45) :

$$\tilde{\mathbf{D}}(\omega_S) = 2d_{ab} \rho_{ab}^{(+)} \quad (3.47)$$

D'après [36, 85], on peut donner l'expression de $\rho_{ab}^{(+)}$:

$$\rho_{ab}^{(+)} = \frac{i\Omega_S}{2} \frac{|z|^2}{|z|^2 + \Omega_P^2/2} \left(\frac{(\Gamma + i\delta)(z + i\delta) - i\Omega_P^2 \delta / (2z)}{(\Gamma + i\delta)(z + i\delta)(z^* + i\delta) + \Omega_P^2 (\Gamma/2 + i\delta)} \right) \quad (3.48)$$

où $z = \Gamma/2 - i\Delta$, et $\Omega_S = -\frac{d_{ab} E_S}{\hbar}$. On vérifie dans le cas de l'absence de pompe ($\Omega_P = 0$ et $\Delta = 0$), on retrouve l'expression 3.29.

La suite du calcul est identique à celui mené au paragraphe précédent : à partir de l'expression de la polarisabilité à la fréquence de la sonde, on peut exprimer le gain sur le faisceau sonde, après transmission dans un nuage de densité n :

$$I_{trans} = I_{inc} e^{n\alpha'' \frac{\omega_S}{c} z} \quad (3.49)$$

avec d'après (3.39) :

$$\alpha'' = -\frac{6\pi\Gamma c^3}{\omega_{at}^3 \Omega_S} \Im(\rho_{ab}^{(+)}) \quad (3.50)$$

Le paragraphe suivant sera consacré au calcul numérique du gain Mollow, on y présentera notamment l'étude de quelques spectres de gain.

3.3.2.2 Calcul exact : courbe de transmission et fluorescence

Dans le paragraphe précédent, on a calculé le spectre de gain Mollow en faisant un calcul perturbatif vis à vis de la sonde. Ce calcul donne un résultat formel, mais indépendant de l'intensité sonde. Il est intéressant de poursuivre en employant une méthode numérique afin de pouvoir garder l'intensité sonde comme paramètre, et pouvoir simuler ainsi la saturation du gain. On donnera à la fin du paragraphe quelques exemples de courbes de spectre de transmission calculé avec le modèle présenté ci-dessous.

Nous empruntons un formalisme matriciel, la technique appliquée a été développée dans [95, 97]. On se place comme précédemment dans l'approximation du champ tournant à la fréquence du faisceau pompe, et on pose :

$$\mathbf{X}(t) = \begin{pmatrix} X_1(t) \\ X_2(t) \\ X_3(t) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \rho_{ba} e^{i\omega_P t} \\ \rho_{ab} e^{-i\omega_P t} \\ (\rho_{bb} - \rho_{aa})/2 \end{pmatrix} \quad (3.51)$$

On peut ré-écrire les équations de Bloch optiques (3.23) sous forme matricielle :

$$\frac{d}{dt} \mathbf{X} = \mathbf{M} \mathbf{X} + \mathbf{m} \quad (3.52)$$

avec

$$\mathbf{M} = \begin{pmatrix} -(\frac{\Gamma}{2} + i\Delta) & 0 & -a \\ 0 & -(\frac{\Gamma}{2} - i\Delta) & -a^* \\ 2a^* & 2a & -\Gamma \end{pmatrix} \quad (3.53)$$

$$\mathbf{m} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ -\Gamma/2 \end{pmatrix} \quad (3.54)$$

$$a = \frac{i}{2} (\Omega_P + \Omega_S e^{-i\delta t}) \quad (3.55)$$

On rappelle que Ω_P et Ω_S sont les fréquences de Rabi de l'onde pompe et sonde, $\Delta = \omega_P - \omega_{at}$ est le désaccord de la pompe par rapport à la résonance atomique, et $\delta = \omega_S - \omega_P$ est le désaccord pompe-sonde.

Nous allons décomposer les variables (3.51) avec une décomposition de Floquet :

$$X_i(t) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} X_i^{(n)}(t) e^{in\delta t} \quad i = 1, 2, 3 \quad (3.56)$$

La décomposition de Floquet suivant les fréquences de pas $n\delta$ est pertinente car toutes les combinaisons de fréquences possibles entre ω_S et ω_P s'exprime en fonction de δ . Les trois fréquences dominantes dans le système seront néanmoins celles se propageant à ω_S , ω_P , et $2\omega_P - \omega_S = \omega_P - \delta$. Cette dernière fréquence correspond à un mécanisme dit de **mélange à quatre ondes**, que nous aborderons plus tard dans la partie (3.5).

D'après (3.56) et (3.51), on a ainsi :

$$\rho_{ba}(\omega_S) = X_1^{(-1)} e^{-i\omega_S t} \quad (3.57)$$

$$\rho_{ba}(\omega_P) = X_1^{(0)} e^{-i\omega_P t} \quad (3.58)$$

$$\rho_{ba}(2\omega_P - \omega_S) = X_1^{(1)} e^{i(2\omega_P - \omega_S)t} \quad (3.59)$$

En injectant (3.56) dans (3.52), on obtient en régime stationnaire ($d/dt X_i^n(t) = 0$) :

$$\begin{aligned} X_1^{(n)}(t) &= \frac{-i}{2P_n} \left(\Omega_P X_3^{(n)} + \Omega_S X_3^{(n+1)} \right) \\ X_2^{(n)}(t) &= \frac{i}{2Q_n} \left(\Omega_P X_3^{(n)} + \Omega_S X_3^{(n-1)} \right) \\ R_n X_3^{(n)}(t) + i \left(\Omega_P X_1^{(n)} + \Omega_S X_1^{(n-1)} \right) - i \left(\Omega_P X_2^{(n)} + \Omega_S X_2^{(n+1)} \right) &= -\Gamma/2 \delta_{n,0} \end{aligned} \quad (3.60)$$

avec

$$\begin{cases} P_n = in\delta + i\Delta_P + \Gamma/2 \\ Q_n = in\delta - i\Delta_P + \Gamma/2 \\ R_n = in\delta + \Gamma \end{cases} \quad (3.61)$$

Le système d'équation (3.60) donne une relation de récurrence sur le coefficient $X_3^{(n)}$:

$$A_n X_3^{(n)} + B_n X_3^{(n+1)} + C_n X_3^{(n-1)} = -\Gamma/2 \delta_{n,0} \quad (3.62)$$

Avec

$$\begin{cases} A_n = R_n + \frac{\Omega_P^2}{2} \left(\frac{1}{P_n} + \frac{1}{Q_n} \right) + \frac{\Omega_S^2}{2} \left(\frac{1}{P_{n-1}} + \frac{1}{Q_{n+1}} \right) \\ B_n = \frac{\Omega_P \Omega_S}{2} \left(\frac{1}{P_n} + \frac{1}{Q_{n+1}} \right) \\ C_n = \frac{\Omega_P \Omega_S}{2} \left(\frac{1}{P_{n-1}} + \frac{1}{Q_n} \right) \end{cases} \quad (3.63)$$

La suite (3.62) ré-écrite matriciellement, donne le système :

$$\begin{pmatrix} \ddots & \ddots & \ddots & & & & \\ C_{-1} & A_{-1} & B_{-1} & & & & \\ & C_0 & A_0 & B_0 & & & \\ & & C_1 & A_1 & B_1 & & \\ & & & \ddots & \ddots & \ddots & \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \vdots \\ X_3^{(-1)} \\ X_3^{(0)} \\ X_3^{(1)} \\ \vdots \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \vdots \\ 0 \\ -\Gamma/2 \\ 0 \\ \vdots \end{pmatrix} \quad (3.64)$$

L'inversion du système (3.64), donne ainsi accès à la valeur numérique de $X_3^{(n)}$. La connaissance de $X_3^{(n)}$ permet ensuite de calculer $X_1^{(n)}$ avec la relation donnée par (3.60) :

$$X_1^{(n)}(t) = \frac{-i}{2P_n} \left(\Omega_P X_3^{(n)} + \Omega_S X_3^{(n+1)} \right) \quad (3.65)$$

Dans le but de calculer la puissance transférée au faisceau sonde, nous devons évaluer la composante de la polarisabilité atomique α_{at} à la fréquence ω_S . Il faut expliciter la valeur moyenne du dipôle atomique :

$$\tilde{\mathbf{D}}(\omega_S) = 2d_{ab} \tilde{\rho}_{ab}(\omega_S) \quad (3.66)$$

et du fait de (3.56) et (3.51), on a :

$$\tilde{\mathbf{D}}(\omega) = 2d_{ab} \sum_n X_1^n(t) e^{in\delta t} e^{-i\omega_P t} = 2d_{ab} \sum_n X_1^n(t) e^{i(n+1)\delta t} e^{-i\omega_S t} \quad (3.67)$$

Nous voulons calculer la puissance rayonnée à la fréquence sonde ω_S , ce qui impose :

$$i(n+1)\delta t = 0 \quad (3.68)$$

La valeur de la cohérence optique $\rho_{ab}(\omega_S)$ est donc donnée par le coefficient $n = -1$ de $X_1^{(n)}$. On obtient :

$$X_1^{(-1)} = \frac{-i}{2P_{-1}} \left(\Omega_P X_3^{-1} + \Omega_S X_3^0 \right) \quad (3.69)$$

avec les coefficients $X_3^{(-1)}$ et $X_3^{(0)}$ connus lors de la résolution du système (3.64). Il est nécessaire de réaliser une troncature à n grand de l'équation matricielle (3.64), et [97] ont montré que $n = 15$ suffit afin d'avoir une incertitude de 10^{-6} sur le résultat.

On en déduit la valeur de la polarisabilité à la fréquence sonde d'après (3.67) et (3.32) :

$$\alpha_{at}(\omega_S) = \frac{-6\pi\Gamma c^3}{\omega_{at}^3 \Omega_S} X_1^{-1} \quad (3.70)$$

Sous l'hypothèse que la polarisabilité reste linéaire en champ sonde, la transmission du faisceau sonde par unité de longueur s'écrit :

$$I_{trans} = I_{inc} e^{-\alpha'' \frac{\omega_S}{c}} \quad (3.71)$$

où α'' est la partie imaginaire de α_{at} , donnée par (3.70).

On reporte ci-après quelques courbes de gain $G = I_{trans}/I_{inc}$ issues du calcul. Le calcul ci-dessus n'a considéré qu'un seul atome, ainsi, il faut ajouter l'effet de l'épaisseur optique d'un nuage d'atomes, via un facteur multiplicatif dans l'exponentielle¹⁴. On verra par contre lors de l'analyse des résultats expérimentaux, que cette hypothèse n'est pas vraie, car on surestime par le calcul théorique la valeur expérimentale du gain. En effet, nous ne prenons pas en compte l'effet de l'atténuation des faisceaux pompes lorsque l'on a un nuage de grande épaisseur optique, et on suppose que chaque atome ne diffuse que les photons pompes, en ignorant les photons sonde amplifiés par les atomes voisins. Ces deux processus tendent à réduire la valeur intégrée du gain.

La formule tracée sur les figures (3.5) et (3.6) est la suivante :

$$G(\delta) = e^{-b' \alpha''(\delta) \frac{\omega_S}{c}} \quad (3.72)$$

avec $b' = n_{at}L$, est la densité colonne, où n_{at} est estimé à 10^{10} atomes/cm³ et $L=1$ cm.

La figure (3.5) représente plusieurs spectres de transmission de l'onde sonde en fonction de δ , lorsque la pompe est à résonance atomique. Lorsque la pompe est suffisamment intense, du gain sur la sonde est possible autour de plusieurs fréquences, décalées de la résonance atomique de $\pm\Omega_P$.

Lorsque la pompe est décalée de résonance atomique (Fig. 3.6) de $\Delta = \omega_P - \omega_{at}$, l'allure du spectre est quelque peu modifiée par la présence de deux résonances principales : autour de ω_{at} on observe toujours l'absorption du milieu (plus ou moins modifiée par la présence de la pompe), et une résonance présentant

¹⁴On considère en première approximation que tous les atomes se comportent de la même façon.

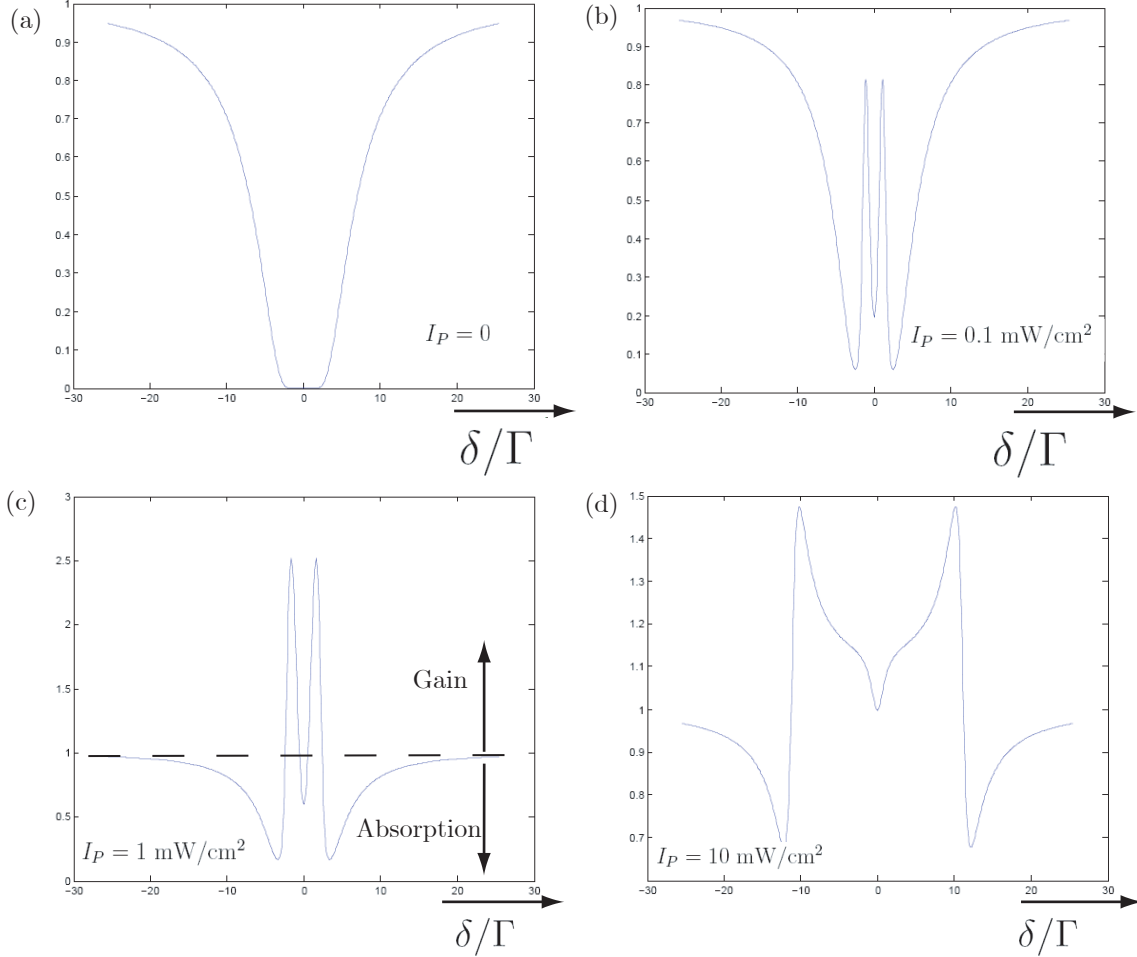


FIG. 3.5 – Spectre de transmission normalisé du faisceau sonde à travers un nuage d'atomes d'épaisseur optique à résonance $b_0 = 20$, avec pompe à résonance atomique. (a) Sans pompe, on obtient le spectre d'absorption de la sonde, dont la largeur à mi-hauteur est proportionnelle à \sqrt{b} , la racine carré de l'épaisseur optique (voir chap 2, équation (2.17)). Dans (b), (c) et (d) on augmente progressivement l'intensité I_P de l'onde pompe, et on observe du gain sur la sonde à plusieurs fréquences autour de la résonance atomique.

du gain positionnée à $\sqrt{\Omega_P^2 + \Delta^2}$ de la résonance atomique de l'atome pompé. La largeur des résonances est fixée par Γ , largeur naturelle de l'état excité. A intensité pompe fixe, un optimum de gain peut être trouvé en fonction de la valeur de désaccord de la pompe. Une telle propriété va permettre d'expliquer le régime de fonctionnement d'un laser basé sur ce mécanisme de gain au chapitre 4. On observe également une figure dispersive autour de $\delta = 0$ (Fig. 3.6 (d)) qui peut être interprétée par un phénomène d'émission spontanée à deux photons [98, 99].

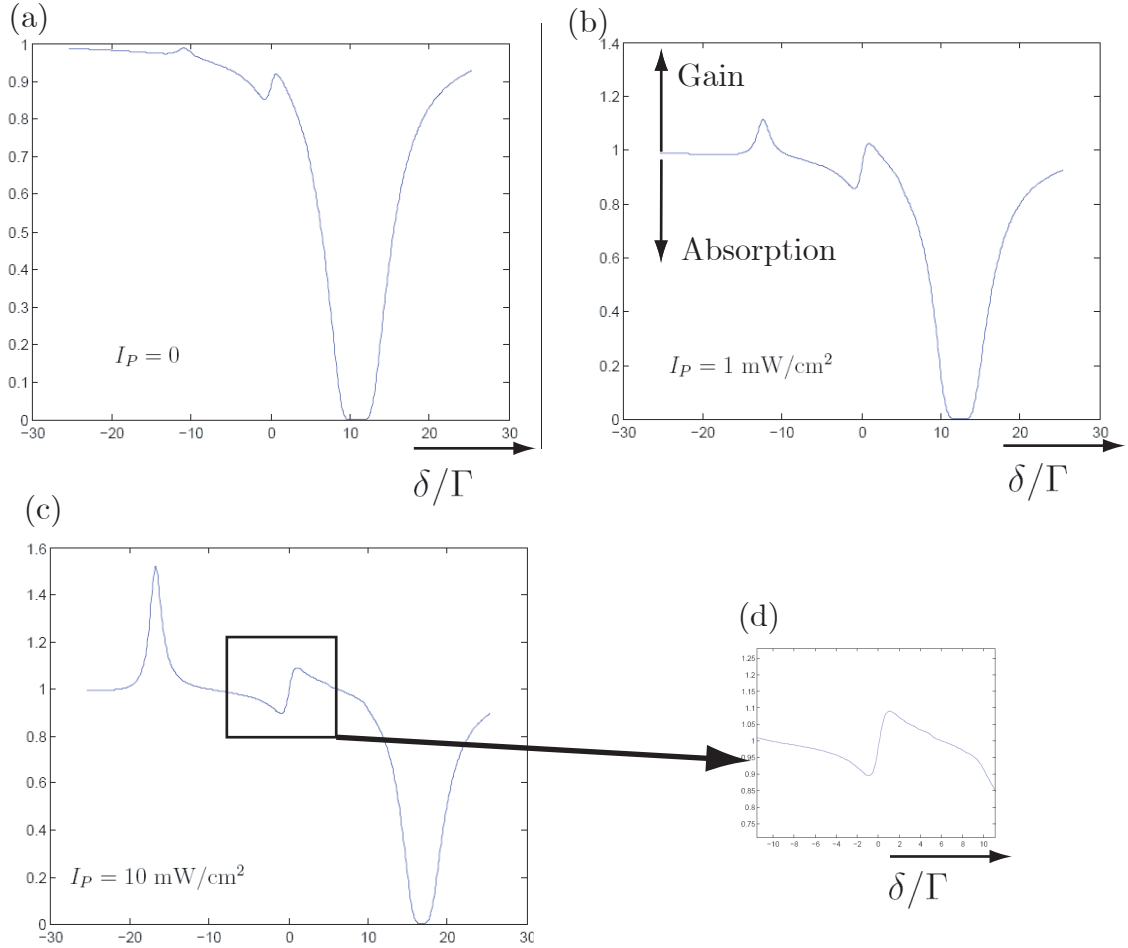


FIG. 3.6 – Spectre de transmission normalisé du faisceau sonde à travers un nuage d'atomes d'épaisseur optique à résonance $b_0 = 20$, avec pompe décalée de la résonance atomique $\Delta = -10$ MHz. (a) pompe d'intensité faible, (b) et (c) est augmentant l'intensité pompe. (d) est un zoom de (c) autour $\delta = 0$, on observe une structure dispersive présentant également du gain.

Nous pouvons observer le phénomène de saturation de gain lorsque la sonde devient trop intense. La figure (3.7, (a)) représente l'amplitude maximale du gain pour un désaccord et une intensité pompe donnée, en fonction l'intensité sonde. Pour des intensités de sonde très faibles ($I_S/I_P \sim 10^{-5}$), on retrouve les résultats prédits par le calcul perturbatif effectué dans la partie précédente. Puis, pour $I_S/I_P > 10^{-5}$, on observe une diminution de l'amplitude du gain Mollow (saturation du gain). A partir d'intensités pompes plus fortes ($I_S/I_P \sim 0.5$), une multitude de pics de résonances apparaissent dans la courbe de gain : des transitions complexes multi-photoniques se produisent, comme illustré sur la

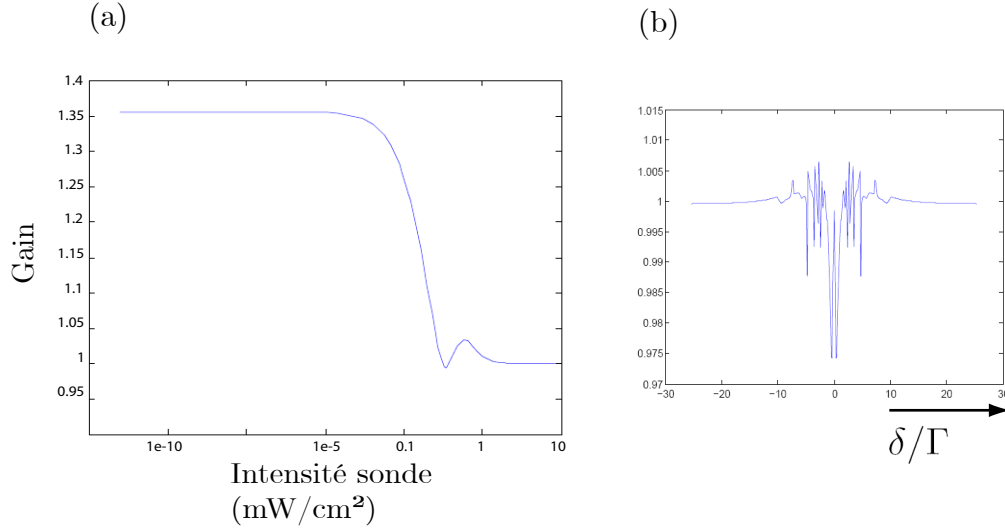


FIG. 3.7 – (a) Illustration de la saturation du gain Mollow en fonction de l'intensité sonde en échelle logarithmique, pour $I_P = 10 \text{ mW/cm}^2$. (b) spectre à résonance de gain Mollow dans le cas d'une sonde forte ($I_S = 1 \text{ mW/cm}^2$, et $I_P = 10 \text{ mW/cm}^2$). De multiples résonances apparaissent et présentent du gain, ce qui explique la bosse de la figure (a) autour de $I_S = 0.1 \text{ mW/cm}^2$.

simulation représentée par la figure (3.7, (b)). Cet effet n'est pas prédit dans le cas du calcul perturbatif, mais est intéressant car quoique le gain soit faible, il est encore présent. Ces résonances disparaissent ensuite quand la sonde devient aussi intense que la pompe, et le gain tend à disparaître.

Un dernier aspect à présenter avant de conclure ce paragraphe, est le calcul de la lumière émise par fluorescence. La lumière de fluorescence est proportionnelle à la fonction de corrélation au premier ordre du champ diffusé [101] :

$$I(r, \tau) = \frac{r^2 c}{2\pi\omega_{at}} \langle E_s^{(-)}(r, t + \tau) \cdot E_s^{(+)}(r, t) \rangle \quad (3.73)$$

et on rappelle que le champ total (incident et diffusé) à la fréquence ω s'écrit [50, 102] :

$$E_s^{(\pm)}(r, t) = E_{inc}^{(+)} - \frac{\omega_{at}^2}{c^2} \frac{d}{r} e^{i\omega_P(t-r/c)} S_{\mp} \left(t - \frac{r}{c} \right) \quad (3.74)$$

où $S_+ = e^{-i\omega_P t} |b\rangle\langle a|$ et $S_- = e^{i\omega_P t} |a\rangle\langle b|$. En utilisant la relation $S_+ S_- = |b\rangle\langle b|$, on peut réécrire (3.73), et en faisant une intégration sur tout l'espace, on montre

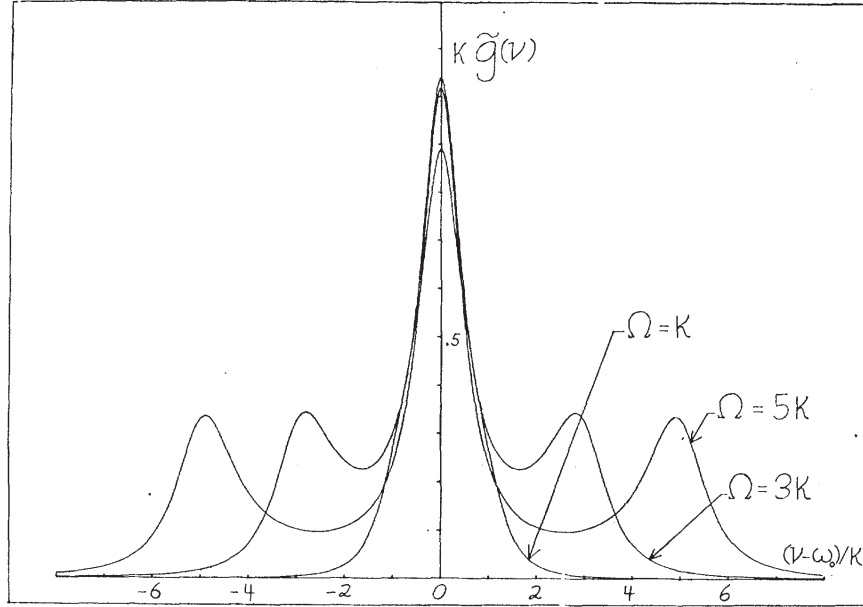


FIG. 3.8 – Spectre de la lumière diffusée par un faisceau à résonance atomique : Triplet de Mollow. Sur cette figure $K = \Gamma$, dans les notations de [100].

que :

$$I(t) = \frac{\Gamma}{2} + \Gamma \rho_{bb}(t - r/c) \quad (3.75)$$

où ρ_{bb} est l'élément de la matrice densité relatif à la population du niveau excité. En reprenant les notations ce paragraphe, on peut réécrire l'équation précédente :

$$I(t) = \frac{\Gamma}{2} + \Gamma \sum_n X_3^{(n)}(t - r/c) e^{in\delta(t-r/c)} \quad (3.76)$$

En régime stationnaire, seul le terme d'ordre $n = 0$ apporte une contribution, et l'intensité totale diffusée par l'atome s'écrit [95] :

$$I = \frac{\Gamma}{2} + \Gamma X_3^{(0)} \quad (3.77)$$

Le spectre de fluorescence d'un atome à deux niveaux, présente une structure bien connue appelée "Triplet de Mollow". Lorsque que l'on pompe à résonance atomique, le spectre de la lumière diffusée possède trois composantes : la diffusion élastique à la fréquence ω_{at} , et deux pics à $\pm\Omega_P$, correspondant à une diffusion inélastique (Fig. 3.8).

3.3.3 Interprétation physique et résumé

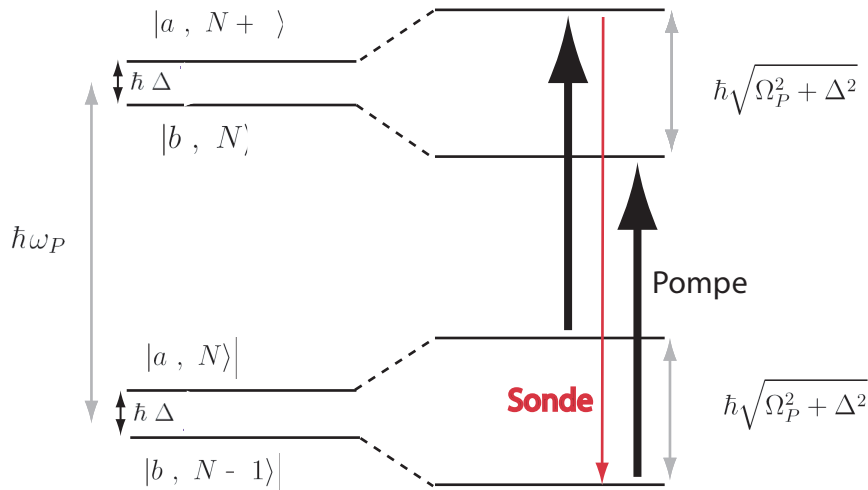


FIG. 3.9 – Diagramme des transitions entre les niveaux d'énergie de l'atome habillé, permettant d'expliquer le gain Mollow : on a une inversion de population entre les niveaux habillés $|a, N + 1\rangle$ et $|b, N - 1\rangle$.

Nous avons vu en introduction de ce chapitre que le gain est dû à une inversion de population entre les niveaux d'énergie du milieu amplificateur, et que ce mécanisme nécessitait plus de deux niveaux pour être stable.

Or nous avons vu dans cette partie que l'on peut produire du gain en régime stationnaire avec un atome à deux niveaux d'énergie. Pour interpréter ce phénomène il faut se placer dans la base de l'atome habillé [50], et traiter les ondes laser pompe et sonde comme des champs quantiques. Cela permet d'identifier plus facilement les processus d'émission stimulée, spontanée et d'absorption.

La figure (3.9) montre les états propres de l'atome habillé. Les états habillés sont les états perturbés de l'atome lorsqu'il est soumis au champ laser pompe intense. On peut interpréter ainsi les différentes structures dans le spectre de gain des courbes (3.6) [85] :

- l'absorption autour de ω_{at} résulte d'un processus de diffusion Rayleigh : absorption d'un photon sonde et émission d'un photon de fluorescence.

- L'amplification autour de $\omega_{at} + \sqrt{\Omega_P^2 + \Delta^2}$ résulte d'un processus multiphotonique : absorption de deux photons pompe à la fréquence $\omega_P = \omega_{at} + \Delta$ et émission stimulée d'un photon sonde à la fréquence $\omega_{at} + \sqrt{\Omega_P^2 + \Delta^2}$ et émission d'un photon de fluorescence à $\omega_{at} - \sqrt{\Omega_P^2 + \Delta^2}$.
- la structure autour de $\delta = 0$ (Fig. (3.6), (d)), est plus délicate à interpréter : il s'agit d'un processus d'émission spontanée à deux photons [98], appelé courbe de **dispersion Rayleigh**.

Nous verrons dans la partie (3.7.2) de ce chapitre l'observation expérimentale du gain Mollow dans un nuage d'atomes de Rubidium optiquement pompés, dont les caractéristiques correspondent bien à la théorie reportée ici. Lorsque la pompe et la sonde possèdent une même polarisation et excite la transition $F = 3 \rightarrow F' = 4$, l'atome de rubidium peut être considéré comme un atome à deux niveaux, tout en négligeant la sous-structure Zeeman.

Ce n'est plus vrai lorsque les polarisations pompe-sonde sont croisées. La dégénérescence des niveaux d'énergie conduit en particulier à l'observation d'autres types de résonances, appelées résonances Raman stimulées. La modélisation de ce processus sera l'objet de la prochaine partie.

3.4 Cas d'une transition $J = 1 \rightarrow J = 2$, effet Raman

Après avoir donné une approche de la théorie de diffusion dans un atome à deux niveaux d'énergie, on traitera ici le cas des milieux possédant des niveaux d'énergie non dégénérés, différemment peuplés.

On montrera que l'on peut y observer un effet nommé **effet Raman**, dont une première approche consiste à considérer un processus de diffusion dans un milieu possédant un niveau d'énergie fondamental doublement dégénéré (Fig. 3.10). Ce fut un des premiers exemples de démonstration de diffusion inélastique. La lumière diffusée contient des fréquences nommées Stokes et Anti-Stokes qui valent respectivement $\omega_{at} \pm \omega_{ba}$, avec $\hbar\omega_{ba}$ est l'écart d'énergie entre les deux sous-niveaux fondamentaux $|a\rangle$ et $|b\rangle$.

Dans cette partie, on formalisera la diffusion Raman stimulée dans notre nuage d'atomes froids soumis à des faisceaux pompe et sonde de polarisation croisées. Il s'agit d'un mécanisme de gain que l'on formalisera avec une transition $J = 1 \rightarrow J = 2$ (Fig. (3.11)). On verra que ce processus possède des résonances très fines par rapport aux processus de gain Mollow. En effet, dans le cas présent, on utilise une transition à deux photons sans passer par l'état excité.

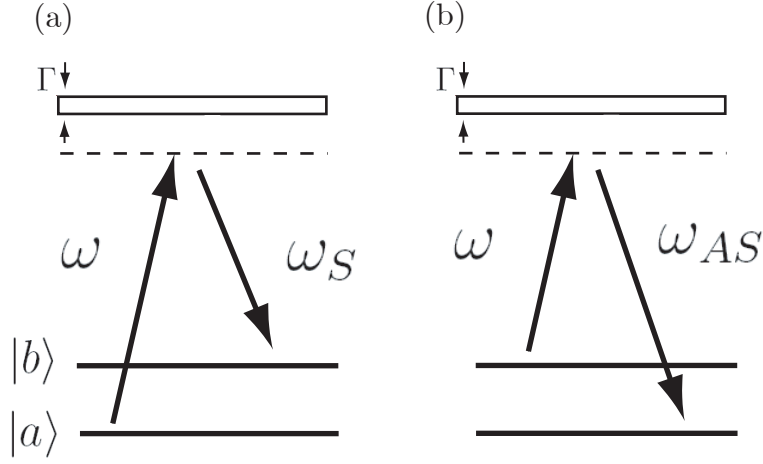


FIG. 3.10 – *Processus de diffusion Raman. (a) Processus Stokes, (b) Processus anti-stokes.*

3.4.1 Résolution dans le cas perturbatif

Le cas d'un atome à multi-niveaux d'énergie est un problème bien plus complexe à résoudre que le cas précédent, notamment dans le cas où on éclaire les atomes avec une onde pompe (d'amplitude E_P) et une onde sonde (d'amplitude $E_S \ll E_P$). Une première approche du calcul revient de nouveau à calculer la modification de la matrice densité par l'onde sonde, après avoir calculé la dynamique du milieu soumis uniquement à l'onde pompe. La méthode de résolution est détaillée dans [99], et on ne donnera ici que les principaux résultats.

Au premier ordre en $\epsilon = E_S/E_P$, et en régime stationnaire, l'approche perturbative conduit à faire la décomposition suivante de la matrice densité :

$$\rho = \rho^{(0)} + \epsilon (\rho^{(1)} e^{-i\delta t} + (\rho^{(1)})^* e^{i\delta t}) \quad (3.78)$$

où δ est le désaccord pompe-sonde.

On montre alors que les éléments au premier ordre $\rho^{(1)}$ de la matrice densité se mettent sous la forme :

$$\rho^{(1)} = \sum_{\lambda} \frac{s_{\lambda}}{-\gamma_{\lambda} + i(\delta - \omega_{\lambda})} \quad (3.79)$$

où γ_{λ} et ω_{λ} sont respectivement la largeurs et la position des résonances. Dans l'approximation du champ tournant (partie (3.2.3)), les cohérences optiques sont

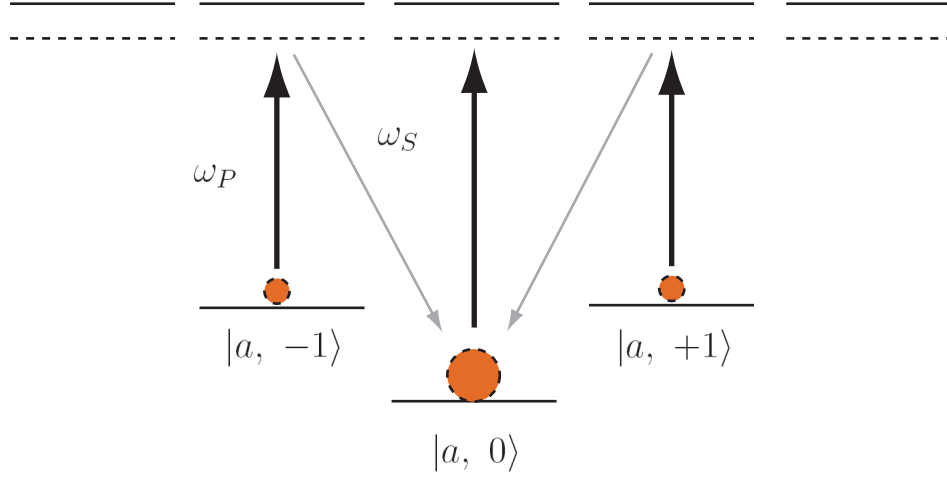


FIG. 3.11 – Exemple d’une transition $J = 1 \rightarrow J = 2$ soumis à une onde pompe et sonde, afin de formaliser le processus d’amplification Raman de la sonde. Le niveau fondamental $|a, 0\rangle$ est le plus peuplé, permettant donc d’obtenir du gain sur la sonde (inversion de population).

données par l’expression :

$$\tilde{\rho}_{ab} = -\frac{1}{\hbar} \frac{\mathbf{d} \cdot \mathbf{E}}{\Delta^2 + \Gamma^2/4} \rho^{(1)} \quad (3.80)$$

$\mathbf{d} \cdot \mathbf{E}$ est ici un produit scalaire car d’après le choix de polarisation, la sonde couple des niveaux aux moments magnétiques m_F différents. Le résultat dépend de coefficients appelés **coefficient de Clebsch-Gordan** qui caractérisent la force de la transition.

On considère maintenant le cas d’une transition $J = 1 \rightarrow J = 2$ (Fig. (3.11)). Le calcul des populations en régime stationnaire, des déplacements lumineux (partie (3.7.3) et annexe ??), et des taux de transition des sous niveaux Zeeman, permet de déduire la valeur des cohérences optiques (3.80). Loin de la résonance atomique ($\Delta \gg \Gamma$), le gain par unité de longueur, sur une sonde de faible amplitude, est donné par la relation [99] :

$$g(\delta) \propto \frac{\Omega_P^2}{\Delta^2} \left(\frac{4\gamma}{(\delta + \omega_R)^2 + \gamma^2} - \frac{9\gamma}{(\delta - \omega_R)^2 + \gamma^2} \right) \quad (3.81)$$

où respectivement ω_R et γ représentent la position et la largeur des résonances Raman. On montre que $\gamma \sim \frac{7}{24}\Gamma s$ [99], où s est le paramètre de saturation de la pompe, qui est égale à $s = \frac{\Omega_P^2/2}{\Delta^2 + \Gamma^2/4}$. Dans le cas où la pompe est éloignée de résonance atomique, on a généralement $s \ll 1$, ce qui explique le fait que $\gamma \ll \Gamma$.

Le spectre Raman est composé de deux résonances, ayant la forme de lorentzienne, de poids différents¹⁵, dont une présente du gain et l'autre de l'absorption. La figure (3.12) représente un exemple de spectre de transmission Raman, où l'on a tracé l'intensité transmise de la sonde $I_{trans} \propto e^{g(\delta)}$.

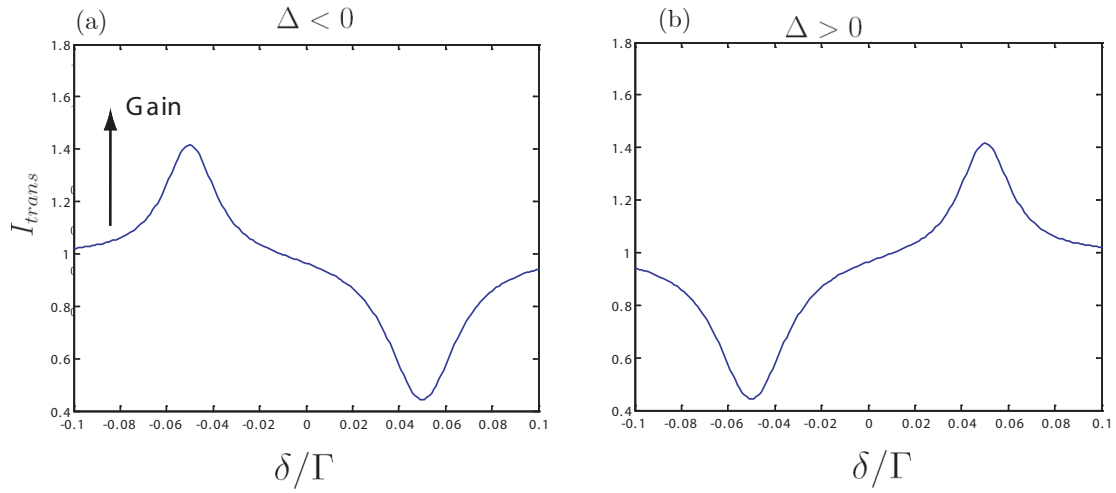


FIG. 3.12 – Spectre de transmission de la sonde, dans le cas du gain Raman. (a) cas d'une pompe désaccordée dans le rouge de la transition atomique, et (b) désaccordée dans le bleu. Les positions des résonances de gain et d'absorption sont inversées.

3.5 Mélange à 4 ondes

Le mélange à quatre ondes, ou Four Waves Mixing en anglais (FWM), est un autre exemple d'optique non linéaire, qui consiste à faire interagir deux faisceaux pompes et un faisceau sonde dans un milieu présentant une non-linéarité d'ordre deux ou trois, afin de produire un quatrième faisceau appelé **faisceau**

¹⁵A cause des différentes valeurs des coefficients de Clebsch-Gordan entre la transition produisant du gain, et celle produisant l'absorption.

conjugué¹⁶ [87]. D'un point de vue application, la conjugaison de phase permet de créer un miroir "parfait", dont le champ réfléchi est conjugué en phase au champ incident. C'est une propriété particulièrement intéressante est utilisée dans les cavités laser afin que l'onde demeure toujours accordée¹⁷, même en présence d'éléments qui introduisent des aberrations. On peut également redresser des images et rectifier des fronts d'ondes en temps réel grâce à ce processus.

Une approche d'un point de vue classique permet d'expliquer l'origine physique du mélange à quatre ondes via la création de réseaux d'indices (ou réseaux de phase), l'indice optique du milieu étant donné par la relation :

$$n = \sqrt{1 + \chi(\mathbf{E})} \quad (3.82)$$

Une description quantique sera nécessaire afin de donner l'expression de la susceptibilité diélectrique χ , et de calculer le spectre du faisceau conjugué. Une première approche a été formulée dans la partie (3.3.2.2) lorsqu'un atome à deux niveaux d'énergie est éclairé par une onde pompe (de fréquence ω_P) et sonde (de fréquence ω_S) : on a alors mentionné l'existence d'un faisceau de mélange à quatre ondes de fréquence $2\omega_P - \omega_S$.

On verra ensuite que le mélange à quatre ondes existe dans diverses configurations microscopiques (atomes à multiples niveaux d'énergie, avec diverses configurations de polarisation des pompes et sonde), le processus physique s'expliquant alors par des réseaux d'orientation ou d'alignement [84, 103].

On présentera également quelques observations expérimentales de mélange à quatre ondes dans un nuage d'atomes froids dans la partie (3.7.4). Cette partie est plus détaillée dans [64] pour l'analyse du comportement des spectres du faisceau conjugué dans différentes configurations de polarisation. Ici nous présentons le mélange à quatre ondes vu comme un processus de gain, qui nous sera utile afin de produire un laser, comme on le verra dans le chapitre 4.

3.5.1 Approche classique

Dans cette partie nous allons étudier le processus de mélange à quatre ondes du point de vue classique.

Il s'agit d'une interaction non-linéaire qui permet la génération d'un faisceau A_4 conjugué en phase avec un faisceau sonde A_3 , lorsque le milieu est soumis à deux faisceaux pompes A_1 et A_2 se propageant en sens opposés. L'interférence entre les faisceaux pompes et le faisceau sonde crée un réseau d'indice optique (Fig. 3.13). Le faisceau conjugué A_4 résulte de la diffraction des faisceaux pompes

¹⁶On appelle aussi ce faisceau, onde idler dans d'autres processus d'optique non linéaire, comme la génération de second harmonique, l'effet Kerr, etc...

¹⁷Par exemple, les diodes DFB (Distributed Feedback Laser), que nous utilisons dans certaines expériences, sont rendues monomodes grâce à ce type de réseau induit

sur ce réseau. Afin d'unifier les notations, on appellera dans la suite respectivement les faisceaux pompes d'amplitude A_1 et A_2 , F (comme Forward) et B (comme Backward), et p (comme probe) le faisceau sonde d'amplitude A_3 .

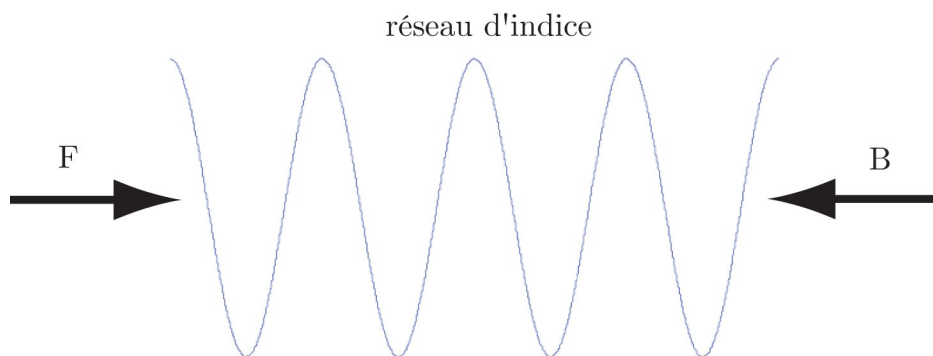


FIG. 3.13 – L'interférence entre les faisceaux pompes et sonde crée une répartition d'intensité non uniforme dans le nuage et crée une modulation spatiale du réseau d'indice. Un autre effet de modulation spatiale de la densité atomique est à noter : les atomes sont attirés dans les minima d'intensité pour des lasers désaccordés dans le rouge et aux maxima d'intensité pour des lasers désaccordés dans le bleu. Cela crée ensuite dans le signal mélange à quatre ondes une dissymétrie rouge-bleue [104]

Il existe différentes configurations pour produire un faisceau conjugué : les réseaux d'indice en réflexion (Fig. 3.14 (a)) et en transmission (Fig. 3.14 (b)) sont créés par la modulation de la polarisation atomique¹⁸, causée par les interférences entre les faisceaux pompe et sonde. Le signal conjugué est produit par une interférence entre ces deux faisceaux, et se propage dans la direction opposée au sens de propagation de la sonde.

Il est important de noter que cette interprétation du mélange à quatre ondes à travers l'image de diffraction sur un réseau a ses limites : ce modèle ne marche que pour des faisceaux copolarisés ($F//B//p$) et on verra que des configurations $F//B \perp p$ (le faisceau sonde est polarisé perpendiculairement aux faisceaux pompes) permettent d'observer également le mélange à quatre ondes. Une théorie plus exhaustive, permettant d'expliquer la création de réseaux d'orientation et d'alignement, doit faire intervenir la structure interne des atomes.

Dans un premier temps, on se limitera au cas simple où $F//B//p$, on résumera dans la suite les principales étapes du calcul de mélange à quatre ondes, en

¹⁸Polarisabilité α_{at} d'une assemblée d'atomes.

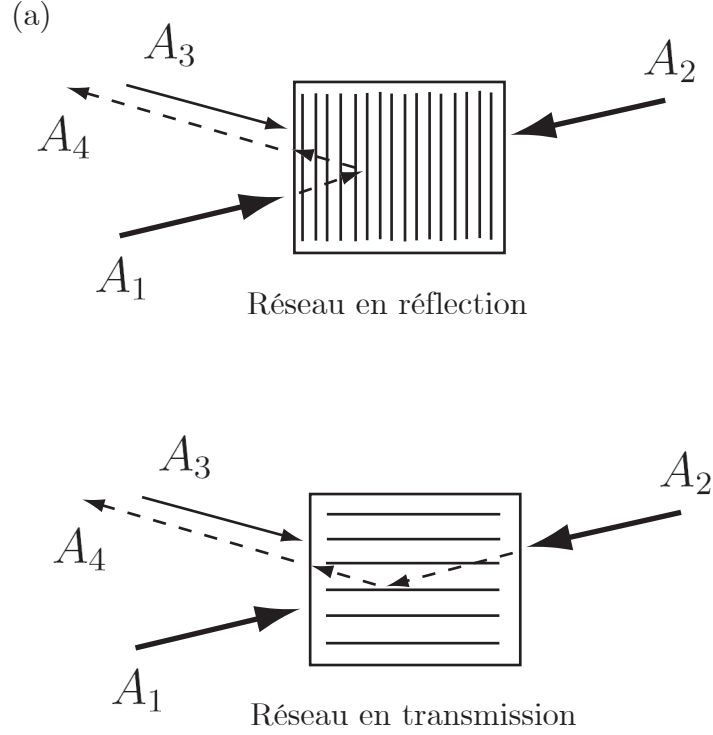


FIG. 3.14 – Principe du mélange à quatre ondes avec des faisceaux copolarisés, utilisant le réseau en réflexion (a) créé par A_2 et A_3 ou en transmission (b) créé par A_1 et A_3

partant de l'équation de propagation du champ électrique :

$$\Delta \mathbf{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2} \quad (3.83)$$

où \mathbf{P} est la polarisation atomique du milieu, donnée par l'expression :

$$\mathbf{P}(\mathbf{E}) = \epsilon_0 \chi(\mathbf{E}) \mathbf{E} \quad (3.84)$$

$\chi(\mathbf{E})$ est la susceptibilité diélectrique du milieu (voir partie (3.3.1.2), et (3.4)).

Le champ électrique total \mathbf{E} prend en compte les deux pompes F et B (respectivement d'amplitude A_1 et A_2 et de fréquence ω_P), le faisceau sonde (d'amplitude A_3 et de fréquence ω_S), et le faisceau conjugué (d'amplitude A_4 et de fréquence ω_C), et s'écrit :

$$\mathbf{E}(z, t) = A_1(z) e^{-i\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r}_1 + i\omega_P t} + A_2(z) e^{i\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r}_2 + i\omega_P t} + A_3(z) e^{-i\mathbf{k}_3 \cdot \mathbf{r}_3 + i\omega_S t} + A_4(z) e^{i\mathbf{k}_4 \cdot \mathbf{r}_4 + i\omega_C t} \quad (3.85)$$

Le champ total doit satisfaire la relation d'accord de phase qui traduit la conservation de l'impulsion et de l'énergie :

$$\vec{\mathbf{k}}_1 + \vec{\mathbf{k}}_2 + \vec{\mathbf{k}}_3 + \vec{\mathbf{k}}_4 = \vec{0} \quad (3.86)$$

$$\omega_S + \omega_C = 2\omega_P \quad (3.87)$$

Or, par construction $\vec{\mathbf{k}}_1 + \vec{\mathbf{k}}_2 = 0$ (les pompes sont rétroalignées), ce qui implique que $\vec{\mathbf{k}}_3 + \vec{\mathbf{k}}_4 = 0$: Le faisceau conjugué se propage **en direction inverse** du faisceau sonde. De plus, on se placera dans le cas du mélange à quatre ondes **dégénéré**, c'est à dire que les fréquences pompe et sonde sont identiques : $\omega_P = \omega_S = \omega_C = \omega$. Dans ces conditions, et en procédant à l'approximation suivante, dite de l'enveloppe lentement variable pour les quatres composantes du champ total :

$$\left| \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial z^2} \right| \ll \left| \mathbf{k} \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial z} \right| \quad (3.88)$$

On obtient ainsi l'équation d'évolution du faisceau conjugué :

$$2ik \frac{\partial A_4}{\partial z} = -\mu_0 \omega^2 P_4(\omega, k_4) \quad (3.89)$$

où $P_4(\omega, k_4)$ est le coefficient de Fourier de la polarisation atomique à la fréquence du faisceau conjugué ω_C et dans la direction k_4 .

Dans la suite on verra la résolution dans le cas le plus simple d'un atome à deux niveaux d'énergie. On mentionnera l'existence de cas plus complexes, comme le cas d'atomes à multi-niveaux. Puis on verra quelques résultats expérimentaux du mélange à quatre ondes dans un nuage d'atomes froids dans la partie (3.7.4).

3.5.2 Approche quantique : cas d'un atome à deux niveaux

Le calcul de la susceptibilité diélectrique, dans le cas d'un atome à deux niveaux d'énergie, a déjà été abordé dans la partie (3.3.1.2), et (3.4). On rappelle son expression en fonction du champ excitateur (pompe et sonde)¹⁹ \mathbf{E} , désaccordé de Δ par rapport à la résonance atomique, dans un milieu de densité n :

$$\chi(\mathbf{E}) = -n \frac{3\pi\Gamma c^3}{\omega_{at}^3} \frac{\Delta - i\frac{\Gamma}{2}}{\Delta^2 + \frac{\Gamma^2}{4} + \frac{\Omega^2(\mathbf{E})}{2}} \quad (3.90)$$

¹⁹On ne se place pas ici dans l'approximation du champ faible.

On sépare alors le champ total \mathbf{E} en deux composantes, dans le but de mettre en évidence une composante linéaire et non linéaire dans l'équation (3.83) :

$$\mathbf{E} = E_0 + \Delta E \quad (3.91)$$

E_0 représente les ondes pompes et ΔE les ondes sonde et conjuguée, avec $E_0 \gg \Delta E$. On a alors la possibilité d'évaluer la partie non linéaire de la polarisabilité atomique, responsable de la génération du faisceau conjugué. La suite du calcul est détaillée dans l'article [88] et son erratum [105], et dans [64]. On doit lors du calcul effectuer une moyenne spatiale de la polarisation atomique, afin de moyenner toutes dépendances spatiales car on considère un échantillon de longueur $L > \lambda$. Dans la limite de faible épaisseur optique, on peut donner une expression analytique au coefficient de réflexion mélange à quatre ondes :

$$R = \frac{|A_4|^2}{|A_3|^2} \sim \frac{n^2 \sigma_0^2 L^2}{1 + \Delta^2/\Gamma^2} \frac{4(I/I_{sat})^2}{(1 + 4I/I_{sat})^3} \quad (3.92)$$

où n est la densité atomique, $\sigma_0 = \frac{3\lambda^2}{2\pi}$ la section efficace de diffusion à résonance d'un atome, I l'intensité des pompes, et $I_{sat} = \frac{cc_0^2 \Gamma^2 \hbar^2}{4d^2}$ l'intensité de saturation d'un atome, et L la longueur du milieu.

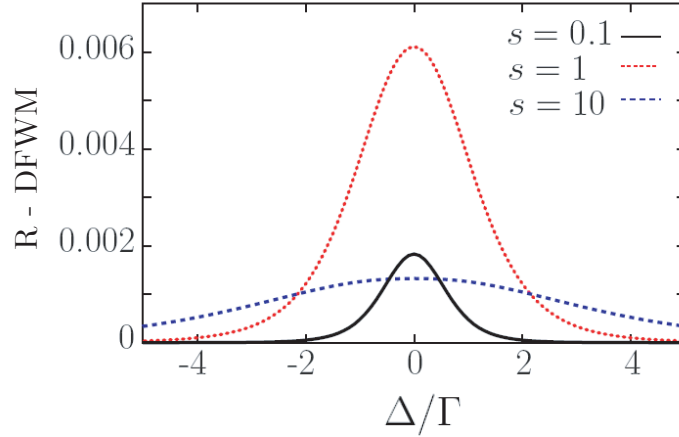


FIG. 3.15 – Signal de mélange à quatre ondes dégénéré (DFWM) obtenu pour différentes valeurs de la saturation. Pour une grande saturation, le signal tend vers zero.

La figure (3.15), représentant l'intensité du faisceau conjugué par mélange à quatre ondes dégénéré, est une courbe formée d'une lorentzienne, symétrique de part et d'autre de la résonance atomique.

Dans le cas où la polarisation de la sonde est perpendiculaire à celle des pompes, un spectre plus complexe apparaît lorsque l'on augmente l'épaisseur optique du nuage : un creux apparaît autour de $\Delta = 0$, car l'épaisseur optique introduit un effet d'absorption autour de la résonance atomique, et la courbe possède deux maxima symétriques par rapport à la résonance atomique. Plus de détails sont donnés dans [64], et on verra une courbe expérimentale dans la partie (3.7.4) . De plus, des pompes trop intenses peuvent introduire une modulation spatiale de la position des atomes qui se placent dans les maxima (pompes désaccordée dans le bleu) ou les minima (pompes désaccordée dans le rouge) des figures d'interférence (voir Fig. 3.13), ce qui introduit une asymétrie dans le signal en fonction du désaccord pompe . Plus de détails sont donnés à la fin de ce chapitre, dans l'article “Bunching-induced asymmetry in degenerate four-wave mixing with cold atoms”, partie (3.7.5).

Nous retiendrons de cette étude dans le cas simple d'un atome à deux niveaux d'énergie, et dans le cas dégénéré, que l'amplitude du signal de mélange à quatre ondes est fonction à la fois du désaccord des pompes, de leur intensité et de l'épaisseur optique du milieu. On retiendra que l'intensité du signal de mélange à quatre ondes **augmente avec l'épaisseur optique** du milieu, mais présente une ligne d'absorption importante autour de ω_{at} à grande épaisseur optique, en fonction de la polarisation pompe-sonde. De même, l'intensité du signal augmente avec l'intensité des pompes (dans une gamme allant de $s = 0.1$ à $s = 1$ par exemple), mais on observe une saturation du signal lorsque les pompes deviennent trop intenses ($s = 10$) [106, 107]. Le maximum du signal en fonction de la saturation des pompes est donc un compromis à trouver. Dans la partie (3.7.4), on présentera quelques résultats expérimentaux allant dans ce sens.

Dans la suite, on mentionnera l'existence du mélange à quatre ondes dans des configurations plus complexes (atomes à plus de deux niveaux d'énergie), ainsi que dans le cas non dégénéré (pompes et sonde possédant des fréquences différentes).

3.5.3 Mélange à quatre ondes en polarisation \perp , et cas non-dégénéré

Le cas où les faisceaux pompes possèdent une polarisation perpendiculaire à celle du faisceau sonde ($F//B \perp p$) peut produire un faisceau conjugué de mélange à quatre ondes [108, 109]. Une description théorique consiste à prendre en compte un atome à quatre niveaux d'énergie (Fig 3.16), où les deux niveaux $|a\rangle$ et $|b\rangle$ sont les états fondamentaux, et $|c\rangle$ et $|d\rangle$ les niveaux excités.

Le calcul des cohérences optiques responsables du signal de mélange à quatre ondes, se fait via la résolution des équations de Bloch optique de manière similaire

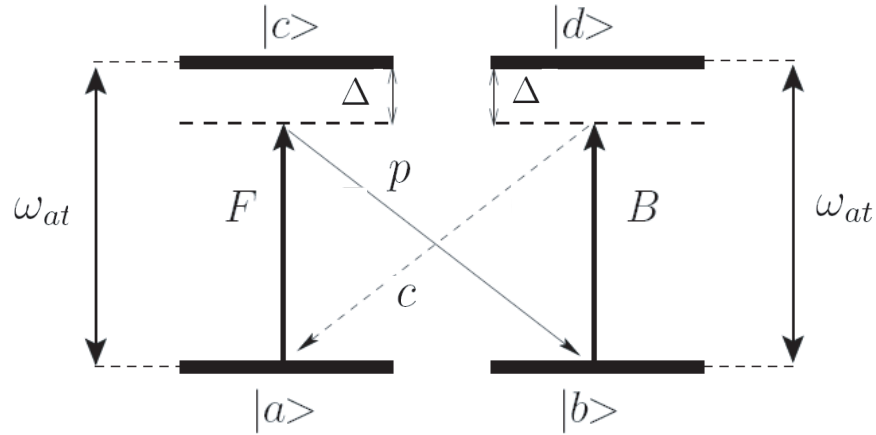


FIG. 3.16 – Modélisation du processus de mélange à quatre ondes, dans le cas de $F/B \perp p$. c est le signal conjugué et Δ est le désaccord des pompes par rapport à la résonance atomique.

à la partie (3.4). Les détails du calcul sont donnés dans [64] où est joint l'article “Lineshapes in degenerated four-wave mixing in cold atoms”, non publié. La figure (3.17) donne un exemple du spectre théorique du signal conjugué calculé avec le modèle à quatre niveaux : encore une fois, on peut trouver un optimum de l’efficacité du mélange à quatre ondes, en fonction de l’intensité des pompes.

On verra dans la partie (3.7.4), consacrée aux résultats expérimentaux sur un nuage d’atomes froids, que nous travaillons essentiellement en configuration $F/B \perp p$ pour des raisons de meilleure efficacité du signal. De plus il est facile de balayer la fréquence sonde autour de la fréquence des pompes, et ainsi produire un signal de **mélange à quatre ondes non dégénéré**. Ce dernier point est difficile à simuler théoriquement, et il n’existe pas encore, à notre connaissance, de résolution exacte du problème.

3.6 Résonance Induite par Recul (RIR)

Nous avons donné plusieurs mécanismes de gain, dont l’origine est une inversion de population, réelle pour le gain Raman, ou dans la base de l’atome habillé pour le gain Mollow, et un processus d’optique non linéaire avec accord de phase pour le mélange à quatre ondes. Il est utile de mentionner dans le cadre de ce chapitre, l’existence d’un autre mécanisme, que nous n’avons pas cherché à mettre en oeuvre, appelé gain par **Résonance Induite par Recul (RIR)**,

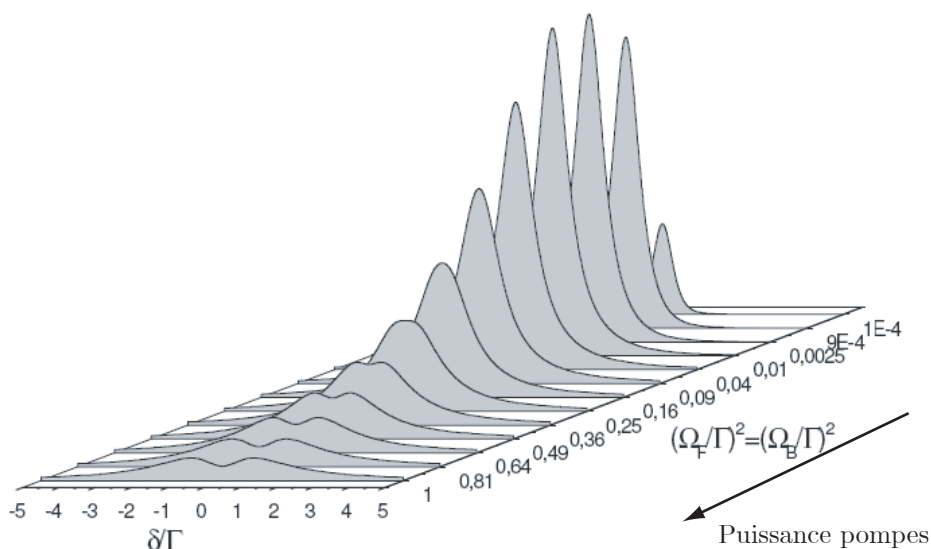


FIG. 3.17 – Spectre du mélange à quatre ondes dégénéré calculé dans le cas d’un atome à quatre niveaux d’énergie, en fonction du désaccord des pompes, et pour divers paramètres de saturation des pompes.

dont l’origine physique est le couplage entre différentes classes de vitesse des particules.

Quand un atome absorbe ou émet un photon, l’impulsion de son centre de masse subit un changement appelé “atomic recoil” qui est l’origine de la force de pression de radiation (voir Chap.2, partie (2.1.1)). Dans une configuration de spectroscopie pompe sonde similaire à celle du mélange à quatre ondes, on peut montrer que les ondes pompe et sonde peuvent échanger de l’énergie par l’intermédiaire des énergies cinétiques des atomes [89]. Ce processus peut être décrit par des transitions de type Raman stimulé entre les différentes classes de vitesse de l’ensemble des atomes (Fig. 3.18 (b)).

En pratique, cet effet se distingue de la réelle configuration mélange à quatre ondes car on n’utilise qu’une seule pompe et la sonde lui est contrapropageante ($\vec{k}_P = -\vec{k}_S$, Fig 3.18 (a)). [91] a montré que dans un nuage d’atomes optiquement épais, ce processus conduit à du gain important sur la sonde (Fig. 3.18 (a)). Un processus appelé Collective Atomic Recoil Laser (CARL, [110]) est une forme de laser basé sur ce gain.

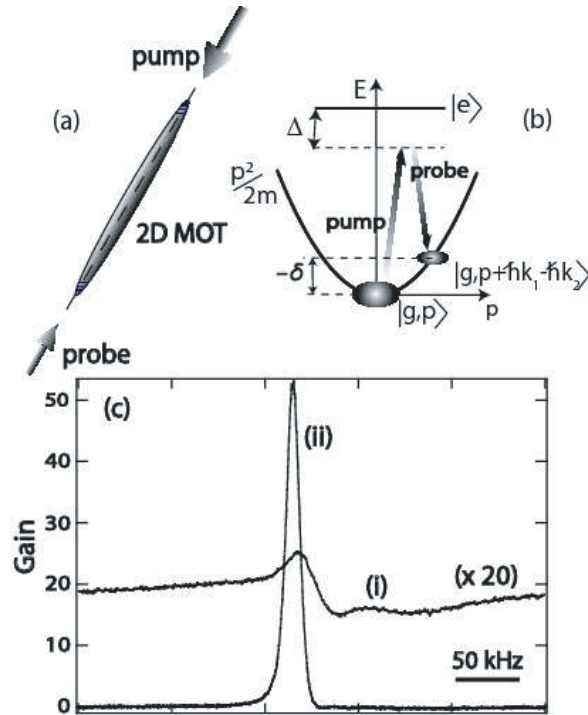


FIG. 3.18 – (a) configuration pompe-sonde afin d'observer le gain RIR. Un MOT 2D a été utilisé pour obtenir une épaisseur optique grande (~ 40) (b) Transition Raman entre différents degrés de liberté externes des atomes. La dégénérescence est due à l'effet de recul induit par la pompe et la sonde. (c) Spectre du gain de la sonde pour une épaisseur optique faible (i) (~ 10) et pour une grande épaisseur optique (ii) (~ 40). Figure issu de [91]

3.7 Données expérimentales sur le gain et le mélange à quatre ondes

On reporte dans ici les résultats expérimentaux de l'observation des gains Mollow (partie 3.7.2), Raman (partie 3.7.3), et du mélange à quatre ondes dégénéré et non dégénéré (partie 3.7.4).

On commencera par décrire le montage expérimental. Cette partie complète la description de notre piège magnéto-optique, et décrit principalement la génération des faisceaux pompe et sonde, ainsi que le montage de spectroscopie.

3.7.1 Montage expérimental

Génération des faisceaux pompes et sonde

Les faisceaux laser pompes et sonde sont produits grâce à deux diodes lasers esclaves indépendantes mais injectées par une diode laser maître commune DBR²⁰ (Fig. 3.19). L'avantage d'une telle configuration est de pouvoir balayer indépendamment les fréquences des lasers pompes et sonde grâce à des modulateurs acousto-optique (AOM, pour Acousto Optical Modulator), tout en gardant une bonne stabilité des fréquences et de la cohérence en phase. Nous avons vérifié avec une expérience de battement entre les faisceaux pompes et sonde, que la stabilité relative des AOM, nous permet d'obtenir une résolution de 20 kHz dans les spectres expérimentaux.

Le faisceau pompe, de grande intensité, est prélevé à la sortie d'un laser "Tapped amplifier" MOPA²¹ servant également à la génération des faisceaux pièges (Fig 3.19). Nous pouvons obtenir une puissance totale dans le faisceau pompe d'environ 300 mW. En pratique, la puissance réelle arrivant sur les atomes a été mesurée à 120 mW au maximum²², et est divisée en 2 faisceaux, appelés **F** et **B**.

Le faisceau sonde, appelé **p**, est produit par une diode laser esclave injectée, produisant une puissance totale d'environ 10 mW. En pratique ce faisceau est toujours fortement atténué, car nous considérons une sonde perturbative, peu saturante sur les atomes.

Le tableau (3.1) donne le paramètre de saturation s maximal pour la pompe et la sonde, et celui utilisé généralement lors des expériences.

	Puissance totale	waist (w)	s_{tot}	s_{exp}
F et B	120mW	2.6 mm	350	0-100 par faisceau
sonde p	10 mW	1.6 mm	77	0-0.1

TAB. 3.1 – Données standards des caractéristiques des faisceaux servant à l'expérience. Le paramètre de saturation est défini par : $s = I/I_{sat}$, $I_{sat}=1.6 \text{ mW/cm}^2$ pour le ^{85}Rb , et $I = 2P/(\pi w^2)$. Par définition, le waist des faisceaux est la dimension de leur rayon prise à $1/e^2$.

Le laser pompe est asservi sur la transition $F = 3 - F' = 4$ du ^{85}Rb , sa fréquence est notée $\omega_{F,B}$, et $\Delta_{F,B} = \omega_{F,B} - \omega_{at}$ est le désaccord par rapport à la résonance atomique. On balaye la fréquence de la sonde ω_p autour de la fréquence de la pompe, et on note $\delta = \omega_p - \omega_{F,B}$, le désaccord pompe-sonde.

L'utilisation de modulateurs acousto-optique (AOM), nous permet de balayer continûment la fréquence des lasers sur plusieurs fois la largeur naturelle Γ de la

²⁰Distributed Bragg Reflector

²¹Master Oscillator Power Amplifier

²²Les pertes sont essentiellement dues à un filtrage spatial du faisceau et au passage dans plusieurs AOMs.

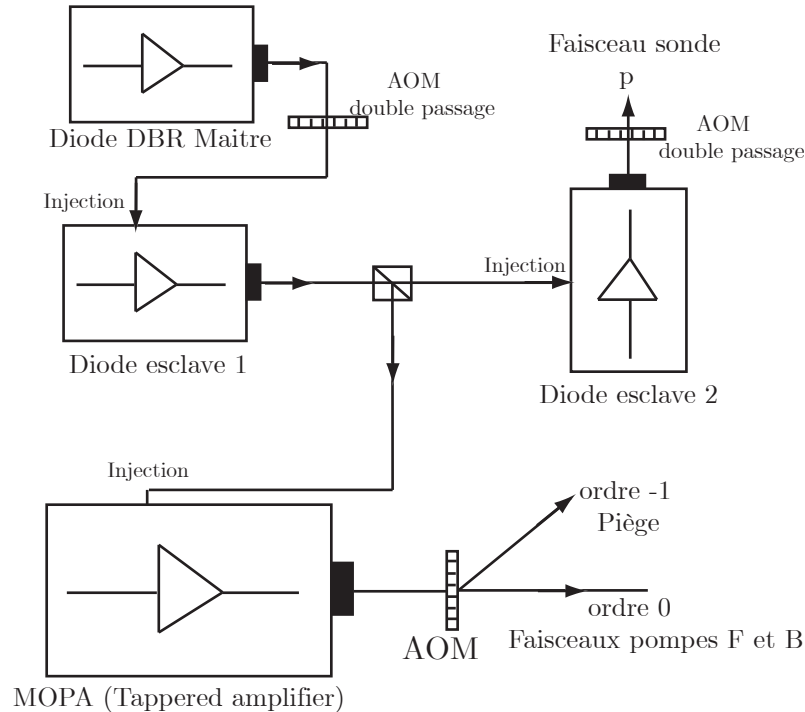


FIG. 3.19 – Schéma descriptif de la génération des faisceaux pompe et sonde, via plusieurs injections en cascade.

transition. La calibration des fréquences est donnée dans l'annexe (A) ; mentionnons ici les désaccords $\Delta_{F,B}$ et δ possibles :

- $\Delta_{F,B} \sim -7\Gamma$ à $+4\Gamma$ autour de la résonance atomique
- $\delta \sim -4\Gamma$ à $+4\Gamma$ autour de la fréquence pompe.

Cette gamme est souvent réduite à cause de la plage d'injection des lasers. En effet, l'efficacité de diffraction des modules AOM n'est pas constante et chute aux grands désaccords, compliquant ensuite l'injection des diodes. De plus, la plage d'injection en fréquence des diodes esclaves dépend grandement de leur qualité intrinsèque à laser naturellement aux bonnes fréquences.

Ces quelques difficultés font que nous sommes souvent limités dans la plage des désaccords maximaux atteignables. Pour résoudre ce problème nous avons placé l'AOM double passage (voir Annexe A) qui fixe le désaccord δ de la sonde, après l'injection de la diode esclave 2 (Fig. 3.19). Cela pose le problème que l'intensité de la sonde dépend du désaccord δ , il faut ainsi veiller à toujours normaliser correctement les courbes.

Le schéma expérimental de spectroscopie pompe-sonde est représenté sur la figure (3.20).

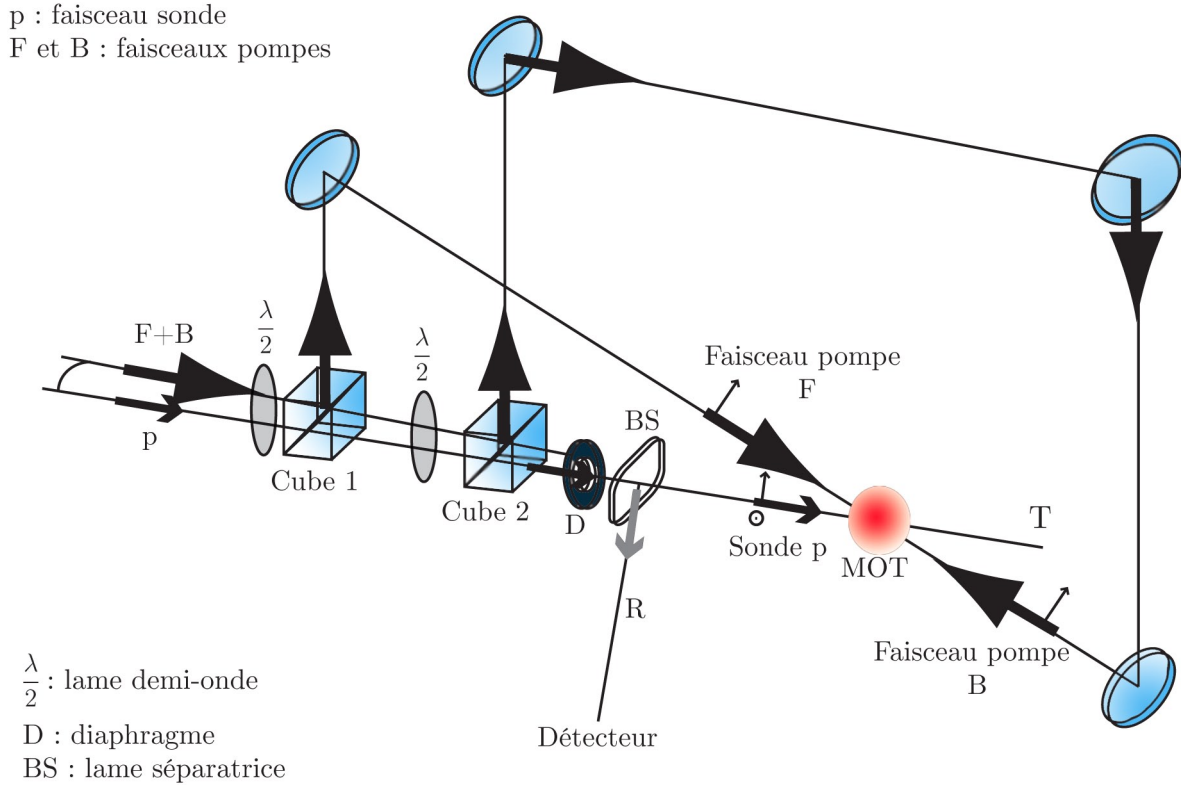


FIG. 3.20 – Schéma du montage expérimental spectroscopie pompe-sonde. Nous avons le choix d'éclairer le piège avec les pompes F ou B (pour le gain Mollow et Raman), ou les deux simultanément (pour le FWM). Avec des détecteurs placés en transmission T ou en réflexion R , nous pouvons mesurer à la fois le gain et le mélange à quatre ondes. A l'entrée du cube 1, la polarisation de la sonde p est réglée pour être transmise par les cubes, alors que les pompes doivent être réfléchies par les cubes 1 et 2. L'intensité entre les deux bras F et B est équilibrée grâce aux lames demi-onde placées devant chaque cube. A l'entrée du cube 1, les faisceaux pompes et sonde forment un petit angle afin de pouvoir être séparés par la suite (diaphragme D).

Le faisceau pompe est divisé en deux faisceaux indépendants (non rétro réfléchis) F et B avec un système couplé de cubes polariseurs et de lames demi-onde. Cela nous permet d'équilibrer précisément les intensités entre les deux faisceaux, ainsi que de contrôler leur polarisation. Le faisceau pompe F (F comme Forward) est le faisceau se propageant dans le même sens que la sonde, et le faisceau pompe B (B comme Backward) est contrapropageant. L'intensité et la polarisation de la sonde p , sont également ajustables grâce à un système de cube polariseur et lame demi-onde.

On se placera typiquement dans les deux configurations $F//B \perp p$ et $F//B//p$,

où F, B et p ont des polarisations linéaires.

Cycle temporel de l'expérience

L'expérience est effectuée avec différentes séquences temporelles afin de séparer les cycles de temps servant à la génération du piège d'atomes froids, et le cycle propre aux diverses expériences. Les paramètres pouvant être contrôlés temporellement sont listés ci-dessous :

- allumage/ extinction des faisceaux MOT
- allumage/ extinction des faisceaux repompeur
- allumage/ extinction des faisceaux pompes F et B
- allumage/ extinction des faisceaux sonde p
- allumage/ extinction du champ magnétique

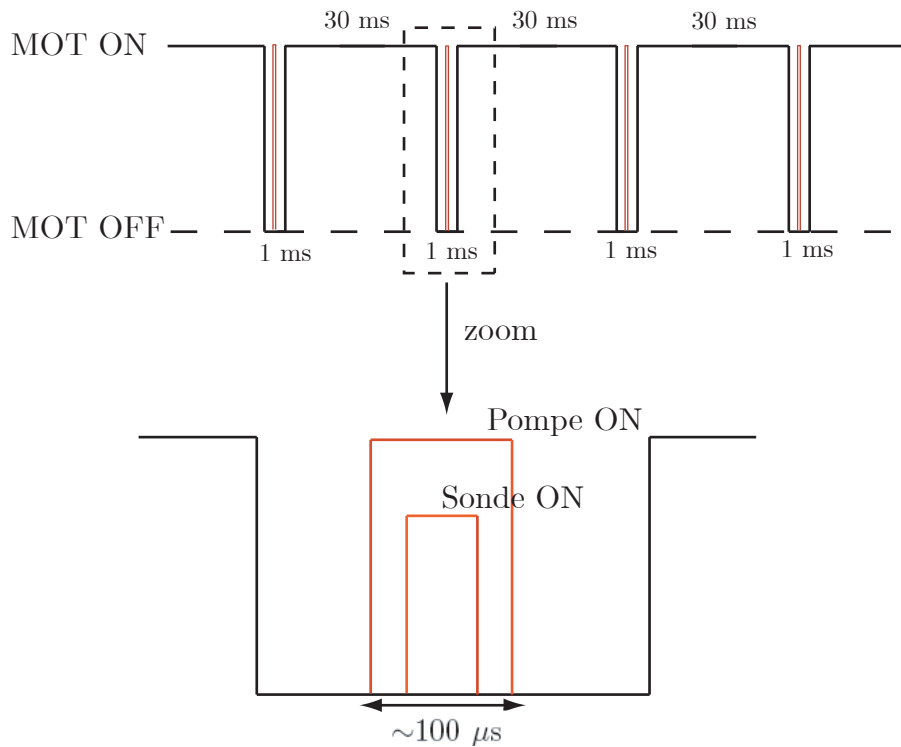


FIG. 3.21 – Séquence temporelle du MOT et de l'expérience. MOT OFF se traduit par la coupure des faisceaux pièges et du gradient de champ magnétique. Le faisceau repompeur reste toujours allumé.

Un exemple de séquence temporelle de l'expérience de spectroscopie pompe-sonde est donné par la figure (3.21). Un cycle dure **30 ms** comprenant la phase de chargement du MOT de **29 ms**, puis une phase d'interrogation de **1 ms** pendant laquelle on effectue la mesure, et pendant laquelle les faisceaux pièges,

ainsi que le champ magnétique sont éteints. C'est dans cette fenêtre de temps que les faisceaux pompes et sondes sont allumés et dirigés sur les atomes.

Nous travaillons avec des temps d'interaction assez courts, $\sim 100 \mu\text{s}$, de manière à minimiser les effets mécaniques des lasers pompes (et sonde dans une moindre mesure) sur le nuage d'atomes. Grâce à la mesure de la fluorescence du nuage d'atomes au cours du temps, nous vérifions que le nombre d'atomes reste constant pendant la durée de l'expérience. Néanmoins, l'effet mécanique existe toujours et des résonances très fines spectralement comme les résonances Raman (partie (3.7.3)) sont affectées : on verra que les résonances Raman sont différentes si l'on utilise le faisceau F ou le faisceau B. Par contre, dans les expériences de mélange à quatre ondes, nous équilibrons les forces de pression de radiation des pompes F et B en les rétroalignant minutieusement, ce qui nous permet de faire durer le temps de l'expérience à quasiment 1ms.

Seuls les faisceaux repompeurs et le champ magnétique de compensation²³ sont gardés allumés pendant toute la durée de l'expérience. Le repompeur reste allumé dans le but de ne pas faire de pompage optique dans le niveau F=2. On garde également le champ magnétique de compensation de manière à toujours travailler à champ magnétique nul.

Enfin la détection des signaux se fait grâce à une photodiode ou un photomultiplicateur²⁴, en effectuant une moyenne sur plusieurs centaines de cycle, afin d'obtenir un bon rapport signal sur bruit.

Dans les paragraphes suivants on présentera les spectres expérimentaux des gains Mollow et Raman. Pour obtenir le gain Mollow, la pompe et la sonde doivent avoir la même polarisation, alors que le gain Raman nécessite que la polarisation de la pompe et la sonde soient croisées. Le mélange à quatre ondes fonctionne dans les deux schémas de polarisation, mais donne de meilleurs résultats en configuration $F//B \perp p$.

3.7.2 Observation du gain Mollow

Le nuage d'atomes est éclairé par un seul laser pompe (**F** ou **B**) et la sonde **p**, avec comme condition de polarisation $F//p$. La pompe est saturante ($s_F > 1$) et la sonde est perturbative ($s_p \ll 1$). Dans ces conditions, notre système se comporte approximativement comme un ensemble d'atomes à 2 niveaux.

On mesure la transmission de la sonde, tout en balayant sa fréquence autour de la fréquence pompe. Les figures (3.22) et (3.23) représentent respectivement les courbes de transmission de la sonde à travers le nuage d'atomes, pompé à résonance atomique et désaccordé de $+1.5\Gamma$ (cette valeur a été choisie car donnait

²³Des bobines supplémentaires à celle du MOT sont ajoutées afin de compenser le champ magnétique terrestre.

²⁴Détecteur sensible et possédant une grande bande passante.

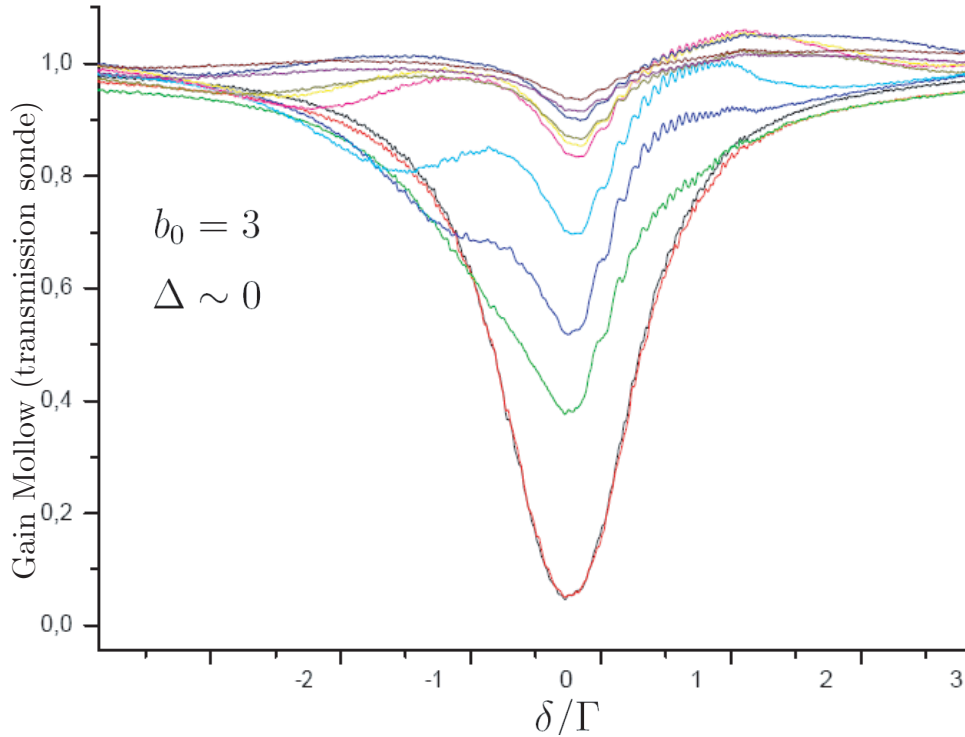


FIG. 3.22 – Transmission de la sonde normalisée en régime de gain Mollow (configuration $F//p$), en fonction de plusieurs valeurs de la puissance pompe. La pompe est très proche de la résonance atomique (incertitude $\sim 1\text{MHz}$), et l'épaisseur optique du nuage à résonance est $b_0 = 3$.

un meilleur signal). C'est dans un régime de faible épaisseur optique ($b_0 = 3$ et 5), que l'on retrouve l'allure des spectres théoriques (voir partie (3.3.2.2), Fig. (3.5) et (3.6)).

La figure (3.22), prise avec la pompe à résonance atomique, ne présente pas exactement le profil symétrique attendu, car nous avons toujours une petite erreur expérimentale sur la valeur exacte de $\Delta_{F,B}$. Nous avons vérifié théoriquement qu'un décalage de 1 MHz par rapport à la résonance atomique suffisait à désymétriser la courbe.

La courbe de dispersion Rayleigh (voir partie (3.3.3)), est bien observable autour de la résonance atomique sur la figure (3.23), et la largeur (de l'ordre de Γ) et position des résonances (en $\sqrt{\Omega_F^2 + \Delta^2}$) suivent bien l'évolution attendue par la théorie de Mollow.

Un régime de faible épaisseur optique est en effet nécessaire afin de pouvoir comparer théorie et expérience, car une forte épaisseur optique ($b_0 \sim 20$) produit les quelques différences suivantes :

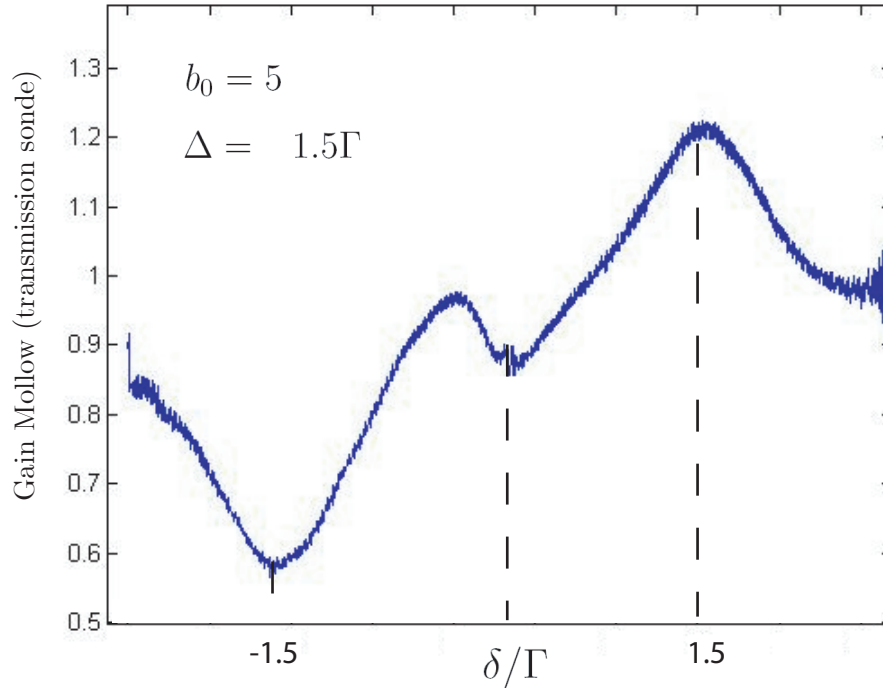


FIG. 3.23 – Transmission de la sonde normalisée en régime de gain Mollow (configuration $F//p$). La pompe est désaccordée de $+1.5\Gamma$ de la résonance atomique, et l'épaisseur optique du nuage à résonance est $b_0 = 5$. On observe un gain d'environ 20%

- L'effet d'écrantage des pompes est important, nécessitant d'augmenter la puissance des pompes. Il advient alors l'effet mécanique des pompes sur les atomes et nous devons réduire le temps de mesure. De plus, lorsque les pompes deviennent très saturantes, la positions des résonances s'écartent, conformément à la théorie, vers des fréquences que nous ne pouvons plus atteindre expérimentalement (limite de décalage en fréquence des AOMs).
- A grande épaisseur optique, les effets de diffusion multiple sont plus importants. Il existe ainsi une saturation du gain due à la rediffusion de l'émission spontanée des photons pompes [111], ce qui explique que la valeur du gain n'augmente pas forcément comme attendue²⁵ avec l'épaisseur optique, et que l'on ne mesure pas des gains aussi importants que prédits par la théorie. Nous avons mesuré au maximum des gains allant de 30% à 50%.

Nous verrons dans le chapitre suivant, qu'il est possible d'utiliser ce gain afin de produire un laser.

²⁵voir partie 3.3, où on a trouvé que $g \propto e^{b_0 \alpha''(\delta) \frac{\omega}{c}}$

De plus, dans le cadre de la réalisation d'un laser aléatoire, il est intéressant de pouvoir produire expérimentalement du gain à une fréquence proche de la résonance atomique, car l'effet de diffusion multiple est alors maximum.

3.7.3 Observation du gain Raman

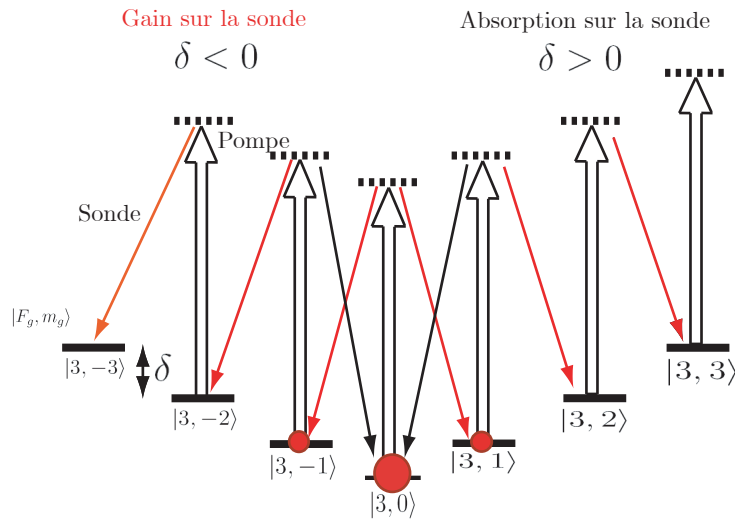


FIG. 3.24 – Schéma de la transition $F=3 \rightarrow F'=4$ de la transition $D2$ du ^{85}Rb . La levée de dégénérescence des sous niveaux Zeeman est due aux déplacements lumineux induits par les pompes ou par un champ magnétique externe (compensation imparfaite du champ magnétique terrestre). Plusieurs transitions Raman à deux photons sont possibles, lorsque l'écart de fréquence des photons sonde avec les photons pompe correspond à l'écart d'énergie entre 2 sous-niveaux Zeeman consécutifs. Suivant la population de chaque sous-niveau Zeeman, on peut avoir du gain ou de l'absorption sur la sonde.

Le montage expérimental est similaire à la partie précédente, seulement on se place dans la configuration $F \perp p$ (F et p ont des polarisations linéaires). On verra plus loin que la configuration $B \perp p$ produit un biais expérimental : les courbes présentées dans la suite seront donc toutes en $F \perp p$. La pompe est saturante ($s_F > 1$) et la sonde est perturbative ($s_p \ll 1$).

Nous avons ainsi la possibilité d'exciter des transitions de la structure Zeeman du niveau $F=3$ et ainsi produire des résonances de type Raman (voir partie 3.4). La condition de résonance Raman est satisfaite lorsque le désaccord pompe-sonde δ est égal à la différence d'énergie entre les deux sous niveaux Zeeman couplés par une transition à deux photons (Fig. 3.24).

La levée de dégénérescence des sous niveaux Zeeman peut être due à un champ magnétique résiduel, ou au déplacement lumineux (ou **light shift**) induit par la pompe. Dans le cas d'un champ magnétique le déplacement d'énergie a pour expression :

$$E_B = g\mu_B m_F |B| \quad (3.93)$$

avec g le facteur de Landé ($g = 1/3$), μ_B le moment magnétique de Bohr ($\mu_B = -1.4$ MHz/Gauss) et m_F est le nombre quantique magnétique.

Le 'light shift' a pour expression dans le cas de grand désaccord $\Delta_{F,B} \gg \Gamma$:

$$E_L = \frac{\Omega_F^2}{4\Delta} \quad (3.94)$$

avec Ω_F la fréquence de Rabi de la pompe.

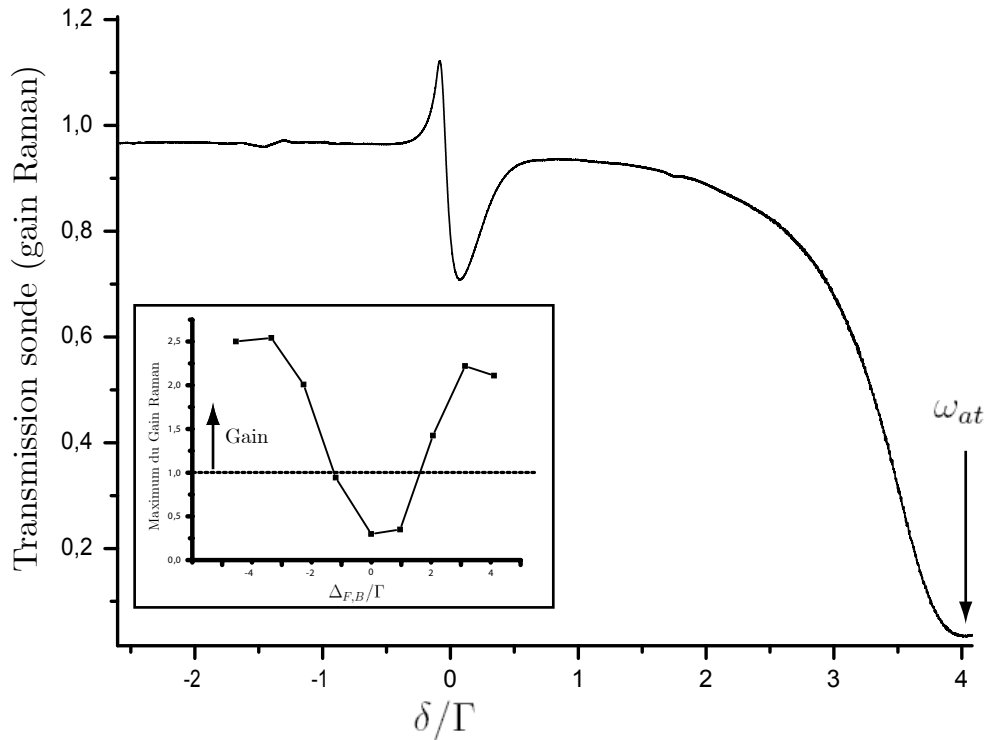


FIG. 3.25 – Courbe de transmission de la sonde à travers le MOT, avec un désaccord pompe $\Delta_{F,B} = -4\Gamma$. Du gain est présent très proche de la résonance pompe-sonde. En insert : Maximum du gain dans le spectre Raman, fonction de plusieurs désaccords pompe de part et d'autre de la résonance atomique, pour une grande épaisseur optique ($b_0 \sim 30$)

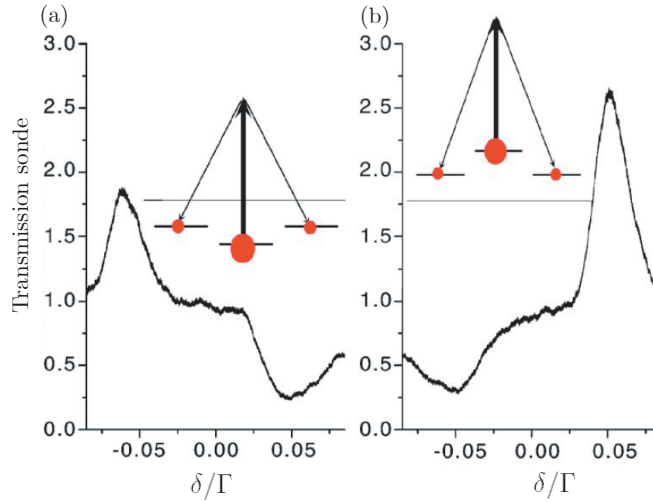


FIG. 3.26 – (a) Spectre de résonance Raman avec une pompe désaccordée dans le rouge de la résonance atomique ($\Delta_{F,B} = -5.2\Gamma$, $s_F = 30$, $s_p = 0.07$). (b) Spectre pour une pompe désaccordée dans la bleu ($\Delta_{F,B} = +5.2\Gamma$, $s_F = 30$, $s_p = 0.07$). Sur chaque figure sont présentés les mécanismes simplifiés de gain.

Expérimentalement les désaccords maximaux que l'on atteint sont environ $\Delta_{F,B} \sim 7\Gamma$, le déplacement lumineux est alors relativement faible, et les résonances Raman sont écartées d'environ 500 kHz, et donc présentent un spectre très fin par rapport au cas des résonances Mollow.

La figure (3.25) représente un spectre de transmission de la sonde, où l'on distingue nettement une résonance Raman dans l'aile droite du profil d'absorption centré en ω_{at} . Cette résonance existe quelque soit le désaccord pompe, mais ne présente du gain que dans les ailes du profil d'absorption : c'est à dire pour des valeurs de $\Delta_{F,B} \geq +3\Gamma$ et $\Delta_{F,B} \leq -3\Gamma$. L'insert de la figure (3.25) représente le maximum de la courbe du gain, tracé en fonction du désaccord pompe : on y voit nettement que l'effet de l'épaisseur optique domine autour de la résonance atomique.

On observe du gain pour un désaccord négatif pompe sonde $\delta = \omega_p - \omega_F < 0$ lorsque la pompe est désaccordée dans le rouge ($\Delta_{F,B} < 0$), et pour $\delta > 0$ lorsque la pompe est désaccordée dans le bleu ($\Delta_{F,B} > 0$) (Fig. (3.26)). Cette inversion de la figure de gain vient du fait que dans une transition $F \rightarrow F' = F + 1$, le

sous niveau Zeeman le plus déplacé, est également celui le plus peuplé.

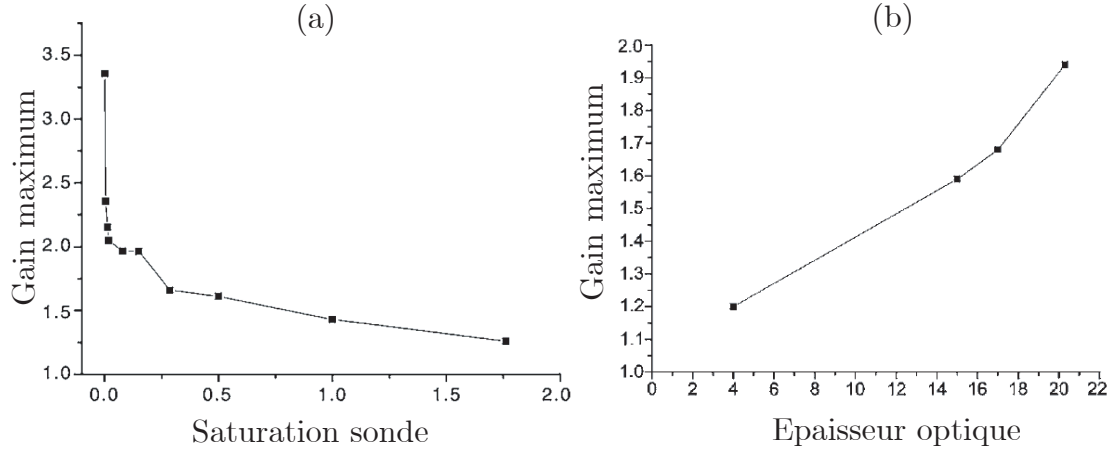


FIG. 3.27 – (a) Saturation du gain Raman. Chaque point représente le maximum du gain Raman pour différentes intensités de la sonde, et à paramètre de pompe fixe ($s_F = 6.8$ et $\Delta_P = -3\Gamma$). Le gain maximal est observé pour des saturations de la sonde petites et diminue de façon quasi-exponentielle. (b) Maximum du gain Raman en fonction de l'épaisseur optique du nuage à résonance. On fait varier l'épaisseur optique en variant l'intensité du laser repompeur afin de changer le nombre d'atomes piégés. (paramètres : $s_F = 30$, $\Delta_P = -3\Gamma$, $s_p = 0.07$)

On poursuit par une étude systématique des caractéristiques de la courbe de gain Raman :

- La largeur des résonances est définie en première approximation par $\Gamma' \sim \left(\frac{\Omega_F^2}{\Delta_{F,B}^2} \right)$, et leur position respective par rapport à la résonance varie en $\frac{\Omega_F^2}{\Delta_{F,B}}$ [99].
- Nous travaillons à grand désaccord, donc l'épaisseur optique effective du nuage²⁶, et l'effet de la diffusion multiple est plus faible que dans le cas du gain Mollow où on se situe proche de résonance. Ainsi le gain évolue positivement en fonction de l'épaisseur optique du nuage dans la gamme des paramètres accessibles expérimentalement (Fig. (3.27), (b)). Néanmoins, le nombre de points expérimentaux ne nous permet pas de conclure sur l'évolution exponentielle du gain en fonction de l'épaisseur optique.
- Nous avons également vérifié l'effet de saturation du gain (Fig. 3.27, (a)), et on conclut qu'une intensité sonde plus petite que $0.01I_{sat}$ donne un gain

²⁶On rappelle que $b(\Delta_{F,B}) = \frac{b_0}{1+4\Delta_{F,B}^2/\Gamma^2}$

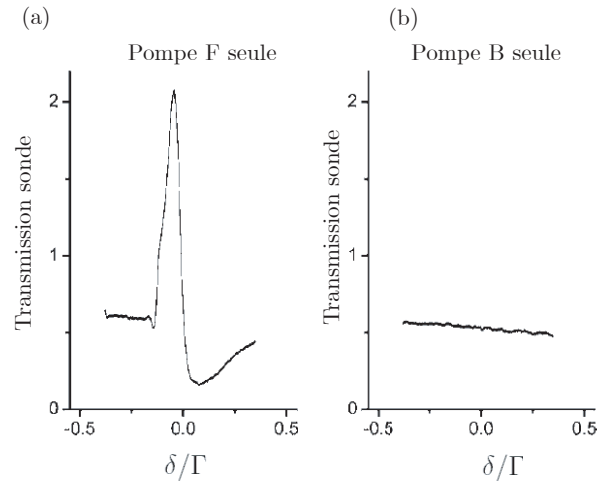


FIG. 3.28 – Spectre de gain Raman en présence de (a) la pompe F seule, et (b) de la pompe B seule. Dans le cas de la pompe B seule, on observe pas de structure Raman autour de la résonance pompe-sonde.

optimal. On remarquera l'efficacité importante du gain Raman, où l'on peut enregistrer des gains plus de 300 %.

- L'effet Doppler, et l'effet mécanique des pompes peut avoir des conséquences dramatiques sur le gain. La valeur de l'effet Doppler qui décale la condition de résonance de $\vec{\mathbf{k}} \cdot \vec{\mathbf{v}}$ est comparable à la largeur des résonances Raman, c'est à dire quelques centaines de kHz. La pompe F effectue un petit angle avec la sonde \mathbf{p} , donc les effets sont négligeables. Par contre, la pompe B, qui se propage dans le sens inverse du faisceau sonde, induit un effet Doppler relatif pompe-sonde plus important, car l'angle entre \mathbf{p} et \mathbf{B} est grand (voir Fig. 3.20). Cela implique une plus grande dépendance envers les effets mécaniques, liés à un allumage des pompes trop tôt avant la mesure des spectres. Les conditions de résonance pompes-sonde sont donc modifiées, et la courbe de gain est décalée en fréquence. Sur la figure (3.28), nous avons comparé le spectre obtenu avec la pompe F ou la pompe B. Avec la pompe B, la résonance Raman est décalée et sort des limites de balayage pour être observée. Il s'agit d'un biais expérimental que nous évoquerons à plusieurs reprises dans la suite.

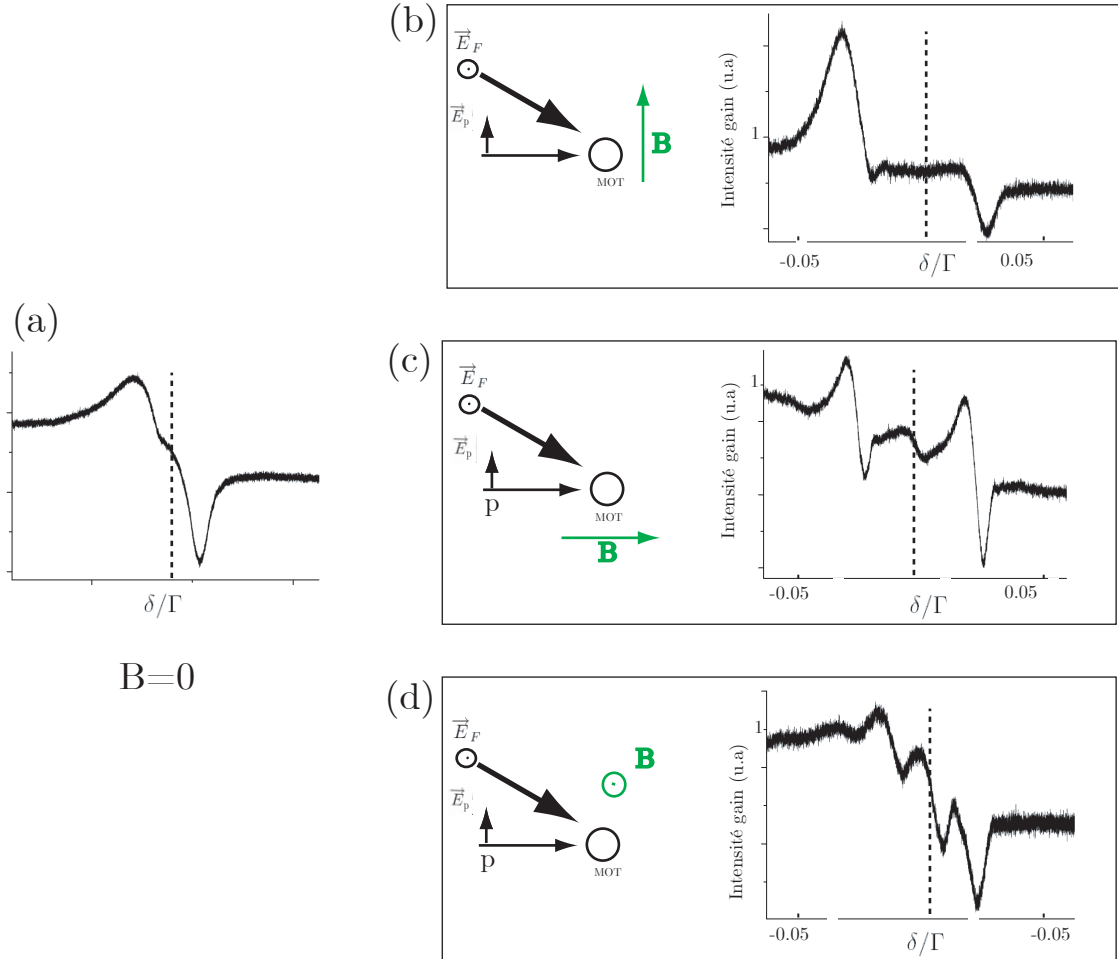


FIG. 3.29 – (a) spectre Raman à champ magnétique nul. (b) on applique un champ magnétique $\vec{B} //$, et (c), (d) \perp au champ sonde \vec{E}_p . La valeur du champ magnétique appliqué est de l'ordre de $30 \cdot 10^{-3}$ Gauss.

- Afin de vérifier que l'on peut écarter la position des résonances en faisant varier l'écart d'énergie entre les sous-niveaux Zeeman, nous avons choisi d'appliquer un champ magnétique externe pulsé pendant la durée de la mesure. Comme on voit sur la figure (3.29), la position des résonances est modifiée lorsque l'on applique ce champ magnétique, et le résultat est qualitativement différent selon la direction de propagation du champ : On distingue deux cas : $\vec{B} // \vec{E}_F \perp \vec{E}_p$ (Fig. (3.29) (c)), et $\vec{B} // \vec{E}_p \perp \vec{E}_F$ (Fig. (3.29) (b) et (d)).

Dans cette partie, nous avons étudié quelques propriétés des résonances Raman. L'avantage de ce processus est de présenter un gain important et très fin spectralement. On verra dans le chapitre suivant, que le faisceau Raman amplifié peut interférer constructivement avec le faisceau issu par mélange à quatre ondes, augmentant la valeur du gain. De plus, on montrera que le gain Raman permet de produire un laser dont la largeur spectrale est très fine.

Dans la suite et fin de ce chapitre, on montrera quelques résultats expérimentaux sur le mélange à quatre ondes.

3.7.4 Mélange à quatre ondes dégénéré et non dégénéré

On réalise expérimentalement le mélange à quatre ondes en pompant le nuage d'atomes froids grâce à deux pompes \mathbf{F} et \mathbf{B} rétro-alignées. Le faisceau conjugué de mélange à quatre ondes est détecté par réflexion (Fig. 3.20).

Nous avons la possibilité de réaliser les schémas de polarisation $F//B//p$ et $F//B \perp p$, et balayer ou non la fréquence de la sonde, donc nous placer dans la configuration du mélange à quatre ondes **dégénéré** (voir partie (3.5.2)) et **non dégénéré** (voir partie (3.5.3)).

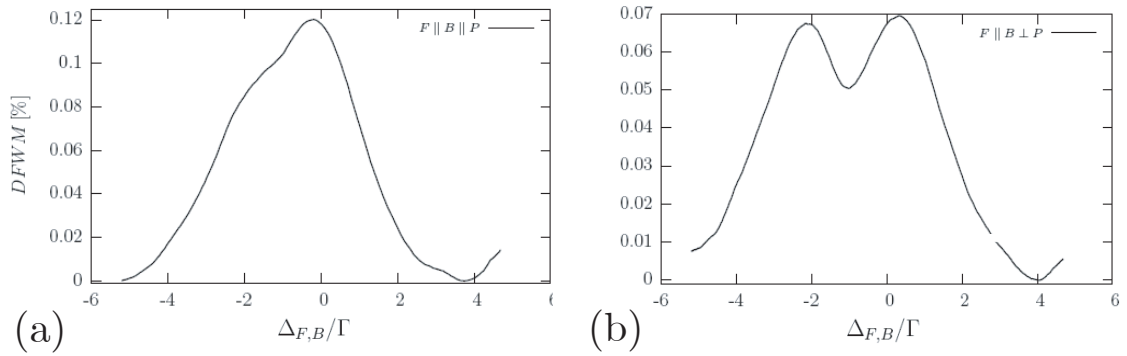


FIG. 3.30 – Intensité du coefficient de réflexion du faisceau de mélange à quatre ondes, en fonction du désaccord $\Delta_{F,B}$, dans le cas $F//B//p$ (a) et $F//B \perp p$ (b).

Mélange à quatre ondes dégénéré (DFWM)

La figure (3.30) représente deux courbes de mélange à quatre ondes prises dans des conditions différentes de polarisation $F//B//p$, et $F//B \perp p$. Cette expérience illustre la différence qualitative de comportement du signal à épaisseur optique et intensité pompe-sonde constante, selon que l'on considère le cas d'un atome à deux niveaux d'énergie, ou à multi-niveaux : une ligne d'absorption apparaît autour de résonance atomique dans le cas \perp , et est inexistante dans le cas $//$ [64].

Mélange à quatre ondes non dégénéré (NDFWM)

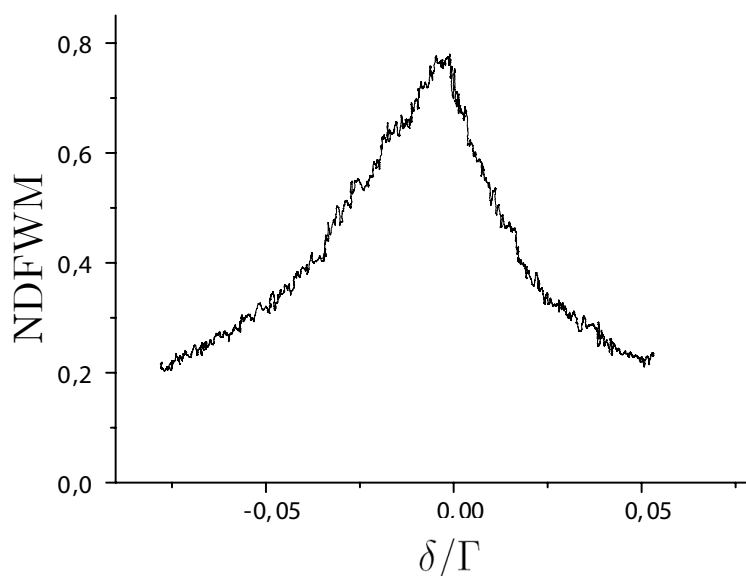


FIG. 3.31 – Spectre de mélange à 4 ondes non dégénéré, avec les pompes en configuration $F//B \perp p$. Les pompes ont un désaccord de $\Delta_P = -4.8\Gamma$. L'intensité des faisceaux pompes est saturante ($s_{F,B} = 23$) et la sonde est faible ($s_p = 0.01$)

Nous avons la possibilité de faire varier le désaccord relatif pompe-sonde noté Δ , et donc d'obtenir un spectre de mélange à quatre ondes non dégénéré. Des calculs théoriques dans ce cas précis ont été réalisés.

À $\Delta_{F,B}$ constant, la figure (3.31) représente un spectre pris dans la configuration $F//B \perp p$. Le coefficient de réflexion est toujours maximum à $\delta = 0$, et est très fin spectralement. En fonction de $\Delta_{F,B}$, le maximum présente les mêmes variations que la courbe (3.30 (a)), c'est à dire possède un maximum en fonction de $\Delta_{F,B}$ lorsque la pompe est désaccordée de résonance atomique.

Nous avons enregistré dans les conditions de $\Delta_{F,B} \gg \Gamma$ ($\sim 5\Gamma$), et faisceaux pompes assez saturants ($s \sim 30$), un coefficient de réflexion proche de 100%, représentant quelques dizaines de μW .

Dans le prochain paragraphe nous utiliserons cette propriété intéressante, permettant d'utiliser le processus mélange à quatre ondes, dans le but de réaliser une cavité laser, où le signal conjugué pourra participer au gain. Le mélange à quatre ondes est également utilisé dans certaines expériences comme source d'états non classiques de la lumière [112, 113].

3.7.5 Publication : “Bunching-induced asymmetry in degenerate four-wave mixing with cold atoms”

Bunching-induced asymmetry in degenerate four-wave mixing with cold atomsG. L. Gattobigio,^{1,2} F. Michaud,¹ J. Javaloyes,³ J. W. R. Tabosa,⁴ and R. Kaiser¹¹*Institut Non Linéaire de Nice, UMR 6618 CNRS, 1361 route des Lucioles, F-06560 Valbonne, France*²*Dipartimento di Fisica dell'Università di Ferrara and INFN-Sezione di Ferrara, 44100 Ferrara, Italy*³*Department de Física Interdisciplinar, IMEDEA (CSIC-UIB), C/Miquel Marqués, 21, E-07190 Esporles, Spain*⁴*Departamento de Física, Universidade Federal de Pernambuco, Av. Professor Luiz Freire,**s/n Cidade Universitaria, 50670-901, Recife-PE, Brasil*

(Received 1 June 2006; published 12 October 2006)

We have investigated degenerate four-wave mixing in a sample of cold rubidium atoms. A red-blue asymmetry is observed for high intensities of the pumping beams. This asymmetry is explained by the spatial bunching of the atoms in the nodes or antinodes of the strong standing wave of the pump beams. This explanation is confirmed by different experimental configurations and by numerical simulations.

DOI: [10.1103/PhysRevA.74.043407](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.74.043407)

PACS number(s): 32.80.Pj, 42.50.Gy, 03.67.-a

Four-wave mixing (FWM) has been extensively studied in the past three decades and constitutes a very powerful spectroscopic technique both in frequency and time domain [1]. From a practical perspective, the possibility of performing wave-front reconstruction is one of the most fascinating applications of this nonlinear optical process. The use of cold atoms to obtain FWM optical phase conjugation benefits from the reduced atomic motion where broadening mechanisms such as transit time broadening and second-order Doppler effect can be completely eliminated. This allows us to obtain wave-front reconstruction over a large angular aperture between the pump and the probe beams [2,3]. In this regime one can also directly compare theoretical predictions with experiments without the need to perform any velocity averaging. For instance, the polarization dependence of the nondegenerate FWM spectrum has been measured in cold cesium atoms which is in complete agreement with the theoretical predictions [4]. Another interesting application associated with the FWM process is the possibility to investigate the atomic dynamics either in room temperature vapors [5] or in the domain of ultracold temperatures associated with laser cooled atoms. In particular, degenerate and nondegenerate FWM were employed to probe the quantized atomic motion of atoms in optical lattice [6,7]. The total FWM signal arises from the coherent superposition of the fields generated at different position along the nonlinear medium. Actually, for a spatially uniform atomic medium, this leads to the well-known phase matching condition which determines the propagation direction of the generated field in terms of the wave vectors of the incident waves. However, this situation is rather changed when the medium presents some spatial modulation where the generated field can pick up a wave-vector component associated with the Fourier decomposition of the spatial modulation of the medium, therefore affecting the overall efficiency of the nonlinear process and changing the propagation direction of the generated wave [8]. In this work we experimentally investigate the degenerate four-wave mixing (DFWM) process [9] in a sample of cold rubidium atoms both in the time and in the frequency domain using different polarization configurations for the DFWM beams. Note that we study DFWM where the frequency of both pump beams and the probe beam are identical, in contrast to many pump-probe spectroscopy experi-

ments where the probe frequency has been scanned around the pump frequency. In most of the experiments using cold atoms, the pump beams have a fixed (red) detuning and the observed subnatural linewidths in nearly degenerate FWM have been explained by the dynamics of atoms in dissipative optical lattices [10]. We have registered the DFWM spectra for positive (blue) and negative (red) detuning of the pump and probe beams and observed an unexpected red-blue asymmetry for high intensity of the pumping beams. This asymmetry in the FWM spectrum can be explained by the presence of different spatial atomic distributions on the red and on the blue side of the atomic resonance. We associate this atom bunching to the dipole forces in strong fields with modulated intensity.

The experiment was performed in a sample of cold rubidium atoms obtained from magneto-optical trap (MOT). Our MOT scheme has been described elsewhere [11] and allows a time controlled switching of the trapping and repumping beams as well as the magnetic quadrupole field. The atom number can be adjusted in this experiment by a variable intensity of the repumping laser. Unless otherwise specified, the results shown in this paper have been obtained with a moderate number of atoms ($\sim 10^9$) as more complex collective effects appear for the maximum number of atoms, of the order of 10^{10} , we are able to trap. The DFWM beams are provided by the same laser (frequency ω_L) and can be controlled in time to adjust the pulse duration. We employ the conventional backward DFWM configuration with two independent (not retroreflected) counterpropagating pumping beams (forward F and backward B). Figure 1(a) shows a simplified scheme of the experimental configuration. The angle between the probe (P) and forward beam (F) has been maintained constant at around 0.2 rad. The waist of the laser beams ($w=6$ mm) is slightly larger than the size of our cloud. The polarization of the DFWM beams can be adjusted by appropriate wave plates and polarizing cubes placed along the beam paths. Table I summarizes the different combinations of polarization we have used for this work. In Fig. 1(b) we show the timing sequence of the experiment. First the atoms are collected and cooled for about 20 ms, then the MOT trapping beams and the quadrupole magnetic field are switched off for about 1 ms. During this time window, the

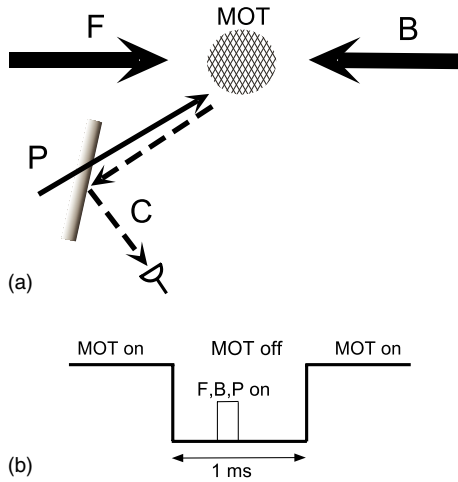


FIG. 1. (Color online) (a) Schematic setup of the experiment: two strong counterpropagating pump beams (F and B) and one weak probe beam (P) yield the conjugate four-wave mixing signal (C); (b) timing of the experiment, the MOT beams and magnetic fields are switched off during the short DFM pulse.

DFWM beams are switched on and the generated phase conjugated beam, after being reflected off a beam splitter, is detected by a fast photomultiplier. The duration ΔT of the DFM beam (in the range of 20 to 40 μs) has been adjusted to be short enough so that the strong pump beams do not influence the atom number at the turn off of each MOT sequence. The repumping laser of the MOT has been kept on during the DFM sequence, in order to avoid losses of interacting atoms by optical hyperfine pumping. The DFM spectra shown in this paper correspond to an integration over interaction times of several μs typically after 20 μs of interaction. The precise value of the DFM depends on the choice of these values, but the qualitative features discussed in this work are robust against a decent variation of these parameters.

We have first analyzed the case where the pump and probe beams have orthogonal linear polarizations $F\parallel B\perp P$, as this choice of polarization is known to yield large DFM signals [4]. For this configuration, the signal originates from a coherence grating induced in the Zeeman sublevels by the orthogonal polarization components of the probe and pump fields. We record the DFM spectrum as a function of the common frequency detuning $\delta = \omega_L - \omega_{at}$ of DFM beams in relation to the resonance frequency $5S_{1/2}$, $F_g = 3 - 5P_{3/2}$, $F_e = 4$ of the D_2 transition of rubidium ^{85}Rb (wavelength $\lambda = \frac{2\pi c}{k} = \frac{2\pi c}{\omega_{at}} = 780$ nm, width of the resonance line

TABLE I. Various polarization configurations used in this paper.

	F	B	P
$F\parallel B\parallel P$	\uparrow	\uparrow	\uparrow
$F\parallel B\perp P$	\uparrow	\uparrow	\leftrightarrow
$\sigma^+ - \sigma^+$	\circ	\circ	\uparrow
$\sigma^+ - \sigma^-$	\circ	\circ	\downarrow

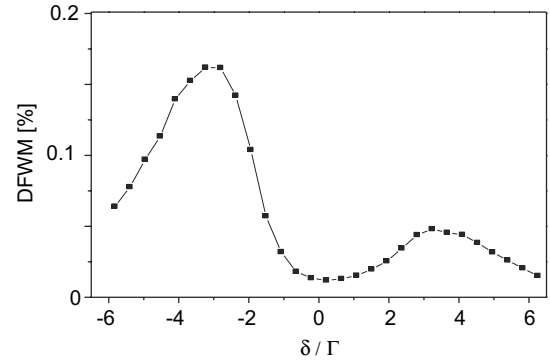


FIG. 2. DFM spectrum for orthogonal polarizations ($F\parallel B\perp P$) and strong saturation of the pump beams, $s=5$.

$\Gamma = 5.89$ MHz, saturation intensity $I_{\text{sat}} = 1.6$ mW/cm 2). Assuming a uniform distribution of the atoms among the various Zeeman sublevels, we define the on-resonance saturation parameter $s = \frac{3}{7} \frac{I}{I_{\text{sat}}}$ by including an average over the Clebsch-Gordan coefficients.

The spectrum obtained for pump intensities corresponding to a saturating parameter of about $s=5$ for the F and B pump beams and $s_P=0.5$ for the probe beam, is shown in Fig. 2 and consists of a double peak centered around the detuning $\delta = 0$. Note that the precise values (including the shape) of these DFM spectra depend on the precise time window used for the evaluation, as illustrated by time resolved results shown below. The physical origin of this double peak structure for the $F\parallel B\perp P$ and $\sigma^+ - \sigma^-$ configurations lies in a combination of the saturation induced by the strong pump field and line center absorption due to the larger optical thickness around the resonance [12,13]. We have verified that with a reduced atoms number ($\sim 10^8$) the line center absorption vanishes and there is no double peak structure for the $F\parallel B\parallel P$ and the $\sigma^+ - \sigma^+$ configuration for saturation values up to $s=30$. As expected a double peak structure however remains for the $\sigma^+ - \sigma^-$ configuration [14]. Another possibility of double peak structure can be obtained for large probe beam intensities [15], but can be excluded with our choice of probe beam intensities. Note also that for DFM in Doppler broadened hot atomic vapors, the average over the various velocity classes leads to a splitting even in the $F\parallel B\parallel P$ configuration. This can be understood by the fact that in the rest frame for each velocity class, the laser frequency of the pump beams are shifted by the Doppler effect and one has a situation which is no longer DFM but nondegenerate FWM [14].

A more surprising feature however is the clear red-blue asymmetry: the DFM signal is clearly larger for negative (red) detuning than for positive (blue) detuning. A model based on only the internal degrees of freedom of the individual atoms, taking into account all Zeeman sublevels of the relevant ground ($5S_{1/2}, F_g=3$) and excited ($5P_{3/2}, F_e=4$) states cannot predict such a red-blue asymmetry [9,14,16]. We neglect the influence of other hyperfine states in the excited level, separated by more than 20 linewidths, and the ground state, even further detuned, even though subtle polarization effects due to the neighboring excited state levels

have been reported [17]. As our red-blue asymmetry has been robust against slight changes in alignment, intensity imbalance and atom number, we do not think that a change in the index of refraction of the effective medium [12] nor self-focusing [13] plays an important role in our experimental observation. We have however observed that for longer interaction times (up to 800 μs) the number of atoms after each MOT period of 20 ms (as monitored by the fluorescence signal at the end of the MOT period) is reduced for blue detuning of the pump beams. This loss of atoms is attributed to classical Doppler heating of atoms. For long enough interaction times (typically for DFWM pulses exceeding 100 μs), atoms can be accelerated beyond the velocity capture range of the MOT and cannot be recaptured by the next MOT period. This effect can also give rise to a more trivial red-blue asymmetry and must be ruled out when studying the bunching induced asymmetry.

As discussed below we attribute the asymmetry observed for short interaction times to the bunching of atoms along the standing wave pattern associated with the counterpropagating pumping beams. Dipole forces acting on atoms are known to change sign with the atom-laser detuning as the light shift induced by the laser depends on its detuning [18]. For large Rabi frequencies atoms are high field seekers at red detuning and low field seekers at blue detunings (as used, e.g., in atom mirrors [19]). The red-blue asymmetry in the DFWM signal presented in this paper appears when atoms are moving in an intense modulated standing wave with a light shift comparable to the kinetic energy of the atoms [20].

In order to investigate the origin of this asymmetry experimentally and theoretically, we have performed a number of control experiments which allow for clearer signatures corresponding to this interpretation and an easier comparison to theory. We have thus performed experiments with circular polarized pump beams. The pump beams F and B have either the same circular polarization ($\sigma^+-\sigma^+$) or opposite circular polarizations ($\sigma^+-\sigma^-$). As the probe beam for the ($\sigma^+-\sigma^-$) configuration has been kept linear (see Table I), the signal originates from a coherence grating induced in the Zeeman sublevels by the orthogonal polarization components of the probe and pump fields. Note that a minimal description for the ($\sigma^+-\sigma^-$) and the $F \perp B \parallel P$ configurations require a three-level system, whereas the $F \parallel B \perp P$ is better described by a four-level system. On the other side, the ($\sigma^+-\sigma^+$) and the $F \parallel B \parallel P$ configuration are well described by two-level systems. A quantitative comparison between the various polarization configurations is hence not possible. The important point however is the change in the intensity modulation for these two configurations. In the $\sigma^+-\sigma^+$ configuration, the polarization of the field is σ^+ and constant in space but the amplitude of the local electric field is strongly modulated, and corresponding strong dipole forces will act onto the atoms. In the $\sigma^+-\sigma^-$ configuration however, for identical intensities for the F and B beams, the local polarization is linear (with a spatially rotating axis) but the amplitude of this field is constant in space (neglecting at first order the influence of the probe beam). In this $\sigma^+-\sigma^-$ situation the light shift of the atoms is not modulated in space and no dipole force is expected to occur. We thus predict a red-blue asymmetry for the $\sigma^+-\sigma^+$ configuration but we do not expect any asymmetry for the $\sigma^+-\sigma^-$ configuration.

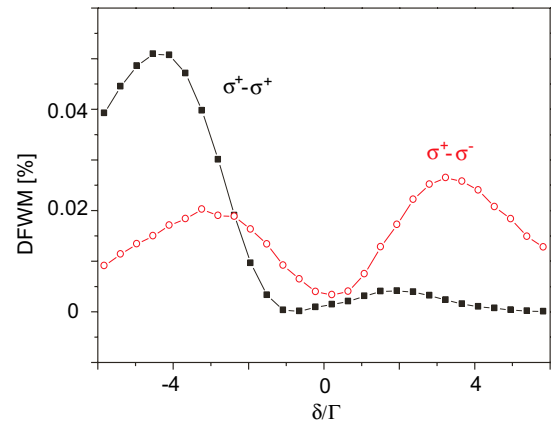


FIG. 3. (Color online) DFWM spectrum for circular polarizations of the pump beams, $\sigma^+-\sigma^+$ (full squares) and $\sigma^+-\sigma^-$ (open circles); pump beam saturation, $s=3.3$.

This is what we have observed in the experiment as shown in Fig. 3. We have recorded the DFWM spectrum for the two circular polarization configuration of the pumping beams in the regime of strong pump saturation ($s=3.3$). As can be seen in Fig. 3, the red-blue asymmetry is strongly reduced for the case where the pump beams have opposite circular polarization and where no modulation of the light shift due to the pump beams is expected. This result strongly supports our explanation that mechanical effects based on dipole forces, absent in the $\sigma^+-\sigma^-$ configuration, are at the origin of the observed red-blue asymmetry.

One should however bear in mind the mechanism for DFWM is different for these two polarization configurations. Indeed, in the $\sigma^+-\sigma^-$ case, the strong pump beams F and B directly induce a coupling between different Zeeman sublevels, which are then probed by the weaker beam P . Comparing our $\sigma^+-\sigma^-$ case, with linear probe polarization with a configuration using $F \perp B \parallel P$ would involve more closely related four-wave mixing mechanisms, as both configuration should be well described with a four-level model. One can thus compare the results of the $\sigma^+-\sigma^-$ shown in Fig. 3 to those of Fig. 2. The important point is the change in the intensity modulation for these two configurations. In the $F \parallel B \perp P$ configuration, the polarization of the strong pump field is linear and constant in space but the amplitude of the local electric field is strongly modulated, with corresponding strong dipole forces acting on the atoms. However even such experiments would only allow for qualitative comparison, as optical pumping and the relative polarization of the probe-pump beams would not be the same. We have therefore chosen to use a comparison using a minimal change in the experiment (switching polarization of the B beam from σ^+ to σ^-). The main result is that we have systematically observed a strong red-blue asymmetry for strong enough pump beam for all polarization configurations, except for our $\sigma^+-\sigma^-$ configuration, where we expect no spatial modulation of the light shift induced by the pump beams.

In order to further investigate the consequence of such mechanical effects on the DFWM signal, we have performed experiments, specifically designed for an easier comparison with theoretical simulations. Indeed, when the spatial distri-

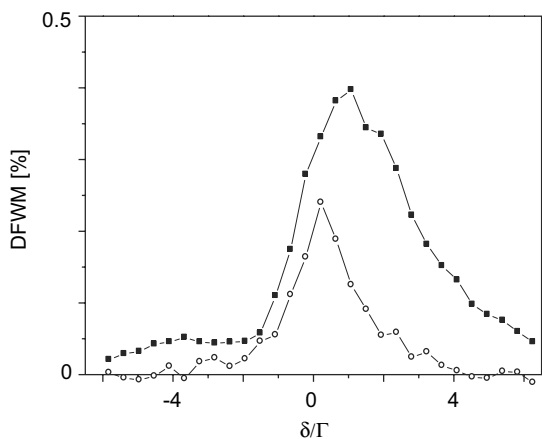


FIG. 4. DFWM spectrum for parallel polarizations of the pump and probe beams, $F\parallel B\parallel P$. Weak pump intensity $s=0.4$ (rescaled $\times 100$) (open circles) and strong pump intensity $s=4$ (full squares).

bution of the atoms is no longer uniform, one must take into consideration not only the coherences (Zeeman or optical coherences) but also the density modulation of the atoms. Let us, e.g., consider the situation with a strong spatial intensity modulation (e.g., $F\parallel B\perp P$, $F\parallel B\parallel P$ or $\sigma^+-\sigma^+$). As the intensity of the pump beam is increased up to the point when the induced light shifts are larger than the kinetic energy of the atoms, dipole forces are important enough to induce a bunching of the atoms. One now must evaluate whether bunching at the antinodes of the standing wave (for red detuning) will increase or decrease the DFWM signal in comparison with bunching at the nodes of the standing wave (for blue detuning). The theoretical description of DFWM including these effects of the external degrees of freedom of the atoms is somehow less complex if one considers all polarizations for both pump and probe field parallel, $F\parallel B\parallel P$. In contrast to the previous configurations, the signal now originates from an optical coherence grating of two-level atoms and Zeeman coherences in the ground state can be neglected. This allows for an easier numerical simulation of the experimental situation. In the low saturation limit, one thus expects an increased DFWM when atoms are bunched around the antinodes of the standing wave, increasing the average local intensity the atoms experience. This argument is supported by numerical simulations presented below. The experimental result are shown in Fig. 4.

In contrast to the orthogonal and circular configurations, where Zeeman coherences are responsible for the DFWM signal, no splitting is observed for the parallel configuration, as expected for two-level atoms at rest [9]. For low saturation of the pump beams, the DFWM is symmetrically centered around $\delta=0$ (Fig. 4, open circles). For larger saturation however, the maximum of the DFWM signal is shifted towards the blue ($\delta>0$) side of the spectrum (Fig. 4, full squares). However this blueshift does not correspond to the asymmetry predicted above. By changing the saturation parameter of the probe beam and by carefully balancing the intensities of the forward and backward pump beams, we have verified in a series of experiments, that this blueshift is not caused by a residual light pressure of the pump and probe

beam [21]. In fact, this blueshift for larger saturation parameter is due to the bleaching (saturation) of the nonlinearity of the atoms [8]. Indeed, for a two level atom, a perturbative description of the nonlinearity is only valid at low saturation of the atomic transition. For too large saturation, the nonlinearity will decrease again with a total bleaching of the transition for infinite saturation. When the saturation parameter of the pump beam exceeds a certain threshold, an increase of the intensity of the pump beams will lead to a decrease of the nonlinear DFWM signal. Correspondingly a bunching of atoms at the antinodes of the standing wave (high field seekers for red detuning) will not increase but decrease the DFWM in this regime. On the other hand, bunching of the atoms (by dipole forces) at the nodes of the standing wave (low field seekers for blue detuning) will lead to an increase of the DFWM. This is what we observe in our experiment. Note that for the experiments where a center line dip is present, the asymmetry is more striking at larger values of detuning, where this bleaching of the atomic response does not occur. This is how we explain the larger DFWM for red detuning in Figs. 2 and 3. A redshift of the DFWM around resonance would be expected for lower saturation parameters. However, the bunching of atoms due to the dipole forces of the pump field also depends on the saturation parameter and we cannot produce significant bunching in the low intensity limit where a redshift is expected. As detailed below we have confirmed these effects by numerical simulations using a two-level model for the atoms.

Before turning to the description of our numerical simulations, let us present further experimental results for the $F\parallel B\parallel P$ configuration. As we can register not only the DFWM signal at the end of the short pulse (all results presented above) but also the time resolved DFWM, the dynamics of DFWM can be probed. This is illustrated in Fig. 5.

As one can see in these figures, the DFWM is almost independent of time for low saturation. This is consistent with the explanation that for these values of the saturation parameter no bunching is obtained. Also the values for red and blue detuning are similar, as already shown in Fig. 4. For larger pump intensities however, one can see the red-blue asymmetry already shown in Fig. 4, but one can also clearly distinguish a strong time dependence (with initial oscillations) of the DFWM. This time dependence is another confirmation of the bunching induced DFWM as it is consistent with the time scales of the spatial motion of the atoms experiencing strong dipole forces in the modulated light field. This time-dependent DFWM could be exploited to measure the time-dependent bunching as explained below. Note that due to this strong time dependence for large saturation values, a more precise comparison between the various polarization configurations would require a time resolved comparison. This complexity will be illustrated in Fig. 6 for the results of our numerical simulations. Furthermore for large values of the saturation parameter there is not always a steady state, as one can lose atoms by Doppler heating. This makes a complete quantitative analysis almost impossible and we have thus extracted the results shown in Figs. 2–4 from a time window ranging from 10 to 40 μs . In order to further support our analysis of a bunching induced red-blue asymmetry, we have performed numerical simulations to es-

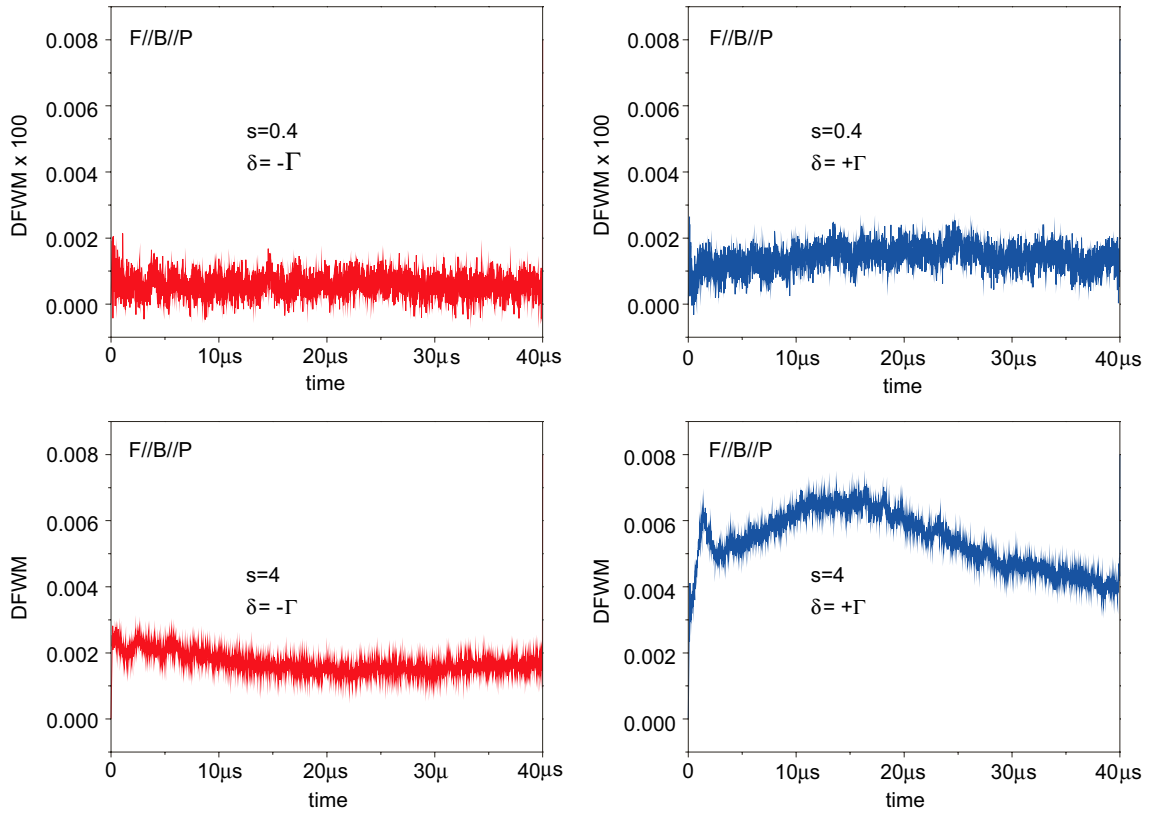


FIG. 5. (Color online) Time resolved DFWM signal for linear polarizations of the pump and probe beams, $F\parallel B\parallel P$. Upper curves, low saturation $s=0.4$ for red ($\delta=-\Gamma$, left curve) and blue ($\delta=\Gamma$, left curve) detuning. Lower curves, high saturation $s=4$ for red ($\delta=-\Gamma$, left curve) and blue ($\delta=\Gamma$, left curve) detuning. Note the change of the vertical scale due to increased DFWM for larger saturation.

timate the spatial ordering induced by the strong standing light wave. Following the method described in Ref. [22], we used the dressed state basis and solved the coupled Heisenberg equations for the position, momentum, optical coherence, and populations for each atom. The reversible dynamics for each particle is interrupted by stochastic events, corresponding to stimulated emissions between dressed states and thus to a reset of the atomic internal degree of freedoms. In our numerical simulation, we have neglected the retroactions of the atoms onto the pump fields which could occur due to the stimulated or spontaneous radiation of the atoms. Such interaction can give rise to interesting col-

lective features [23] which are however not in the scope of this paper. Moreover, this approximation is justified by the relatively modest number of atoms used in the experiment. We expect the transition toward a collective regime to appear only above a critical value of atom number. Indeed, in the experiments we encountered more complex collective behavior for larger atomic clouds, when $N_{at} > 10^{10}$.

In order to characterize the atomic ensemble, we defined the bunching parameter within the cloud b as the harmonic modulation of the atomic density distribution $\rho(z)$ at half the wavelength,

$$b = \frac{k}{2\pi} \int_0^{2\pi/k} \rho(z) e^{2ikz} dz. \quad (1)$$

As expected, the bunching parameter b is an increasing function of the pump intensities. By an appropriate choice of the origin $z=0$ and of the relative phase between the two pump beams F and B , we impose the standing wave to be proportional to $\sin(kz)$. Accordingly, due to the mirror symmetry $(z, F, B) \rightarrow (-z, B, F)$ of the problem, the bunching b can be considered as a real valued quantity, up to finite size scaling fluctuations. The expected behavior consisting of bunching at the nodes (field minima) for blue detuning ($\delta > 0$) correspond to $b > 0$, while bunching at the antinodes (field maxima) for red detuning ($\delta < 0$) correspond to $b < 0$. In Fig. 6 we show the resulting time evolution of b as a function of

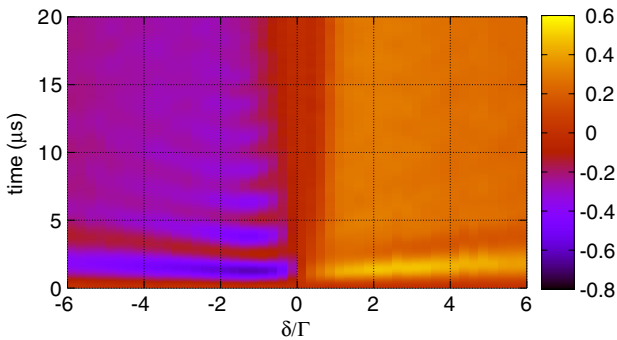


FIG. 6. (Color online) Numerical simulation of the bunching for a two level atom with a pump beam saturation of $s=4$.

detuning for an initial temperature of the cloud of $T = 100 \mu\text{K}$, a saturation parameter $s=4$ and an atom number $N=4096$. One can see that the bunching takes a non-negligible value in a broad range of detuning values. However, it is vanishing in the vicinity of $\delta=0$ since in this case the dipole forces are too weak to sustain the periodic modulation against spontaneous emission recoils. Generalizing the calculations by Ref. [9], by explicitly including the density profile, the conjugate DFWM field is given in the limit of small optical thickness by the following expression:

$$\kappa = 4s(1 - 2i\delta) \int_0^{2\pi/k} \frac{\rho(z) \sin^2 kz}{(1 + 4\delta^2 + 4s \sin^2 kz)^2} dz. \quad (2)$$

The DFWM signal we measure is then given by $|\kappa|^2$. Assuming a harmonic ansatz for the spatial modulation of the atomic density $\rho(z) = (1 + 2b) - 4b \sin^2 kz$, we can write the conjugate field κ as

$$\kappa = \kappa_0 [\mathcal{I}_1(1 + 2b) - 4b\mathcal{I}_2] \quad (3)$$

with $\kappa_0 = 4s(1 - 2i\delta)/(1 + 4\delta^2)$ and

$$\mathcal{I}_j = \int_0^{2\pi/k} \frac{\sin^{2j} kz}{(1 + a^2 \sin^2 kz)^2} dz. \quad (4)$$

The two integrals $\mathcal{I}_1, \mathcal{I}_2$ can be evaluated numerically and only depend on the pump beam detuning δ and saturation s through $a^2 = 4s/(1 + \delta^2)$. Assuming that the modulation amplitude is small, we can express the relative modification r of the DFWM signal as

$$r = \left| \frac{\kappa(b)}{\kappa(0)} \right|^2 - 1 \approx 4\alpha b + O(b^2) \quad (5)$$

with $\alpha = (1 - 2\mathcal{I}_2/\mathcal{I}_1)$. At this point, one can notice that $|\kappa|^2$ and α depends on δ only through δ^2 . Thus the absolute DFWM signal $|\kappa|^2$ and its bunching induced modification r would be symmetric. It can be seen from the expression of r that this symmetry is broken only by the bunching since it is an antisymmetric function of the detuning, i.e., $b < 0$ (respectively, > 0) if $\delta < 0$ (respectively, > 0). It is possible to invert this problem and to evaluate the spatial modulation from the modified FWM signal r . Using this approach one could estimate the bunching from experimental time resolved data. However one must consider that α is negative for $a \lesssim 2.2$ and positive above this value. This means that either for very small saturation or very large detuning, the DFWM signal is *enhanced* on the red side and *diminished* on the blue side. This is not however the case that we considered here and we are in a regime where the Rabi frequency in the high intensity region of the standing wave is sufficiently large not only to saturate the nonlinearity but also to practically cancel its magnitude.

We can now compare the numerical results to our experimental data. First we confirm that for the parallel polarization $F \parallel B \parallel P$, there is no splitting in the DFWM spectrum. Also we find that for the larger saturation parameters $s=4$ of our experiment, the DFWM is larger for positive (blue) detuning. Figure 7 illustrates this asymmetry for detuning of $\delta = \pm 0.5\Gamma$. Transient bunching of several percent are pre-

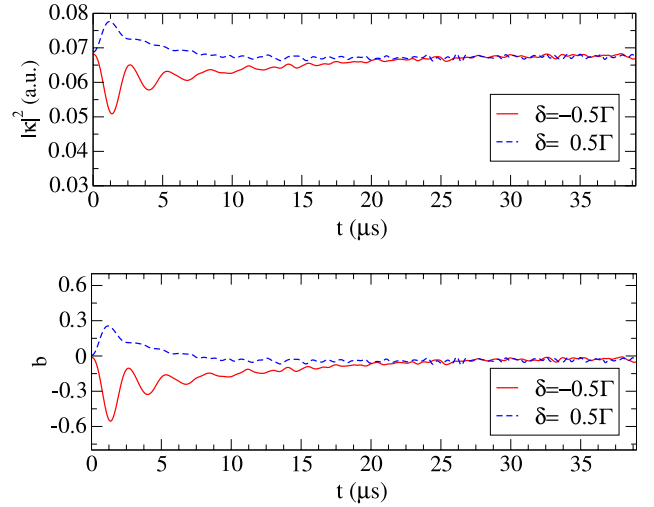


FIG. 7. (Color online) Numerical simulation for the time-resolved DFWM signal (upper curve) and bunching (lower curve) for $\delta = \pm 0.5\Gamma$ and $s=4$.

dicted and the time dependence of the bunching resembles the DFWM of Fig. 5. For saturation parameter of $s=0.4$ we do not obtain noticeable bunching, and the corresponding DFWM signal is again symmetric around $\delta=0$. We note that the region of the inverted red-blue asymmetry DFWM is larger in the experiment than in the simulation. Several effects might explain this difference, such as an oversimplified two-level system or an inhomogeneous intensity distribution of the DFWM beams. The purpose of this paper is to demonstrate the importance of the spatial rearrangement of the atoms for a DFWM signal, but we did not aim at a quantitative description of our signals.

In conclusion, we reported observation of DFWM with cold atoms, both for red and blue detuned light. We observe a red-blue asymmetry when atoms are exposed to dipole forces in the standing wave of the strong pump beams. The origin for an asymmetry of FWM spectra have not been reported so far and must be considered in particular when cold atoms are used as the nonlinear medium. We expect that it will be possible to increase by a considerable amount the efficiency of FWM in our cloud of cold atoms and it might then be interesting to study nonclassical features (squeezing) of the FWM signal and also add a cavity around the atomic cloud to yield self-oscillation [13,24]. Other possibilities with our pump-probe geometry include the combination of gain provided by the pump beams and multiple scattering if the optical thickness of the cloud is large. This could lead to the realization of a random laser [25] using cold atoms as a scattering and gain medium.

The authors thank G. Labeyrie for valuable help on the experimental setup. The authors acknowledge the financial support of CNRS and of the PACA Region. One of the authors (J.W.R.T.) would like to thank CNRS, CAPES-COFEUC, and CNPq for travel support. One of the authors (J.J.) acknowledges support from the program Juan de la Cierva through Grant No. TIC2002-04255-C04-03.

- [1] M. D. Lukin, P. R. Hemmer, and M. O. Scully, *Adv. At., Mol., Opt. Phys.* **42B**, 347 (2000).
- [2] L. Hilico, P. Verkerk, and G. Grynberg, *C. R. Acad. Sci. III* **315**, 285 (1992).
- [3] J. W. R. Tabosa, S. S. Vianna, and F. A. M. de Oliveira, *Phys. Rev. A* **55**, 2968 (1997).
- [4] A. Lezama, G. C. Cardoso, and J. W. R. Tabosa, *Phys. Rev. A* **63**, 013805 (2001).
- [5] D. S. Glassner and R. J. Knize, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 2212 (1995).
- [6] B. Lounis, P. Verkerk, J. Y. Courtois, C. Salomon, and G. Grynberg, *Europhys. Lett.* **21**, 13 (1993).
- [7] A. Hemmerich, M. Weidmuller, and T. Hänsch, *Europhys. Lett.* **27**, 247 (1994).
- [8] M. Yocota and P. Yeh, *J. Opt. Soc. Am. A* **15**, 2678 (1998).
- [9] R. L. Abrams and R. C. Lind, *Opt. Lett.* **2**, 94 (1978); **3**, 205 (1978).
- [10] G. Grynberg and C. Robillard, *Phys. Rep.* **355**, 335 (2001).
- [11] G. Labeyrie, F. de Tomasi, J. C. Bernard, C. A. Müller, C. Miniatura, and R. Kaiser, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 5266 (1999).
- [12] G. Birkl, M. Gatzke, I. H. Deutsch, S. L. Rolston, and W. D. Phillips, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 2823 (1995).
- [13] M. Oria *et al.*, *Opt. Lett.* **14**, 1082 (1989).
- [14] M. Pinard, P. Verkerk, and G. Grynberg, *Phys. Rev. A* **35**, 4679 (1987).
- [15] R. T. Bratfalean, G. M. Lloyd, and P. Ewart, *J. Opt. Soc. Am. B* **16**, 952 (1999).
- [16] R. W. Boyd, M. G. Raymer, P. Narum, and D. J. Harter, *Phys. Rev. A* **24**, 411 (1981).
- [17] S. Balik, R. Olave, C. I. Sukenik, M. D. Havey, V. B. Datsyuk, I. M. Sokolov, and D. V. Kupriyanov, *Phys. Rev. A* **72**, 051402(R) (2005).
- [18] C. Salomon, J. Dalibard, A. Aspect, H. Metcalf, and C. Cohen-Tannoudji, *Phys. Rev. Lett.* **59**, 1659 (1987).
- [19] V. I. Balykin, V. S. Letokhov, Yu. B. Ovchinnikov, and A. I. Sidorov, *Phys. Rev. Lett.* **60**, 2137 (1988).
- [20] M. Schiffer, E. Cruse, and W. Lange, *Opt. Commun.* **116**, 143 (1995).
- [21] S. Guibal, C. Mennerat-Robilliard, D. Larousserie, C. Triche, J.-Y. Courtois, and G. Grynberg, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 4709 (1997).
- [22] J. Chen, J. G. Story, and R. G. Hulet, *Phys. Rev. A* **47**, 2128 (1993).
- [23] C. von Cube, S. Slama, D. Kruse, C. Zimmermann, P. W. Courteille, G. R. M. Robb, N. Piovela, and R. Bonifacio, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 083601 (2004); J. Javaloyes, M. Perrin, G. L. Lippi, and A. Politi, *Phys. Rev. A* **70**, 023405 (2004).
- [24] L. Hilico, C. Fabre, and E. Giacobino, *Europhys. Lett.* **18**, 685 (1992).
- [25] N. M. Lawandy, R. M. Balachandran, A. S. L. Gomes, and E. Sauvain, *Nature (London)* **369**, 436 (1994).

3.8 Résumé

Nous avons vu dans ce chapitre des méthodes afin de produire du gain sur un faisceau sonde dans un nuage d'atomes froids. Trois processus ont été identifiés expérimentalement : Gain Mollow, gain Raman et mélange à quatre ondes. Dans chacun des cas, une étude théorique permet d'expliquer le mécanisme de gain.

- Le gain Mollow sur une sonde (partie (3.3) et (3.7.2)) intervient lorsque les faisceaux pompe et sonde possèdent la même polarisation. Dans ces conditions, la transition $F = 3 \rightarrow F' = 4$ se réduit à un atome à deux niveaux d'énergie, dont la théorie permet d'expliquer les principales propriétés du spectre de transmission de la sonde : la largeur des résonances est de l'ordre de Γ (la largeur naturelle du niveau excité), et les fréquences ayant du gain se situent souvent loin (typiquement quelques Γ) de la fréquence pompe. Expérimentalement le maximum de gain enregistré est lorsque le laser pompe est peu désaccordé de résonance atomique ($\Delta \sim \pm 1$ à 2Γ), et la position des résonances correspond à celle attendue par la théorie. Seule l'amplitude expérimentale du gain (environ 50 %) ne correspond pas à la théorie, car il faut alors prendre en compte les effets liés à une grande épaisseur optique du nuage d'atomes : effets d'écrantage, rediffusion des photons sonde, etc...
- Le gain Raman sur une sonde (partie (3.4) et (3.7.3)) intervient lorsque les faisceaux pompe et sonde ont une polarisation croisée. En effet, les résonances Raman interviennent dans la structure Zeeman du niveau fondamental. De ce fait, la largeur des résonances est très fine par rapport à la largeur naturelle du niveau excité (environ $500 \text{ kHz} = \Gamma/10$) : il s'agit typiquement d'une caractéristique des transitions à deux photons. Le spectre de transmission de la sonde présente deux résonances fines, dont l'écart l'une de l'autre varie en fonction de l'intensité pompe appliquée, ou d'un champ magnétique extérieur²⁷. Une résonance présente du gain, et l'autre de l'absorption. Expérimentalement, on observe du gain Raman lorsque la pompe est très désaccordée de résonance atomique ($\pm 5\Gamma$) : on observe généralement une structure Raman pour tous désaccords pompe, mais on doit se situer sur les ailes du profil d'absorption afin d'observer du gain. Les résonances sont fines, et le gain est très proche de la fréquence des pompes. De plus, comme on travaille loin de résonance atomique, l'épaisseur optique effective du nuage est moindre, et les effets négatifs sur le gain cités ci-dessus, ne sont pas observés. On mesure expérimentalement des gains de 300 % au maximum.
- Le mélange à quatre ondes (partie (3.5) et (3.7.4)), se distingue des proces-

²⁷en fait, tout processus permettant de modifier l'écart d'énergie entre les niveaux de la structure Zeeman

sus de gain par transmission. Ici, on s'intéresse à la réflexion d'un faisceau sonde sur un nuage d'atomes pompés par deux faisceaux rétroalignés. Il existe plusieurs configurations (polarisation pompe-sonde parallèle ou croisée) permettant d'obtenir un faisceau conjugué de mélange à quatre ondes. Nous avons montré que les effets des saturations pompes importantes pouvaient produire une modulation spatiale de la densité atomique, et produisaient des effets sur le spectre de réflexion de la sonde. Expérimentalement, les meilleurs résultats en terme d'intensité du coefficient de réflexion ont été enregistrés dans la configuration où la sonde a une polarisation perpendiculaire aux pompes, avec un nuage possédant une grande épaisseur optique ($b_0 > 10$). Les désaccords pompes optimaux sont autour de $\pm 4 - 5\Gamma$. Dans cette gamme de paramètre, on peut enregistrer un coefficient de réflexion proche de l'unité.

En conclusion, notre nuage d'atome froids est un bon milieu à gain, comme l'illustre tout ce chapitre. L'étude expérimentale nous a permis de trouver les paramètres optimaux, afin d'exploiter dans au maximum le gain.

Cette première étape, nous permet d'introduire le chapitre suivant, dans lequel nous allons réaliser une réelle cavité laser, exploitant les mécanismes de gain étudiés dans ce chapitre.

Laser à atomes froids

4.1 Introduction

Après avoir étudié en détail différents mécanismes de gain dans le chapitre précédent, nous allons ici les utiliser dans le but de réaliser un laser avec des atomes froids comme milieu à gain.

Le point essentiel de ce chapitre sera l'étude d'une cavité laser construite afin de faire laser librement le nuage d'atomes (partie 4.3) [42, 114–116]. Nous développerons plusieurs parties sur l'étude des différents régimes où une oscillation laser se produit. Nous nous servirons alors des résultats sur les gain présentés dans le chapitre précédent, avec l'étude du gain Raman, du gain Mollow et du mélange à quatre ondes, afin de caractériser ce "laser à atomes froids".

Dans une dernière partie, on identifiera les pistes possibles pour étudier les effets d'un laser aléatoire. Il s'agira non plus d'étudier le gain dans le mode cohérent d'une cavité, mais dans la lumière diffusée par le nuage. Convaincus par les études précédentes qui nous ont montré qu'un nuage d'atomes froids est à la fois un milieu diffusant possédant une grande épaisseur optique, et un milieu fortement à gain, nous chercherons quelques pistes afin d'identifier un seuil possible de laser aléatoire, observable expérimentalement.

On commencera ce chapitre en présentant les résultats expérimentaux donnés en rebouclant le faisceau sonde sur le nuage via un miroir de renvoi, première étape dans la construction d'une cavité. On verra que cette expérience présente des résultats non attendus, car des effets d'interférences entre deux mécanismes de gain sont apparus. Cela nous a conduit à l'observation d'un gain bien plus important que celui espéré. Cette partie est de plus résumée dans une publication scientifique, jointe en partie (4.2.3) [39].

4.2 Interférences entre mélange à quatre ondes et gain Raman

4.2.1 Configuration de l'expérience et résultats

Cette partie est consacrée à l'étude d'un effet de cavité où le gain Raman et le mélange à quatre ondes interfèrent constructivement. On parle seulement d'effet

cavité car nous n'avons pas encore ici construit une vraie cavité laser.

Le schéma expérimental est similaire à celui déjà présenté au chapitre 3 (partie 3.7.1). Les pompes F et B sont toutes deux présentes et correctement rétro-alignées afin d'obtenir un signal conjugué, se propageant dans la direction opposée à la sonde (voir partie 3.7.4). Nous avons ajouté un miroir après la cellule à vide contenant le nuage d'atomes froids, de manière à rétro-réfléchir la sonde sur elle même (Fig. 4.1).

Un détecteur est placé sur le chemin R de rétro-réflexion de la sonde, et on vérifie également qu'il détecte le signal conjugué de mélange à quatre ondes.

p : faisceau sonde

F et B : faisceaux pompes

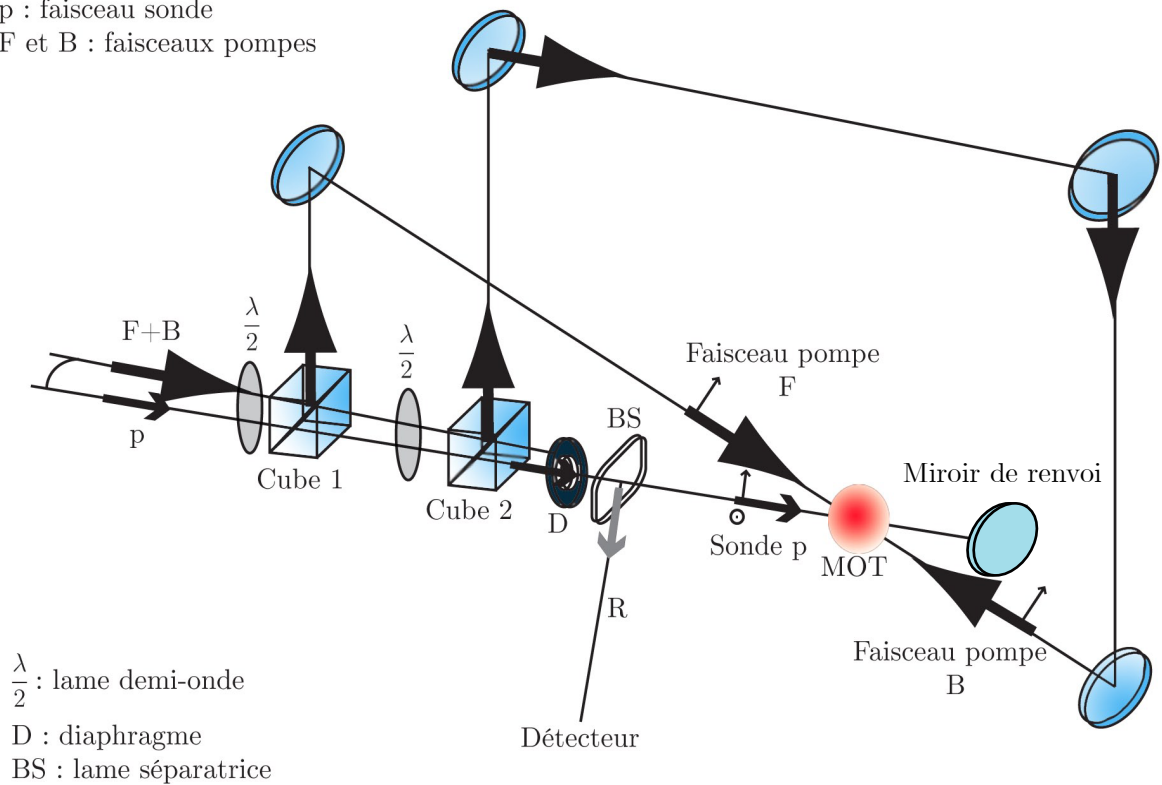


FIG. 4.1 – Schéma du montage permettant un double passage de la sonde dans le nuage d'atomes. Les pompes F et B sont alignées de façon à obtenir un signal de mélange à quatre ondes, qui lui même est aligné avec la rétro-réflexion de la sonde. A l'entrée du cube 1, la polarisation de la sonde p est réglée pour être transmise par les cubes, alors que les pompes doivent être réfléchies par les cubes 1 et 2. L'intensité entre les deux bras F et B est équilibrée grâce aux lames demi-onde placées devant chaque cube. A l'entrée du cube 1, les faisceaux pompes et sonde forment un petit angle afin de pouvoir être séparés par la suite (diaphragme D).

Dans un premier temps, on retrouve les résultats expérimentaux du chapitre 3. Nous nous plaçons en configuration $F//B \perp p$, et les pompes sont décalées

de la résonance atomique (environ $\Delta_{F,B} = 4\Gamma$), afin de pouvoir observer du gain Raman sur la sonde (voir Chap 3, 3.7.3) et un signal de mélange à quatre ondes (voir Chap. 3, partie 3.7.4). On va distinguer plusieurs configurations :

- **Pompe F seule et B seule.** Nous vérifions que nous observons du gain Raman par transmission. Lorsque l'on rétro-réfléchit la sonde dans le nuage avec le miroir de renvoi, le gain n'est pas plus important car nous revenons au problème déjà évoqué au chapitre 3, partie (3.7.3) : lorsque la sonde est contrapropageante avec le faisceau pompe, la résonance Raman est déplacée (effet Doppler, effet mécanique), ce qui implique que le gain ne se situe plus pour les mêmes fréquences à l'aller et au retour.
- **Pompe F et B rétroalignées.** On contourne le problème évoqué ci dessus, en équilibrant les pressions de radiation des deux pompes sur les atomes. Un phénomène bien plus intéressant intervient lorsque l'on aligne soigneusement les pompes F et B entre elles : cela nous permet entre autre de superposer le faisceau conjugué du mélange à quatre ondes au faisceau sonde amplifié par gain Raman. La figure (4.2) représente le signal de gain détecté dans cette configuration : **le gain maximal observé de quasiment 2000 %**. Le gain semble diverger, lié à un effet cavité dû au mélange à quatre ondes. Des résultats de ce type ont été observés dans [117].

Nous allons dans les paragraphes suivants expliquer l'origine de ce gain important, ainsi que la structure particulière sur le signal mesuré (Fig. 4.2) :

- Origine des battements dans le signal.
- Amortissement des battements (insert de la Fig. 4.2 (a)).
- Origine du gain x20 à résonance pompe sonde.

4.2.2 Analyse de la courbe de gain

4.2.2.1 Battement de fréquence

Établissons un premier modèle en considérant le schéma de la figure (4.3) où le détecteur détecte le signal de mélange à quatre ondes réfléchi sur le nuage d'atomes, et le faisceau sonde amplifié deux fois dans le nuage.

La courbe (4.2) présente des oscillations de type battement de fréquences. Il s'agit d'un battement entre la fréquence de la sonde amplifiée, de fréquence $\omega_F + \delta$, et le faisceau conjugué de fréquence $\omega_c = \omega_F - \delta$, où $\delta = \omega_p - \omega_F$ est le désaccord entre la pompe et la sonde, déjà introduit de nombreuses fois (Fig. 4.4). On a alors des battements de fréquence 2δ .

On modélise l'expérience de la manière suivante :

- r_c est l'amplitude du coefficient de réflexion sur nuage d'atomes. Un exemple de la fonction $r_c(\delta)$ est explicitée dans la partie (3.5) du chapitre 3, mais ici, on se place dans le cas du mélange à quatre ondes non dégénéré. Nous insérerons dans le modèle numérique la trace expérimentale du signal de

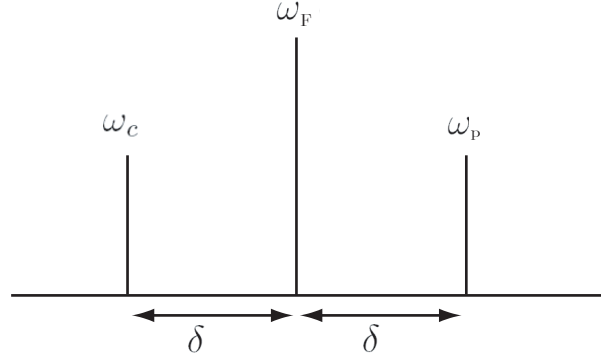


FIG. 4.4 – Diagramme des fréquences présentes dans l'expérience. ω_p : fréquence sonde, ω_F : fréquence pompe, ω_c : fréquence faisceau conjugué, et $\delta = \omega_p - \omega_F$.

d'atomes. t_F désigne la transmission dans le sens de la pompe F et t_B dans le sens de la pompe B. Typiquement $t_F(\delta)$ et $t_B(\delta)$ sont des courbes de spectre Raman vu au chapitre précédent dans la partie (3.4). On suppose ici que $t_F = t_B$.

Le faisceau sonde incident est noté $E_{inc} = E_p e^{i\omega_p t}$. Après une transmission dans le nuage il devient $t_F E_p e^{i\omega_p t}$, et le faisceau conjugué s'écrit $r_c E_p^* e^{i(\omega_p - 2\delta)t}$. On a de cette manière l'intensité mesurée sur le détecteur après un aller-retour :

$$I_1 \propto |r_c e^{i(\omega_p - 2\delta)t} + t_F t_B e^{i\omega_p t} e^{i\phi}|^2 \quad (4.1)$$

où $\phi = 2kL$ est le déphasage dû à la propagation sur une distance L .

Dans l'expérience, on balaye δ en fonction du temps de manière à avoir $\delta = \alpha t$, avec α qui vaut typiquement $10^{-4}\Gamma/\mu s$. Ainsi les oscillations observées sur la figure (4.2) viennent du terme d'interférence $\cos(2\alpha t^2)$ qui apparaît lorsque l'on développe la fonction (4.1). Sur la courbe 4.5 est tracée la fonction I_1 . On voit que la théorie reproduit bien les battements observés expérimentalement et la distance entre chaque maxima des oscillations de la courbe expérimentale suit une loi en $1/\delta$ comme vérifié dans l'expérience.

Nous avons donc bien reproduit la physique des oscillations du signal qui sont dues, d'une part aux deux fréquences sonde ω_p et conjuguée $\omega_p - 2\delta$, et à l'effet du balayage de la fréquence sonde en fonction du temps.

Nous pouvons également expliquer l'origine de l'amortissement dans le contraste des battements (Fig 4.2 (a)). Nous avons pour le moment considéré t_F et t_B seulement en intensité (courbe expérimentale mesurée avec le détecteur). En réalité, ces fonctions contiennent un terme de phase qui effectue un saut de π à chaque résonance¹. Le calcul nous montre que cela produit une enveloppe d'amplitude

¹En amplitude, la fonction est du type : $t_F \sim \frac{1}{(\delta + \omega_R)^2 + 1} + i \frac{(\delta + \omega_R)}{(\delta + \omega_R)^2 + 1}$

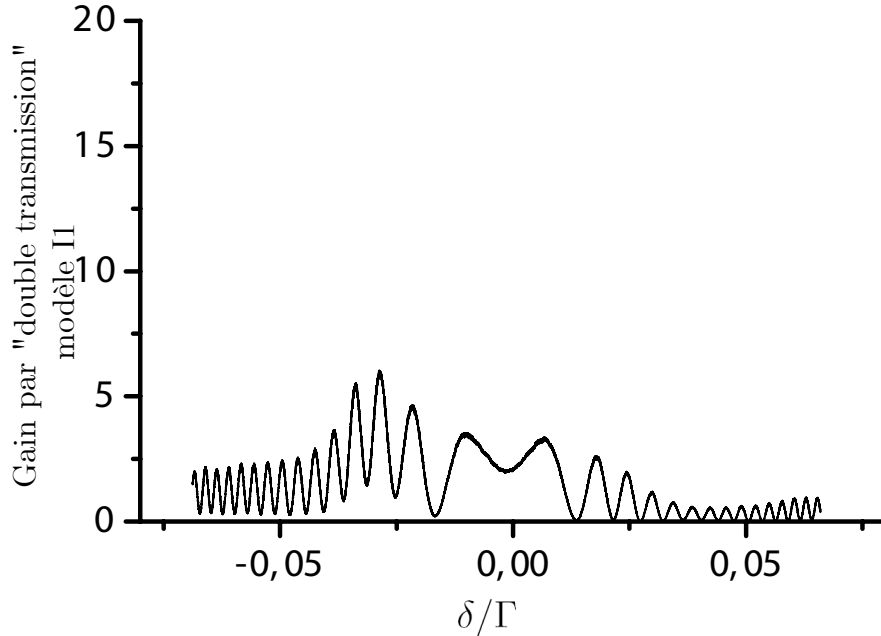


FIG. 4.5 – Simulation d'un aller retour dans le nuage : interférence entre le mélange à quatre ondes et le gain Raman (formule 4.1).

dans les battements, qui est minimum au maximum de gain Raman. Cela explique que le contraste des battements est minimum autour de la fréquence du maximum de gain Raman.

On voit bien pour l'instant, que le modèle ne reproduit pas la structure essentielle de la courbe expérimentale, c'est à dire le gain très important autour de la résonance pompe-sonde. Nous allons voir dans la partie suivante que le mélange à quatre ondes joue en fait un rôle bien plus important que le gain Raman.

4.2.2.2 Effet de cavité

Dans la partie précédente, nous avons négligé l'existence d'un faisceau conjugué créé entre le nuage d'atomes et le miroir de renvoi (Fig. 4.6). Ce nouveau faisceau conjugué est réfléchi sur le nuage grâce au miroir, et donne naissance à un nouveau faisceau conjugué. Ce processus s'établit comme une suite géométrique de raison r_c , où r_c est le coefficient de réflexion du nuage d'atomes, estimé à environ 80% d'après nos mesures (voir Chap 3, partie 3.7.4). Cette suite ne va donc pas diverger, mais on note une amplification sérieuse du mélange à quatre ondes par cet effet que l'on va qualifier de **semi-cavité**.

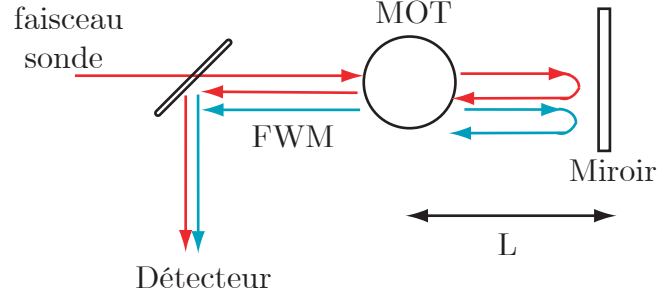


FIG. 4.6 – Semi cavité composée du nuage d’atomes froids et du miroir de renvoi. Avec une efficacité du mélange à 4 ondes de 80% en amplitude et un miroir avec une réflexion supérieure à 99.8%, et en prenant en compte les pertes dans la cellule à vide, la finesse de la cavité est estimée à $F=20$.

Nous allons vérifier cette hypothèse en simulant numériquement l’intensité mesurée sur le le détecteur en réflexion. Pour cela, on réécrit la fonction d’interférence (4.1) en prenant maintenant en compte les multiples aller-retours du faisceau entre le nuage d’atomes et le miroir. On notera que les réflexions sur le nuage de nombre impair ont une fréquence $\omega_c = \omega_p - 2\delta$, et les réflexions de nombre pair ont une fréquence ω_p :

$$I_2 = |r_c e^{i(\omega_p - 2\delta)t} + t_F t_B e^{i\phi} \sum_{n=0}^{n=\infty} r_c^{2n} e^{i\omega_p t} + t_F t_B \sum_{n=0}^{n=\infty} r_c^{2n+1} e^{i(\omega_p - 2\delta)t}|^2 \quad (4.2)$$

Le premier terme de l’expression est le mélange à quatre ondes direct, puis les deux autres termes représentent les multiples allers et retours pairs et impairs du faisceau. Les sommes géométriques sont calculées de la manière suivante pour les aller-retours pairs :

$$\sum_{n=0}^{n=\infty} r_c^{2n} = \frac{1}{1 - (r_c)^2}$$

et impairs

$$\sum_n r_c^{2n+1} = \frac{r_c}{1 - (r_c)^2}$$

La Fig (4.7) représente la fonction (4.2) et reproduit bien la courbe expérimentale. On en conclut que c’est bien le mélange à quatre ondes avec l’effet de cavité qui domine l’ensemble du signal. Un coefficient de réflexion important est nécessaire afin que de multiples allers-retours soient possibles, l’amplification Raman n’intervient que pour éviter l’absorption du faisceau par la traversée dans le nuage.

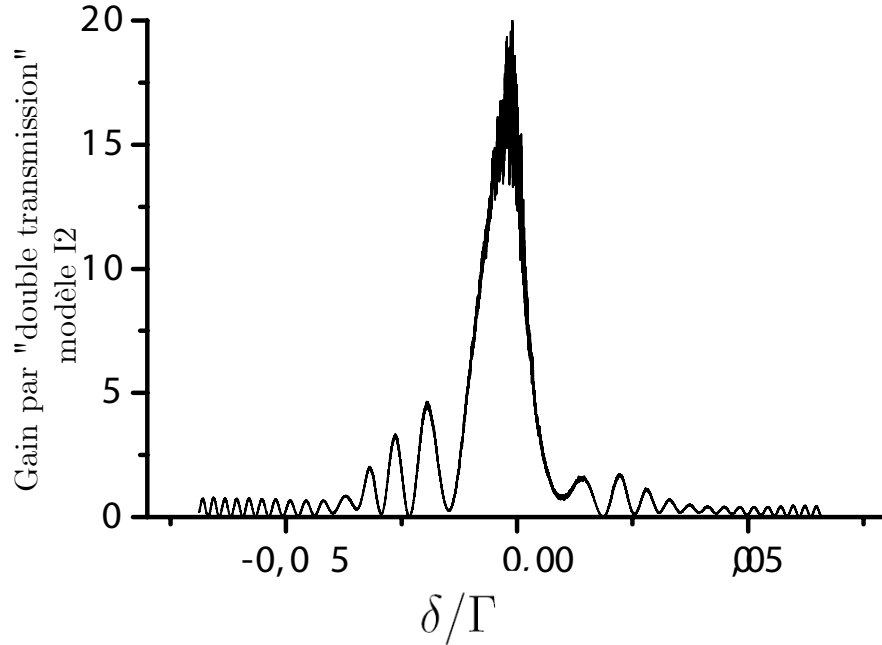


FIG. 4.7 – Simulation de multiples allers-retours dans le nuage d'atomes d'après l'équation 4.2.2.2. Tous les éléments de la courbe expérimentale y sont réunis : battement, amortissement des battements, gain important.)

La courbe 4.7 est très sensible au terme de phase $\phi = 2kL$. Aussi, pour la tracer, on a moyenné sur différentes configurations $L + \Delta L$, car en pratique le miroir de renvoi n'est pas asservi en position.

Ce régime a été observé exclusivement dans les gammes de paramètres combinant un coefficient de réflexion maximum et du gain par transmission. Il faut de plus que les deux processus soient dans le même état de polarisation afin de pouvoir interférer. Proche de la résonance nous avons observé du gain Mollow avec une configuration de polarisation $F//p$, or dans cette gamme de paramètre, l'intensité du mélange à quatre ondes est trop faible pour produire un effet cavité. Ainsi, les paramètres idéaux sont la combinaison du mélange à quatre ondes, avec une polarisation croisée pompe/sonde, et du gain Raman qui nécessite des désaccords des pompes éloignés de la résonance atomique ($\Delta_{F,B} \sim -4 - 5\Gamma$).

Observer un tel gain et savoir que différents processus de gain peuvent interférer, nous incite à continuer dans cette voix, et réaliser une véritable cavité laser.

4.2.3 Publication : “Interference between Raman gain and four-wave mixing in cold atoms”

Interference between Raman gain and four-wave mixing in cold atoms

Franck Michaud,¹ Giovanni-Luca Gattobigio,^{1,2} Jose W. R. Tabosa,³ and Robin Kaiser^{1,*}

¹*Institut Non Linéaire de Nice, UMR 6618 CNRS, 1361 route des Lucioles, F-06560 Valbonne, France*

²*Dipartimento di Fisica dell'Università di Ferrara and Istituto Nazionale di Fisica Nucleare Sezione di Ferrara, 44100 Ferrara, Italy*

³*Departamento de Física, Universidade Federal de Pernambuco, Avenida Professor Luiz Freire, s/n Cidade Universitária, 50670-901 Recife PE, Brazil*

*Corresponding author: Robin.Kaiser@inln.cnrs.fr

Received December 20, 2006; accepted February 27, 2007;
posted March 20, 2007 (Doc. ID 78215); published July 26, 2007

Using a pump–probe scheme with a large cloud of cold rubidium atoms, we observe very large double-pass gain (1800%) due to interference between Raman gain and four-wave mixing. A simple model explains the main features observed. © 2007 Optical Society of America

OCIS codes: 030.6600, 140.3320.

1. INTRODUCTION

The search for strong localization [1] of waves in random media has intensified with the discovery that electromagnetic waves can be used to study the disorder-driven phase transition [2] without the effect of interactions that are important for electrons and Bose–Einstein condensates, for example [3–6]. Many interesting experiments have been performed to approach this phase transition, ranging from the coherent backscattering of light [7–9], to the study of fluctuations [10] with a variety of samples, including laser cooled atoms [11]. Recent progress has been made using time-resolved techniques [12] shown earlier in [13], allowing to discriminate strong localization from absorption, as discussed for previous work [14–16].

It also became clear that using an active sample (with gain) makes it possible to study new, interesting interference effects in multiple scattering, even when the threshold for strong localization in the passive system cannot be achieved. A system combining gain and multiple scattering has been named the “photonic bomb” or “random laser.” Such a system had been proposed many years ago [17] but the field of random lasers has emerged after the more recent experimental work [18]. One of the current hot topics is the so-called coherent random laser, where interference effects in multiple scattering in the gain medium leads to new features, such as distinctive spikes in the emission spectrum [19]. Discriminating between such interference effects and anomalous intensity effects might help us understand the interplay of localization effects and gain.

Since most samples used in this context are either dyes with colloidal suspension or semiconductor powders, some aspects, such as the occurrence of long-range correlation between the optical coherence of the radiating dipoles, leading to superfluorescence, could not have been investigated as yet. We propose to use a sample of laser-cooled

atoms to study random lasers with large optical coherence lifetime. In the past, such samples have been used in the absence of gain to investigate coherent backscattering of light by resonant scatters [11,20,21]. Narrow resonances in such samples yield new features such as the dispersion and time dependence of multiple scattering [22]. It is also known that such samples of laser-cooled atoms can be used to produce a sample with gain [23]. Various gain mechanisms can be used with cold atoms, such as Mollow gain [24], Raman gain [25–28], or recoil-induced resonance [29,30]. In the past, only moderate single-pass gain has been obtained with cold atoms, mainly limited because of the reduced optical thickness of the samples that could be realized. Even with such moderate gain, fascinating experiments have been realized, allowing the study of nonclassical effects of atom lasers [31,32] or collective atomic recoil lasers [33]. Using clouds with a larger number of atoms and increased optical thickness, it is, however, possible to obtain large gain [34] even in the absence of cavities.

In this paper, we present a new mechanism to the best of our knowledge, for producing significant gain without relying on a high-finesse cavity. As in most pump–probe experiments with cold atoms, the pump beam needs to be in a counterpropagating configuration in order to balance the radiation pressure. One thus naturally has a system in which four-wave mixing (FWM) is expected [35]. We will show in this paper how the Raman gain in the forward direction can interfere with the conjugate beam produced by FWM to yield a double-pass gain of 1800%. This paper is organized as follows. First we describe our experimental setup in Section 2. The results of nondegenerate four-wave mixing (NDFWM) are presented in Section 3; those of single-pass gain in Section 4. The most important result of this paper, i.e., the important double-pass gain, is presented in Section 5.

2. EXPERIMENTAL SETUP

The experiment was performed in a sample of cold rubidium atoms in a magneto-optical trap (MOT). Our MOT scheme has been described elsewhere [11] and allows time-controlled switching of the trapping and repumping beams as well as of the magnetic quadrupole field. One particular aspect of our trap is the large number of atoms ($N_{\text{at}} \approx 10^{10}$) that can be trapped, due to large beam waists and the corresponding large powers for the trapping and cooling lasers. In a previous experiment, we have investigated degenerate four-wave mixing (DFWM) and described a bunching-induced red–blue asymmetry in the DFWM spectra [35]. In contrast to those experiments in which all DFWM beams were provided by the same laser (frequencies $\omega_F = \omega_B = \omega_P$), we have added an independent probe beam P , allowing us to study the dependence of the relative detuning $\delta = \omega_P - \omega_F$ of our signals. The pump beams are independent (not retroreflected) carefully aligned counterpropagating pumping beams (forward F and backward B). The angle between the probe (P) and forward beam (F) has been kept constant at ~ 0.2 rad. The waist of the laser beams ($w_{F,B} = 3$ mm, $w_P = 1.7$ mm/FWHM $_P \approx 2$ mm) is smaller than the size of our cloud ($L_{\text{rms}} \approx 2$ mm/FWHM ≈ 4.7 mm). The polarization of the DFWM beams can be adjusted by appropriate wave plates and polarizing cubes placed along the beam paths. In the work reported in this paper, we have used the $F \parallel B \perp P$ polarization configuration, in which the two pump beams F and B have linear and parallel polarizations and the probe beam P has a linear polarization orthogonal to the pump polarization. We define saturation

parameters s_F , s_B , and s_P for the forward and backward pump and the probe beam by the beam center intensity divided by the saturation intensity $I_{\text{sat}} = 1.6$ mW/cm 2 of the $F=3 \rightarrow F'=4$ transition of ^{85}Rb . The MOT trapping beam and magnetic field gradient are switched off for ~ 1 ms every 30 ms and the pump and probe fields act on atoms unperturbed by the MOT preparation (see Fig. 1).

Spectra are obtained by sweeping the probe frequency with respect to the pump frequency, which has been kept at fixed detuning, $\Delta = \omega_{F,B} - \omega_{\text{at}}$, with respect to the atomic resonance of the $F=3 \rightarrow F'=4$ of the $D2$ line of ^{85}Rb . We have checked that the duration of the frequency ramp (of the order of 20–100 μs) is long enough not to limit the width of the recorded resonances and short enough not to lose atoms during the exposure to the large intensity pump fields. The independent probe beam P is generated from the same master laser as the pump fields F and B using different acousto-optical modulators to control the frequency difference. The stability of the probe frequency versus pump frequency has been checked by radio-frequency analysis and by the laser beatnote to be of the order of 20 kHz during one probe pulse duration and less than 100 kHz over a second, corresponding to the typical averaging time used for the signals reported in this paper. Fast and sensitive detection is obtained with use of a channel photomultiplier.

3. NDFWM

To realize a gain medium, one obviously needs to pump energy into the sample. This is achieved with optical pumping using strong quasi-resonant pump fields F and B (see Fig. 1). Since cold atoms are sensitive to radiation pressure forces, it is convenient to use counterpropagating pump beams to balance the radiation pressure forces. This makes this pump–probe scheme similar to a backward FWM configuration, which we have used previously [36]. Since we are interested in the NDFWM signal, i.e., we have recorded the backward FWM as a function of the probe–pump detuning δ for a fixed-pump frequency Δ . In Fig. 2, we show the resulting NDFWM signal obtained with a large cloud of cold atoms. The data shown here focus on a narrow frequency range around the pump–probe resonance, corresponding to the central feature of [36]. The width of the NDFWM is of the order of several times 100 kHz, consistent with the Doppler width of our atomic sample. The main point to notice here is the large value of NDFWM ($\approx 80\%$) of the incident probe beam that can be obtained. This will be important for the double-pass gain described later in the paper. A moderate increase in the optical thickness of our cloud might allow us to obtain a FWM yield larger than unity in the future. A regime similar to the self-oscillation in FWM in sodium [37] or the mirrorless oscillation observed with nonlinear materials [38,39] could then be obtained with this sample. Although such mirrorless oscillation is not discussed in the context of a random laser (another mirrorless oscillator), both situations are based on nonlinear matter–light interactions and might have to be considered when trying to understand the combination of multiple scattering and gain.

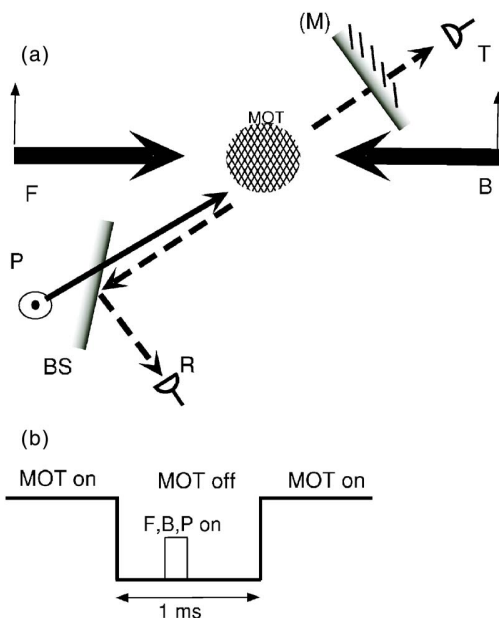


Fig. 1. (a) Schematic of the experiment: two strong counterpropagating pump beams (F and B with parallel linear polarization) and one weak probe beam (P with linear polarization orthogonal to that of F and B) are applied; an additional mirror (M) has been used for double-pass gain (see text) and either transmission (T) or reflection (R) through a beam splitter (BS) has been recorded; (b) timing of the experiment: the MOT beams and magnetic fields are switched off during the short pump–probe pulse.

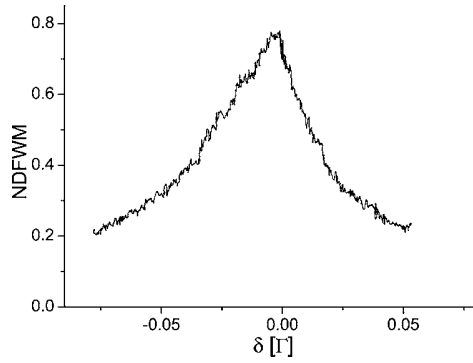


Fig. 2. NDFWM spectrum obtained in the $F\parallel B\perp P$ configuration. The pump frequency ($\Delta=-4.8\Gamma$) and intensity ($s_{F,B}=23$, $s_P=0.01$) are kept fixed as the detuning $\delta=\omega_P$ of the probe beam P is scanned across the NDFWM resonance. Note that the scale of the detuning scan shown here is covering a smaller range than in the subsequent figures.

4. SINGLE-PASS GAIN

In a first series of experiments, we measured the gain that can be obtained in our sample and identified the dominant gain mechanism. Indeed, several gain mechanisms can exist in such systems: (i) Mollow gain one would expect from a strongly driven two-level system, (ii) mechanical assisted gain at work in recoil-induced resonances and/or vibrational Raman resonances, or (iii) stimulated Raman transitions between different Zeeman sublevels. As we will show below, the last mechanism is the dominant gain in our experiment.

The very rich physics of pump-probe spectroscopy with cold atoms was a dynamic field of research in the beginning of the 1990s and a lot of results are summarized in a review paper [23]. The transmission through a cloud of atoms increases exponentially with the number of atoms, as illustrated by the important recoil-induced resonances-based gain obtained in an elliptically shaped optical thick cloud of atoms [36]. Our results, obtained with a different geometry for the cloud and the laser beams, are dominated by Raman transitions between different Zeeman sublevels.

Despite the above-mentioned sensitivity of cold atoms to radiation pressure, the radiation pressure forces are not strong enough to accelerate the atoms out of resonance during the interaction with the pump and probe beams for the smaller interaction times we have used (below $40\ \mu\text{s}$). Spatial displacement of the atoms is less important since it would take an even longer time to displace the atoms by more than the initial cloud size. We have thus been able to record the transmission of the probe beam in the presence of a single pump beam (F or B). A typical gain spectrum is shown in Fig. 3.

The transmission of a low-intensity probe beam is recorded with either pump beam F or pump beam B on. One can clearly see that gain is obtained only with the co-propagating F pump [Fig. 3(a)], whereas the counter-propagating B pump does not produce net gain [Fig. 3(b)]. The resonance condition for the Raman gain is fulfilled when the probe-pump detuning δ is equal to the energy difference of the Zeeman sublevels coupled via this two-photon process. In the absence of a magnetic field, the en-

ergy of the Zeeman sublevels is determined by the light shift induced by the strong pump beams. The coupling strength of the various Zeeman sublevels depends on the Clebsch-Gordan coefficients and for the $F=3-F'=4$ transition in this work, the pump-induced light lifts the degeneracy of the $F=3$ state. To verify that the resonance condition is given by the energy difference of the Zeeman levels, we have also added a pulsed-bias field (only when the pump and probe are switched on) and have indeed observed that the resonance condition in that case depends on the applied-bias field. The shape and the number of resonances can be drastically altered in the presence of a bias field, and in the future we might exploit this controlled dependence of the resonance condition combined with optical Zeeman pumping for optimizing the properties of our system for the realization of a random laser with cold atoms.

One signature of the Raman gain mechanism in contrast, e.g., to the recoil-induced resonances is that gain for negative pump detuning ($\Delta<0$) is obtained for a probe frequency below the pump frequency ($\delta<0$), whereas for $\Delta>0$, gain is obtained for $\delta>0$. This is explained by the fact that the Zeeman sublevel most shifted by light is also the most populated (see Fig. 4) on an $F-F'=F+1$ transition. The difference between the gain obtained with the

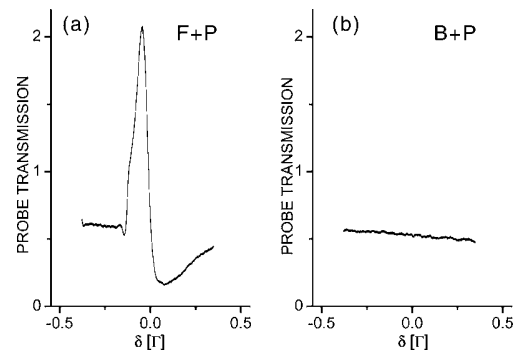


Fig. 3. Gain spectrum for $F\parallel B\perp P$ polarization. (a) for the quasi-co-propagating pump (F) and probe (P) beams ($s_F=30$ and $\Delta=-3\Gamma$). A distinctive gain of $\sim 100\%$ is seen at the Raman condition, for $\delta=\omega_{\text{Raman}}$. (b) For the quasi-counter-propagating pump (B) and probe (P) beams ($s_B=30$ and $\Delta=-3\Gamma$) no gain is observed.

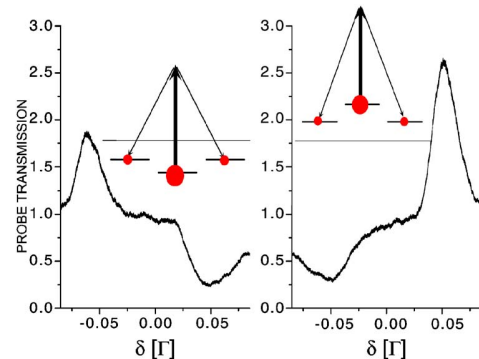


Fig. 4. (Color online) Raman gain mechanism. (a) Gain spectrum for negative pump detuning and corresponding gain spectrum ($\Delta=-5.2\Gamma$, $s_F=30$, $s_P=0.07$). (b) Gain spectrum for positive pump detuning and corresponding gain spectrum ($\Delta=+5.2\Gamma$, $s_F=30$, $s_P=0.07$). Insets indicate the different light shifts and populations corresponding to the gain part of each curve.

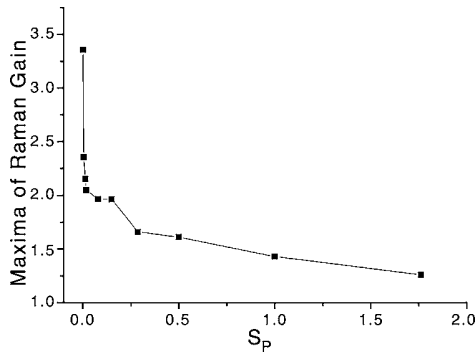


Fig. 5. Gain saturation. Maximum of the gain spectra for different probe intensities at fixed-pump parameters ($s_F=6.8$ and $\Delta=-3\Gamma$).

copropagating and the counterpropagating pump beam can be explained by the residual Doppler broadening for the two-photon process involving quasi-co-propagating (F and P) or quasi-counter-propagating fields (B and P) [40,41].

The combination of these signatures shows that the dominant gain mechanism in the experiments reported in this paper is the Raman gain between different Zeeman sublevels. Other gain mechanisms, in particular recoil-induced resonances (or its equivalent for trapped atoms, i.e., Raman transitions between different vibrational levels), can also contribute to the signal. We have indeed observed a narrower central feature for lower saturation and atom numbers. However, we attribute the dominant gain feature in our experiment to Raman gain between different Zeeman sublevels.

We have also performed a more systematic study of single-pass Raman gain. When the probe intensity is increased, one obtains lower gain. This gain saturation is illustrated in Fig. 5 where one can see that probe intensity below $0.01I_{sat}$ ($s_P < 0.01$) is required for optimal gain. We do not expect this gain saturation to be a limiting factor for a laser using this gain mechanism, since such a laser would be triggered by low-intensity spontaneous emission. However, the intensity that can be expected from such a laser in steady state would be determined by nonlinear effects such as this gain saturation mechanism.

Another feature of gain using cold atoms is the exponential increase with the increasing optical thickness of the cloud, as, e.g., mentioned in [34]. However, the gain cannot be described only by the optical thickness at the frequency of the pump and probe beams. Indeed, even though gain does increase with the number of atoms (see Fig. 6), it is reduced around resonance as shown in Fig. 7. Several effects contribute to the reduced gain around resonance.

First, even for an optically thin cloud of atoms, the gain is predicted to have a more complex dependence on the detuning. Indeed, gain is turning into absorption as the pump detuning Δ is scanned across the atomic resonance. Following previous work [42], we expect

$$g \propto e^{N_{at}(\pi_a - \pi_b)/f(\delta)}, \quad (1)$$

where π_a and π_b are the populations of the two Zeeman levels coupled via the two-photon pump–at probe transi-

tion and $f(\delta)$ is a function that depends on the pump intensities (s_F, s_B) as well as on the pump detuning Δ and on the details of the atomic transition. A simplified understanding of the function can be obtained by considering the function

$$f(\delta) = \frac{A_1}{(\delta - \omega_{\text{Raman}})^2 + \gamma^2/4} - \frac{A_2}{(\delta + \omega_{\text{Raman}})^2 + \gamma^2/4}, \quad (2)$$

where γ describes the width of the Raman gain and A_1 and A_2 describe the weights of the gain and absorption processes, respectively. All these parameters depend on the intensities of the pump and probe beams as well as on the pump detuning, Δ . The coefficients A_1 and A_2 differ since the strength of the two-photon process involving either “pump absorption and probe emission” or “probe absorption and pump emission” is not the same due to a difference in the Clebsch–Gordan coefficients. As a result of the $F=3-F'=4$ transition used in our Rb experiment, a more precise model needs to account for multiple two-photon transitions with each at a different resonance position and width. The net result is an overall inhomogeneous broadening of the resonance [23]. The precise origin of the width γ of the Raman resonances has, however, been much debated [23] and can involve the inhomogeneous broadening due to different energy splitting of all levels involved, the finite temperature of the atoms, optical pumping from one sublevel into another, but a reduced width can also be present in the case of strong atomic localization in the bottom of the potential well (Lamb–Dicke narrowing).

The influence of the number of atoms beyond that described by Eq. (2) also needs to be considered. Indeed, we have observed significant broadening of gain spectra as the number of atoms is increased. With increased atom number, the width γ of the resonances are no longer small compared with their separation $2\omega_{\text{Raman}}$; reducing the maximum gain that can be obtained. Even though using a large number of atoms is obviously desirable for large gain, it makes a quantitative comparison with an *ab initio* model more difficult.

The net result for the maximum gain is shown in Fig. 7, where a significant reduction of the gain is observed close to the center of the atomic resonance. Using this gain to build a standard cavity laser, one should therefore choose off-resonant pumping. However, this center line reduction

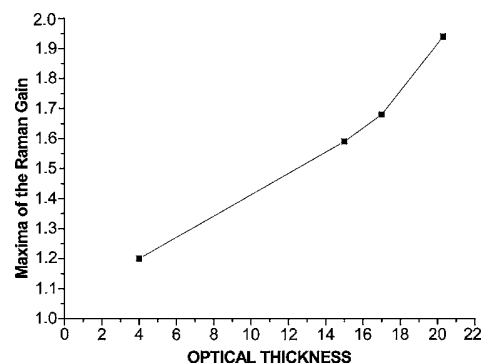


Fig. 6. Maximum of gain spectra as a function of the (resonant) optical thickness of the cloud, varied by changing the atom number ($s_F=30$, $\Delta=-3\Gamma$, and $s_P=0.07$).

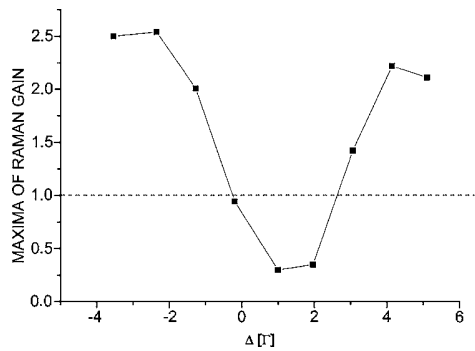


Fig. 7. Maximum of gain spectra as a function of pump detuning Δ at maximum atom number ($N_{\text{at}}=10^{10}$) for $s_F=30$ and $s_P=0.07$.

of the gain is also due to multiple scattering in the optically thick cloud of atoms. The combination of multiple scattering and gain is the route to follow to realize a random laser with cold atoms. One important aspect to study is the separate control of gain and multiple scattering, since the scattering mean free path in cold atoms will be affected by the pump lasers. In this respect, the Raman gain mechanism seems to be more promising than the other possible gain mechanisms mentioned above (Mollow gain or mechanical-assisted gain). Indeed, a single frequency of the propagating field will be amplified by some of the Zeeman sublevels (corresponding to negative absorption or a negative mean free path) whereas other Zeeman sublevels will not contribute to the gain and will thus contribute to the scattering (with a positive mean free path). The other gain mechanisms can be explained with a two-level atomic model, and thus the mean free path for one frequency of the propagating field will be either positive or negative, making the combination of gain and multiple scattering a more difficult task, required to realize a random laser. With the Raman gain presented in this paper, it might be possible to control the relative amounts of gain and scattering and also combine both by controlling the populations of the different Zeeman sublevels.

5. DOUBLE-PASS GAIN

Having understood the origin of our gain in a single-pass configuration, we investigated the extent to which this gain can be increased in a multipass configuration. For this purpose, we reflect the probe beam with a mirror (see Fig. 1) and recorded the intensity on the same detector used in the NDFWM experiment. This configuration might also make it possible to achieve random lasing in our system. Indeed, if one can approach the threshold for a random laser, i.e., when amplified emission can occur in each direction, adding a single mirror will increase the total gain in one of these directions. One might thus be able to detect emission in the direction specified by the mirror, even in the absence of a probe beam. We have not investigated this possibility as yet, since our goal was to understand the amplification of a probe beam.

To our surprise, the double-pass gain with a probe beam became very sensitive to small adjustments in the mirror alignment as well as to the alignments of the

pump beams F and B . Also, very distinctive chirped oscillations appear in the double-pass spectrum (see Fig. 8). A third remarkable feature is the giant double-pass gain obtained, up to 1800%. Let us now turn to the explication of these features, which we will use in future work for realizing a cavity-type laser as well as for a random laser with cold atoms.

The oscillations in the double-pass spectrum of Fig. 8 can easily be understood by noting that the frequency of the conjugate beam is not identical to that of the incident probe beam. Indeed the FWM condition yields a beam of frequency:

$$\omega_C = 2\omega_{F,B} - \omega_P. \quad (3)$$

At resonance, $\omega_P = \omega_{F,B}$, the conjugate and probe beams have the same frequency, but as the probe frequency is tuned further from resonance, the frequency difference between the conjugate and probe beam increases. On the other hand, the transmitted beam (with Raman gain) is at the same frequency as the incident probe beam, since the gain is a stimulated emission process into the mode of the probe beam. When detecting in the backward direction in the presence of a mirror, we will get the result of NDFWM as well as double-pass Raman gain. When the mirror is carefully aligned, these two fields interfere, and the resulting beat note is the origin of the oscillations in Fig. 8. Also, the relative phase of the interfering beams now depends on the distance between the atomic cloud and the mirror. This cavitylike sensitivity explains the large shot-to-shot fluctuations observed on the signal at approximately $\delta=0$.

A more detailed analysis indicates that multipass effects must be taken into account, since the beam that is reflected off the mirror can produce a conjugate beam by itself and return to the mirror. In some sense, the quite large reflection coefficient we have described in a previous section produces a low-finesse cavity made by the mirror and the atomic sample. This cavity-type behavior makes our signal very sensitive to small fluctuations of, e.g., the mirror positions. We now need to include more than two fields to compute the total signal in the backward direction. Our model thus includes multiple reflections with frequency changes each time a beam is transformed into a conjugate beam. We denote by r_c the amplitude of the reflection coefficient off the atom cloud (i.e., the FWM con-

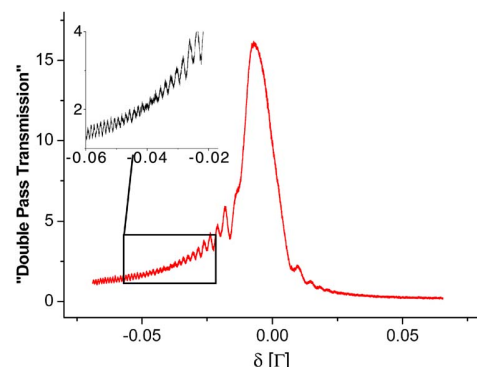


Fig. 8. (Color online) Double-pass gain spectrum as a function of pump detuning δ ($\Delta=-4.5\Gamma$, $s_{F,B}=23$, $s_P=0.01$ at maximum atom number $N_{\text{at}}=10^{10}$).

version efficiency), and t_F , t_B denote the amplitudes of the transmission coefficients through the atom cloud along the incoming path and reflected paths of the probe beam, respectively. This notation suggests that the Raman gain is dominated by the copropagating pump beam, as described in Section 4. We also assume, $t_F=t_B$, thus neglecting cross saturation and/or absorption effects. The incoming probe beam is denoted, $E_{\text{inc}}=E_0e^{i\omega_p t}$.

For a single interaction with the atomic cloud, the transmitted signal becomes $t_F E_0 e^{i\omega_p t}$, and the reflected signal $r_c E_0 e^{i(\omega_p-2\delta)t}$ is the conjugate signal of the incoming beam. We have computed the total reflected field in two different ways. First, we only consider the interference between the conjugate beam and the beam transmitted twice through the atomic cloud. The corresponding normalized signal is then given by

$$I_1 = |r_c e^{i(\omega_p-2\delta)t} + t_F t_B e^{i\omega_p t} e^{i\phi}|^2, \quad (4)$$

where the phase factor $\phi=2kL$ describes that phase difference of the beam between the atomic cloud and the mirror at a distance L .

In the experiment, we sweep the probe frequency, and δ becomes a function of time: $\delta=\alpha t$, with α of the order of 10^{-4} $\Gamma/\mu\text{s}$. The fast oscillations of Fig. 8 arise from the interference term $\cos(2\alpha\delta^2)$. We have verified in the experiment that the peak-to-peak distance of these oscillations follows a $1/\delta$ law, as expected. Also, due to Raman absorption for $\delta>0$ ($\Delta<0$), oscillations are strongly reduced since the amplitude of one interfering beam is very small. One interesting feature is the minimum in the contrast of the oscillations at approximately $\delta\approx-0.04\Gamma$ close to the maximum of the Raman gain (see the inset in Fig. 8). This feature can be explained by the π phase of the Raman resonance and illustrates the rich physics involved in this double-pass gain experiment.

A second, more complete analysis also includes multiple reflections between the atomic cloud and the back mirror. Since the frequency of the reflected beam flips around the pump frequency at each reflection off the atomic cloud, the total field can be written as

$$I_2 = \left| r_c e^{i(\omega_p-2\delta)t} + t_F t_B \sum_n r_c^{2n} e^{2ni\phi} e^{i\omega_p t} + t_F t_B \sum_n r_c^{2n+1} e^{(2n+1)i\phi} e^{i(\omega_p-2\delta)t} \right|^2. \quad (5)$$

In Fig. 9, we show the result of our simulations following Eqs. (4) and (5). When comparing the maximum gain obtained in our experiment with our model, we see that several reflections between the atomic cloud and the mirror need to be included to produce a total gain of 1800%, i.e., a transmission of the probe beam of 18. Indeed a single interference of a beam with a relative intensity of 0.8 and one with an intensity of 2 cannot produce the observed gain. With the FWM efficiency of 0.8, one can, however, see the atomic cloud and the back mirror as a low-finesse cavity of approximately $F=20$ (including roundtrip losses on the uncoated interfaces of the vapor cell). The large double-pass gain observed in our experiment can be explained by including these multiple reflections between the atomic cloud and the mirror. Also, the maximum of the total signal is closer to the maximum of

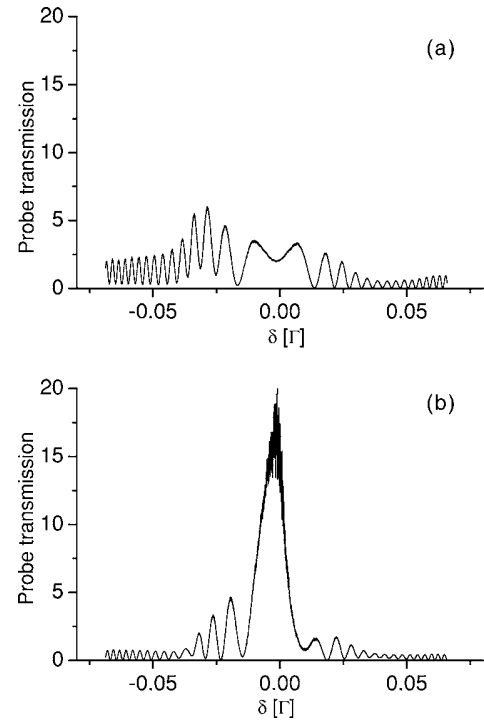


Fig. 9. Simulated double-pass gain spectrum using the experimental FWM result and Raman gain curve as input. (a) Only one interference term between the FWM and the Raman gain is included [see Eq. (4)]. (b) Multiple reflections between the atomic cloud and the back mirror are included [see Eq. (5)]. The signal depends crucially on the distance between the atomic cloud and the mirror ($L\approx 0.2$ m).

the NDFWM signal, consistent with the important role played by this effect. We notice, however, that the contrast of the oscillations for $\delta<0$ is clearly larger than observed in the experiment, and a maximum is not reached around the Raman resonance. We speculate that these reductions can be due to the convolution of the signal with the velocity distribution $f(v)$ of the atoms and by fluctuations of the cavity length during the integration of the signal (typically of the order of seconds). Indeed, Doppler broadening is of the order of 100 kHz, which can reduce the contrast of the faster oscillations of the interferences described by Eq. (5). We also notice important sweep-to-sweep fluctuations in the signal and the oscillations as well as the significant gain at the FWM resonance is strongly attenuated when long integration times have been used. Fluctuations of the mirror position can be reduced by better mechanical stability, and the Doppler broadening could be reduced by almost 1 order of magnitude by applying a molasses phase before the pump-probe beams.

6. CONCLUSION

In this paper, we have presented pump-probe experiments performed on a large cloud of cold atoms and identified the dominant gain mechanism as due to Raman transitions between different Zeeman sublevels. This gain mechanism might be of future interest to realize a random laser with cold atoms. We have observed an unexpected large gain in a double-pass configuration, due to

multiple four-wave mixing reflections between the atomic cloud and the mirror interfering with the Raman gain. This large gain should allow us to build a Fabry–Perot-type laser with cold atoms as the gain medium. This laser might present interesting features, since gain is based on a combination of mechanisms. The work presented in this paper thus opens the way for a variety of lasers that can be realized. If gain as presented in this work can be combined with larger atomic densities, one could also investigate the effect of coherent multiple scattering in the presence of gain when approaching the threshold of strong localization. Indeed, it would be interesting to study to what extent gain allows the observation of precursors of strong localization farther away from the localization threshold of passive systems. At present, however, two challenging tasks, i.e., combining gain and multiple scattering in a dilute system on one hand and reaching the threshold of localization in passive systems on the other hand, are investigated along separate routes.

ACKNOWLEDGMENTS

We thank G. Labeyrie for valuable help on the experimental setup. We acknowledge the financial support of CNRS and of the PACA Region. F. Michaud is funded by Direction Generale de l'Armement. J. W. R. Tabosa acknowledges CNRS, CAPES-COFECUB, and Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico for travel support.

REFERENCES

1. P. W. Anderson, "Absence of diffusion in certain random lattices," *Phys. Rev.* **109**, 1492–1505 (1958).
2. S. John, "Strong localization of photons in certain disordered dielectric superlattices," *Phys. Rev. Lett.* **58**, 2486–2489 (1987).
3. D. Clément, A. Varón, M. Hugbart, J. Retter, P. Bouyer, L. Sanchez-Palencia, D. Gangardt, G. Shlyapnikov, and A. Aspect, "Suppression of transport of an interacting elongated Bose–Einstein condensate in a random potential," *Phys. Rev. Lett.* **95**, 170409 (2005).
4. C. Fort, L. Fallani, V. Guarrera, J. Lye, M. Modugno, D. Wiersma, and M. Inguscio, "Effect of optical disorder and single defects on the expansion of a Bose–Einstein condensate in a one-dimensional waveguide," *Phys. Rev. Lett.* **95**, 170410 (2005).
5. J. E. Lye, L. Fallani, M. Modugno, D. Wiersma, C. Fort, and M. Inguscio, "A Bose–Einstein condensate in a random potential," *Phys. Rev. Lett.* **95**, 070401 (2005).
6. T. Schulte, S. Drenkelforth, J. Kruse, W. Ertmer, J. Arlt, K. Sacha, J. Zakrzewski, and M. Lewenstein, "Routes towards Anderson-like localization of Bose–Einstein condensates in disordered optical lattices," *Phys. Rev. Lett.* **95**, 170411 (2005).
7. P.-E. Wolf and G. Maret, "Weak localization and coherent backscattering of photons in disordered media," *Phys. Rev. Lett.* **55**, 2696–2699 (1985).
8. M. P. van Albada and A. Lagendijk, "Observation of weak localization of light in a random medium," *Phys. Rev. Lett.* **55**, 2692–2695 (1985).
9. Y. Kuga and A. Ishimaru, "Retroreflectance from a dense distribution of spherical particles," *J. Opt. Soc. Am. A* **8**, 831–836 (1984).
10. A. A. Chabanov, M. Stoytchev, and A. Z. Genack, "Statistical approach to photon localization," *Nature* **404**, 850–853 (2000).
11. G. Labeyrie, F. de Tomasi, J.-C. Bernard, C. A. Müller, Ch. Miniatura, and R. Kaiser, "Coherent backscattering of light by cold atoms," *Phys. Rev. Lett.* **83**, 5266–5269 (1999).
12. C. M. Aegerter, M. Störzer, and G. Maret, "Experimental determination of critical exponents in Anderson localization of light," *Europhys. Lett.* **75**, 562–568 (2006).
13. A. A. Chabanov, Z. Q. Zhang, and A. Z. Genack, "Breakdown of diffusion in dynamics of extended waves in mesoscopic media," *Phys. Rev. Lett.* **90**, 203903 (2003).
14. D. S. Wiersma, P. Bartolini, A. Lagendijk, and R. Righini, "Localization of light in a disordered medium," *Nature* **390**, 671–673 (1997).
15. F. Scheffold, R. Lenke, R. Tweer, and G. Maret, "Localization or classical diffusion of light," *Nature* **398**, 206–207 (1999).
16. D. S. Wiersma, J. Gomez Rivas, P. Bartolini, A. Lagendijk, and R. Righini, "Wiersma *et al.* reply," *Nature* **398**, 207 (1999).
17. V. S. Letokhov, "Generation of light by a scattering medium with negative resonance absorption," *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **53**, 1442–1452 (1967) [*Sov. Phys. JETP* **26**, 835–840 (1968)].
18. N. M. Lawandy, R. M. Balachandran, A. S. L. Gomes, and E. Sauvain, "Laser action in strongly scattering media," *Nature* **369**, 436–438 (1994).
19. H. Cao, Y. Xu, S.-H. Chang, and S. T. Ho, "Transition from amplified spontaneous emission to laser action in strongly scattering media," *Phys. Rev. E* **61**, 1985–1989 (2000).
20. Y. Bidet, B. Klappauf, J. C. Bernard, D. Delande, G. Labeyrie, C. Miniatura, D. Wilkowski, and R. Kaiser, "Coherent light transport in a cold strontium cloud," *Phys. Rev. Lett.* **88**, 203902 (2002).
21. D. V. Kupriyanov, I. M. Sokolov, P. Kulatunga, C. I. Sukenik, and M. D. Havey, "Coherent backscattering of light in atomic systems: application to weak localization in an ensemble of cold alkali-metal atoms," *Phys. Rev. A* **67**, 013814 (2003).
22. G. Labeyrie, E. Vaujour, C. A. Müller, D. Delande, C. Miniatura, D. Wilkowski, and R. Kaiser, "Slow diffusion of light in a cold atomic cloud," *Phys. Rev. Lett.* **91**, 223904 (2003).
23. G. Grynberg and C. Robillard, "Cold atoms in dissipative optical lattices," *Phys. Rep.* **355**, 335–451 (2001).
24. F. Y. Wu, S. Ezekiel, M. Ducloy, and B. R. Mollow, "Observation of amplification in a strongly driven two-level atomic system at optical frequencies," *Phys. Rev. Lett.* **38**, 1077–1080 (1977).
25. C. Mennerat-Robilliard, L. Guidoni, K. I. Petsas, P. Verkerk, J.-Y. Courtois, and G. Grynberg, "Bright optical lattices in a longitudinal magnetic field, experimental study of the oscillating and jumping regimes," *Eur. Phys. J. D* **1**, 33–45 (1998).
26. J. W. R. Tabosa, G. Chen, Z. Hu, R. B. Lee, and H. J. Kimble, "Nonlinear spectroscopy of cold atoms in a spontaneous-force optical trap," *Phys. Rev. Lett.* **66**, 3245–3248 (1991).
27. D. Grison, B. Lounis, C. Salomon, J.-Y. Courtois, and G. Grynberg, "Raman spectroscopy of cesium atoms in a laser trap," *Europhys. Lett.* **15**, 149–154 (1991).
28. T. M. Brzozowski, M. Brzozowska, J. Zachorowski, M. Zawada, and W. Gawlik, "Probe spectroscopy in an operating magneto-optical trap: the role of Raman transitions between discrete and continuum atomic states," *Phys. Rev. A* **71**, 013401 (2005).
29. J. Guo, P. R. Berman, B. Dubetsky, and G. Grynberg, "Recoil-induced resonances in nonlinear spectroscopy," *Phys. Rev. A* **46**, 1426–1437 (1992).
30. J.-Y. Courtois, G. Grynberg, B. Lounis, and P. Verkerk, "Recoil-induced resonances in cesium: an atomic analog to the free-electron laser," *Phys. Rev. Lett.* **72**, 3017–3020 (1994).
31. L. Hilico, C. Fabre, and E. Giacobino, "Operation of a 'cold-atom laser' in a magneto-optical trap," *Europhys. Lett.* **18**, 685–688 (1992).
32. A. Lambrecht, J. M. Courty, S. Reynaud, and E. Giacobino, "Cold atoms: a new medium for quantum optics," *Appl. Phys. B* **60**, 129–134 (1995).

33. C. von Cube, S. Slama, D. Kruse, C. Zimmermann, Ph. W. Courteille, G. R. M. Robb, N. Piovella, and R. Bonifacio, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 083601 (2004).
34. M. Vengalattore and M. Prentiss, "Recoil-induced resonances in the high-gain regime," *Phys. Rev. A* **72**, 021401(R) (2005).
35. G. L. Gattobigio, F. Michaud, J. Javaloyes, J. W. R. Tabosa, and R. Kaiser, "Bunching induced asymmetry in degenerate four-wave mixing with cold atoms," *Phys. Rev. A* **74**, 043407 (2006).
36. A. Lezama, G. C. Cardoso, and J. W. R. Tabosa, "Polarization dependence of four-wave mixing in a degenerate two-level system," *Phys. Rev. A* **63**, 013805 (2001).
37. M. Pinard, D. Grandclement, and G. Grynberg, "Continuous-wave self-oscillation using pair production of photons in four-wave mixing in sodium," *Europhys. Lett.* **2**, 755–760 (1986).
38. A. Novikov, V. Obukhovski, S. Odoulov, and B. Sturman, "Mirrorless coherent oscillation due to six-beam vectorial mixing in photorefractive crystals," *Opt. Lett.* **13**, 1017–1019 (1988).
39. G. Grynberg, E. le Bihan, P. Verkerk, and M. Ducloy, "Observation of instabilities due to mirrorless four-wave mixing oscillation in sodium," *Opt. Commun.* **67**, 363–366 (1988).
40. J. Guo, "Contribution of energy continuum states to probe the absorption signal of atoms in one-dimensional optical molasses," *Phys. Rev. A* **49**, 3934–3942 (1994).
41. Y.-C. Chen, Y.-W. Chen, J.-J. Su, J.-Y. Huang, and I. A. Yu, "Pump-probe spectroscopy of cold ^{87}Rb atoms in various polarization configurations," *Phys. Rev. A* **63**, 043808 (2001).
42. J. Y. Courtois, "Spectroscopie Raman et Rayleigh stimulie d'atomes refroidis par laser: dynamique des mélasses optiques unidimensionnelles," Ph.D. dissertation (Ecole Polytechnique, 1993).

4.3 Laser à atomes froids

On présente dans cette partie l'étude d'une cavité laser avec un nuage d'atomes froids comme milieu à gain. Il s'agit ici de se servir de l'ensemble des gains disponibles et étudier leur capacité à démarrer sur l'émission spontanée, comme dans un laser classique : on laisse la cavité sélectionner le mécanisme de gain convenant le mieux selon les paramètres de pompage. On verra par exemple, que l'on pourra passer continûment d'un type de laser à un autre, en changeant simplement le désaccord des pompes.

On commencera par décrire les caractéristiques de la cavité, puis on étudiera en détail chacun des régimes laser observés. Ce travail a conduit à une publication scientifique qui est jointe à ce manuscrit, en partie (4.3.4) [42].

4.3.1 Cavité laser

On place une cavité Fabry-Pérot plan-concave de part et d'autre de la cellule à vide (Fig 4.8), dont on donne les caractéristiques géométriques et optiques dans la suite. Enfin, pour tout complément, dans l'annexe C, on rappelle la méthode de calcul des modes d'une cavité.

Caractérisation géométrique

Nous avons choisi une cavité de géométrie plan concave car c'est le type de cavité permettant d'obtenir une taille de faisceau la plus grande possible au niveau du nuage.

Nous redémontrons cette propriété en faisant le calcul pour le mode fondamental d'un faisceau gaussien. On rappelle les propriétés de propagation d'un faisceau gaussien, en notant $w(z)$ la taille du faisceau et $R(z)$ le rayon de courbure, défini en fonction de la distance z de propagation :

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \frac{z^2}{z_R^2}} \quad (4.3)$$

$$R(z) = z + \frac{z_R^2}{z} \quad (4.4)$$

w_0 est appelé le **waist** et caractérise la dimension transverse² du faisceau et z_R est la distance de Rayleigh. z_R est relié au waist via la relation :

$$z_R = \pi \frac{w_0^2}{\lambda} \quad (4.5)$$

²définie par la taille du rayon à la hauteur $1/e^2$

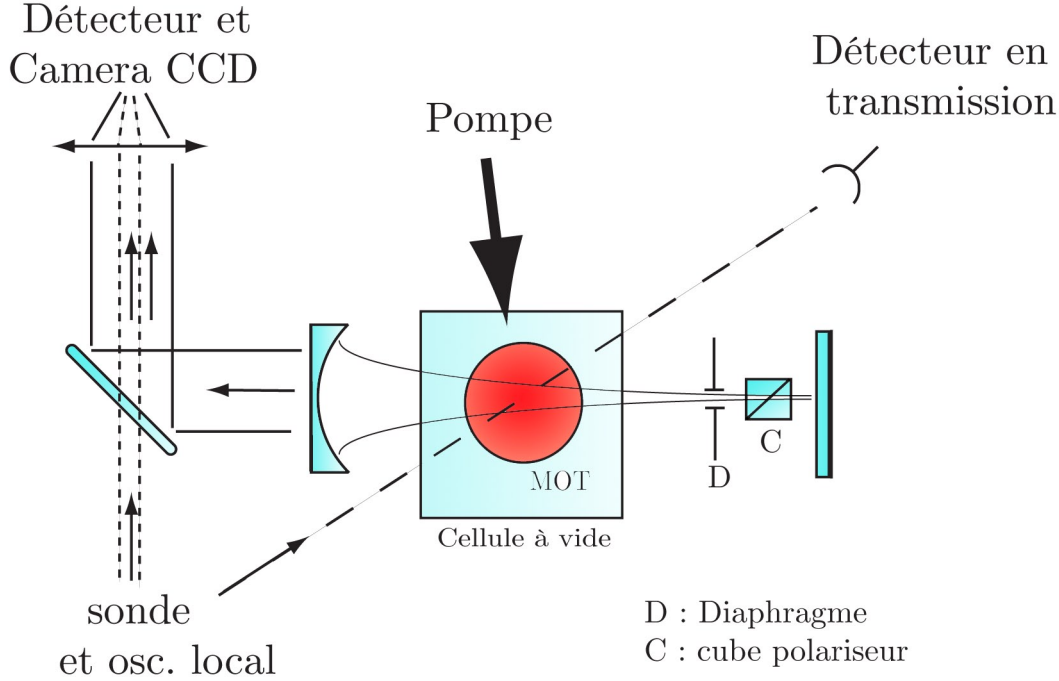


FIG. 4.8 – Cavit  laser et d tection. L'angle d'incidence des pompes par rapport   la cavit  vaut environ 20 degr s. Une sonde nous sert   effectuer des battements avec le laser pour d terminer sa fr quence.

En consid rant notre cavit  de longueur L avec un miroir concave de rayon R_m , l'adaptation de mode impose que $R(L) = R_m$ [118], ce qui conduit d'apr s la relation (4.4)   :

$$z_R = \sqrt{(R_m - L)L} \quad (4.6)$$

et donc le waist de la cavit  est donn  par :

$$w_{cav} = \sqrt{\frac{\lambda}{\pi} \sqrt{(R_m - L)L}} \quad (4.7)$$

En pratique, le rayon de courbure du miroir concave est de 1 m (focale de 50 cm) et la longueur de la cavit  est $L=80$ cm. L'application num rique de (4.7) nous donne un waist de $330 \mu m$ au niveau du miroir plan et en se servant de (4.3), environ $500 \mu m$ au niveau du nuage d'atomes.

Caract risation optique

Deux grandeurs caract risent les propri t s optiques d'une cavit  de type Fabry-P rot : la finesse et l'intervalle spectral libre. Ces deux grandeurs param trent la fonction de transmission   travers une cavit  (Fig 4.9).

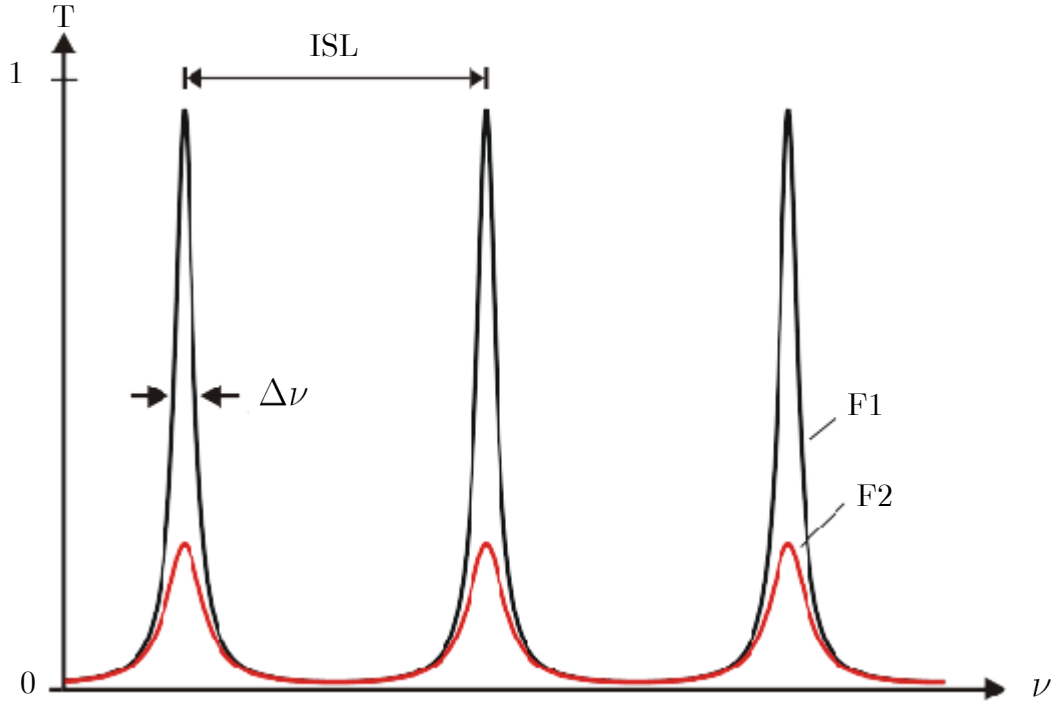


FIG. 4.9 – Fonction de transmission d’une onde à travers une cavité Fabry-Pérot. On a tracé 2 finesse de valeurs différentes $F_1 > F_2$. Dans le cas F_2 , on a introduit des pertes dans la cavité.

La cavité sert de filtre laissant passer uniquement certaines fréquences, chacune espacée de l’intervalle libre ISL , qui traduit le temps que mettent les photons à faire un aller retour :

$$ISL = \frac{c}{2L} \quad (4.8)$$

Dans notre cas $ISL = 187$ GHz. La finesse \mathcal{F} caractérise la sélectivité du filtre, car la largeur des pics de résonances $\Delta\nu$ est donnée par la relation :

$$\frac{\Delta\nu}{2\pi} = \frac{1}{\mathcal{F}} \frac{c}{L} \quad (4.9)$$

La finesse s’écrit en fonction des coefficients de réflexion des miroirs :

$$\mathcal{F} = \frac{\pi(R_1 R_2)^{1/4}}{1 - \sqrt{R_1 R_2}} \quad (4.10)$$

Notre cavité est composée d’un miroir concave de coefficient de réflexion égal à $R_1=95\%$ et d’un miroir plan de coefficient de réflexion R_2 égal à 99.5% . Nous avons donc une finesse théorique de 111.

En réalité la finesse de la cavité est entièrement dominée par les pertes dans la cellule à vide : la transmission mesurée sur un laser à résonance atomique traversant la cellule est 84%. Les pertes se situent en grande partie sur les deux faces non traitées anti-reflet de la cellule à vide, et par l'absorption des atomes chauds dans une moindre mesure. En considérant un terme de pertes, on montre que la finesse s'écrit [119] :

$$\mathcal{F} = \frac{\pi\sqrt{\mathcal{T}}(R_1R_2)^{1/4}}{1 - \mathcal{T}\sqrt{R_1R_2}} \quad (4.11)$$

où \mathcal{T} est la transmission à travers la cavité ($\mathcal{T} = 84\%$).

L'application numérique donne $\mathcal{F}=16$, ce qui implique $\Delta\nu=22\text{MHz}$. Il s'agit d'une finesse faible. Cette mauvaise finesse poserait un problème si typiquement les courbes de gain étaient très larges (quelques centaines de GHz), comme souvent dans les lasers connus (Nd :YAG, Ti :Sa, etc...). La largeur du spectre du laser serait limitée par sa largeur $\Delta\nu$ des pics Fabry-Pérot. Dans notre cas, nous travaillons avec des courbes de gain très étroites par rapport à $\Delta\nu$: de quelques 100 kHz pour le gain Raman et le mélange à quatre ondes, à quelques MHz pour le gain Mollow.

On peut faire l'hypothèse, que l'on ne s'attend donc pas à observer un rétrécissement du spectre du laser par rapport à la largeur des courbes de gain, car nous sommes effectivement limités par la courbe de gain. A priori, on ne pourra pas distinguer le mécanisme de gain via la sélection par la cavité : nous aurons d'autres méthodes de caractérisation, comme mesurer le spectre du laser par une méthode de battement, ou sonder le gain sur un autre axe que celui de la cavité (Fig. 4.8).

Enfin pour conclure cette partie, on rappelle la condition de seuil laser est pour un gain en transmission :

$$g^2(1 - \mathcal{L}) = 1 \quad (4.12)$$

où \mathcal{L} sont les pertes d'un aller retour dans la cavité, avec le miroir concave pris comme coupleur de sortie. Ici \mathcal{L} vaut 32% (mesuré expérimentalement), donc le gain par simple passage g doit valoir 1.21 au seuil laser. Or nous avons vu dans le précédent qu'une telle condition est facilement vérifiée avec les gains étudiés. On remarquera que la condition de seuil est différente dans le cas du mélange à quatre ondes (voir partie 4.3.3.3), et on peut avoir une émission laser pour un coefficient de réflexion de mélange à quatre ondes inférieur à 1.

4.3.2 Fonctionnement et détection

L'expérience fonctionne avec le même cycle temporel déjà présenté (Chap 3, partie (3.7.1)). On éteint les faisceaux pièges et le champ magnétique, pendant

que le nuage est éclairé par les pompes F et B. Le laser repompeur est gardé allumé afin d'éviter le pompage optique dans le niveau hyperfin $F = 2$. Par contre, l'asservissement en fréquence de ce dernier est suspendu pendant le temps de la mesure, de manière à réduire les oscillations d'intensité³ du laser repompeur qui provoquent des anomalies sur le signal.

Le taille des lasers pompes est donnée par le waist $w_{pump}=2.6$ mm, qui permet de définir l'intensité :

$$I = \frac{2P}{\pi w_{pump}^2}$$

En pratique, nous pouvons faire varier l'intensité des pompes de 0 à environ 750 mW/cm², et le désaccord par rapport à la résonance atomique de -7Γ à $+7\Gamma$ environ, de manière à explorer l'espace des paramètres où l'on observe le gain Raman, Mollow et mélange à quatre ondes. Les deux schémas de polarisation pompe-sonde sont toujours $F//(B)//p$ ou $F//(B) \perp p$.

Dans la cavité, nous plaçons un cube polariseur, monté sur une monture pivotante, afin de pouvoir sélectionner une polarisation du faisceau intra-cavité qui soit parallèle ou perpendiculaire à celle des pompes. On a de plus la possibilité de mettre un diaphragme dans la cavité afin d'éliminer éventuellement les modes transverses d'ordre élevé (Fig 4.8).

Ce montage nous permet ainsi d'obtenir en sortie de la cavité un signal laser avec divers modes de cavité, qui diffèrent suivant le mécanisme de gain en oeuvre (figure 4.10).

Le signal laser émis est dirigé vers un détecteur (photomultiplicateur ou photodiode classique) et une camera CCD. Les signaux servant à l'exploitation des données sont en général la moyenne d'une sommation de mesures sur plusieurs centaines de cycles de l'expérience.

Nous avons deux techniques afin de caractériser le mécanisme de gain à l'origine de l'émission laser :

- Nous avons mis en place une technique de détection permettant de mesurer la fréquence d'émission de notre laser à atomes froids. C'est une méthode d'hétérodynage qui consiste à comparer la fréquence ω_L de notre laser à celle d'un laser étalon de fréquence connue ω_{ref} (aussi appelé oscillateur local). En faisant superposer les deux faisceaux sur un détecteur, nous mesurons un signal :

$$S \propto |e^{i\omega_L t} + e^{i\omega_{ref} t}|^2$$

On obtient alors un signal d'interférence lequel contient une fréquence dite de battement $\omega_L - \omega_{ref}$. En pratique nous utilisons le laser sonde très peu désaccordé des lasers pompes comme étalon. Cela permet en effet de

³causée par la modulation du laser maître pour l'asservissement en fréquence.

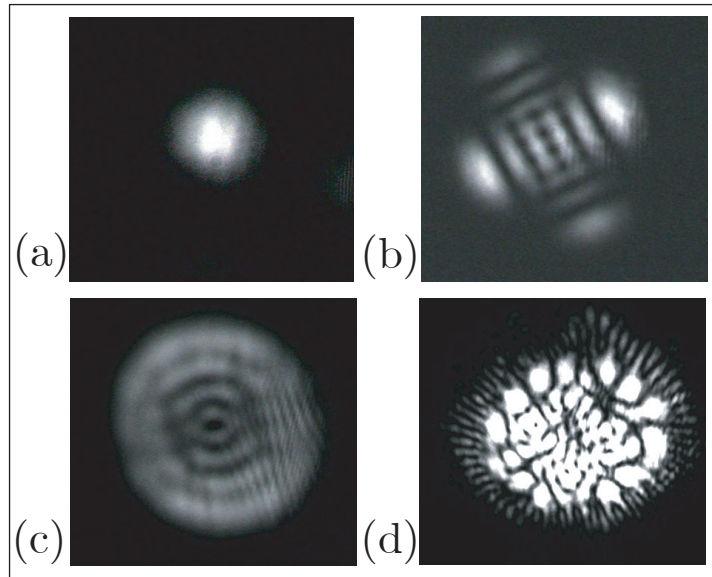


FIG. 4.10 – Acquisition des modes transverses du laser à atomes froids sur camera CCD. (a) faisceau au profil gaussien, obtenu en insérant un diaphragme dans la cavité. Quelques modes typiques observés : (b) Raman laser, (c) Mollow laser et (d) laser mélange à quatre ondes.

produire une fréquence de battement le plus souvent dans la gamme de bande passante d'un détecteur classique (nous pouvons balayer des écarts de fréquence de $8\Gamma = 45$ MHz ($\Gamma \simeq 6$ MHz), mais nous sommes le plus souvent limités par la bande passante des détecteurs qui est en général de 15 MHz).

- Nous pouvons sonder le nuage d'atomes pendant le cycle d'émission laser et reproduire les spectres de gain Raman et Mollow du Chap 3. Nous utilisons le faisceau sonde balayé en fréquence autour de la fréquence des pompes. Pendant l'émission laser on vérifie effectivement une déplétion dans le spectre de gain sur la sonde. Cela nous prouve que le gain sondé est a priori celui qui produit l'émission laser.

4.3.3 Lasers multiples

Dans cette partie nous allons étudier plus en détail les trois types de laser observés. Nous pouvons passer continûment d'un laser à l'autre en changeant le mécanisme de gain. Pour cela nous avons à disposition le fait de pouvoir allumer la pompe F ou la pompe B, ou les deux simultanément : on fait ainsi apparaître ou

disparaître le mélange à quatre ondes. Nous pouvons faire varier le désaccord des lasers pompes et passer d'un gain Mollow dominant à un gain Raman dominant.

Le tableau (4.1) illustre les limites des différents régimes laser, et dans les trois paragraphes suivants on étudiera en détail chaque type de laser :

	$\Delta < -4\Gamma$	$-4\Gamma < \Delta < +4\Gamma$	$\Delta > +4\Gamma$
F	Raman (\perp)	Mollow ($//$)	Raman (\perp)
F+B	FWM (\perp)	Mollow ($//$)	FWM ($//$)

TAB. 4.1 – Différents régimes dominants du laser à atomes froids en fonction du désaccord Δ des pompes F et B. Entre parenthèses est précisé l'état de polarisation du laser par rapport aux pompes.

4.3.3.1 Laser Mollow

Cette partie est consacrée à l'étude du laser dont le mécanisme de gain est le gain Mollow. En premier lieu, on rappelle le mécanisme du gain Mollow vu au Chap. 3, partie (3.3) : on considère un atome à deux niveaux d'énergie éclairé par un faisceau pompe intense, de fréquence ω_F , et un faisceau sonde perturbatif, de fréquence ω_p . On montre que la pompe crée une inversion de population dans les états propres de l'atome habillé. La sonde provoque des désexcitations stimulées, lorsque le désaccord par rapport à la pompe, correspond à certaines résonances du système.

Le spectre de transmission de la sonde possède principalement deux résonances autour de $\delta = \omega_p - \omega_F$: une présente du gain et l'autre de l'absorption (insert de la Fig. 4.12). Dans le cas où la sonde est peu saturante, on peut donner une expression analytique du gain Mollow :

$$g_M = e^{b_0 \alpha''(\Omega_F, \Delta_F, \delta) \frac{\omega_p}{c}} \quad (4.13)$$

avec b_0 l'épaisseur optique à résonance du nuage, Ω_F la pulsation de Rabi de la pompe, Δ_F le désaccord pompe, δ le désaccord pompe-sonde. α'' est donné par l'expression [85] :

$$\alpha''(\Omega_F, \Delta_F, \delta) = -\frac{6\pi c^3 \Gamma}{\omega_{at}^3} \frac{|z|^2}{2|z|^2 + \Omega_F^2/2} \Re \left[\frac{(\Gamma + i\delta)(z + i\delta) - i\Omega_F^2 \delta / (2z)}{(\Gamma + i\delta)(z + i\delta)(z^* + i\delta) + \Omega_F^2(\Gamma/2 + i\delta)} \right] \quad (4.14)$$

avec $z = \Gamma/2 - i\Delta_F$, et on rappelle que $\Omega_F^2 = \Gamma^2 I / (2I_{sat})$.

La position respective des résonances est fonction de l'intensité du pompage et du désaccord des pompes, varie selon la loi $\sqrt{\Delta_F^2 + \Omega_F^2}$. La position des résonances peut ainsi varier de plusieurs fois la valeur de Γ , et la largeur typique des résonances est de l'ordre de Γ . L'amplitude du gain est quant à elle fonction

de l'épaisseur optique du nuage. Une particularité intéressante est que l'on peut observer expérimentalement du gain proche de la résonance atomique.

En pratique, on éclaire le nuage d'atomes placé dans la cavité, avec un seul faisceau pompe (nous avons vérifié que la pompe F, ou la pompe B, donnait des résultats identiques) suivant le schéma classique de spectroscopie pompe-sonde. On observe alors une émission laser qui démarre sur le bruit de l'émission spontanée du faisceau pompe. Ce laser fonctionne pour des désaccords de pompe allant de -4Γ à $+4\Gamma$ de part et d'autre de la résonance atomique, correspondant au régime où le gain Mollow est optimal.

Il est important de faire remarquer de nouveau que le système choisit lui-même le mécanisme de gain dominant qui lui permet de laser : par exemple si l'on augmente le désaccord au delà de 4Γ , l'émission laser va changer de propriétés, car le gain Raman devient dominant sur le gain Mollow (partie 4.3.3.2). On verra aussi qu'il existe des régimes frontières, où les deux gains cohabitent (partie 4.3.3.4)

Dans la suite, nous allons caractériser cette émission laser, en commençant par présenter l'allure des modes transverses, puis l'étude du seuil, et enfin quelques propriétés sur l'aspect dynamique. Nous allons également utiliser la courbe théorique de saturation du gain Mollow, afin de simuler l'intensité émise par le laser.

Profils d'intensités des modes transverses

La figure (4.11) montre l'allure de modes transverses typiques lorsque l'on se trouve en régime de gain Mollow. Dans ce régime, nous avons vérifié que le laser possède une polarisation parallèle à celle du faisceau pompe, ce qui valide bien le mécanisme de gain. Les modes observés possèdent une symétrie cylindrique du type Laguerre-Gauss : nous avons émis l'hypothèse que cette géométrie est favorisée dans la cavité car les faisceaux pompes et laser sont dans le même état de polarisation, mais cela reste à confirmer.

Par nature, ces modes sont d'ordres élevés, ce qui est caractéristique d'une cavité peu sélective. Nous pouvons néanmoins isoler des modes fondamentaux du type TEM_{00} , TEM_{01}, \dots , en fermant au maximum le diaphragme placé dans la cavité (Fig 4.8). Le profil d'intensité des modes observés est inhérent au mécanisme de gain, car nous allons voir dans le paragraphe suivant que des modes de Hermite-Gauss sont observés, lorsque que l'on passe en régime du gain Raman.

Seuil Laser

Nous regardons ici l'évolution de l'intensité du laser, en fonction de divers paramètres (puissances pompes, désaccord pompe, nombre d'atomes) afin de déterminer des courbes de seuil laser.

Dans un premier temps, nous vérifions que la valeur du gain faisant laser le nuage d'atomes, correspond bien au critère (4.12). En effet, en parallèle au

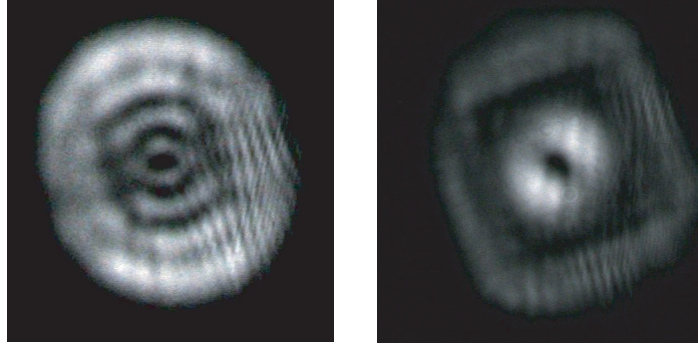


FIG. 4.11 – deux exemples des modes transverses du laser Mollow. Une symétrie sphérique semble favorisée.

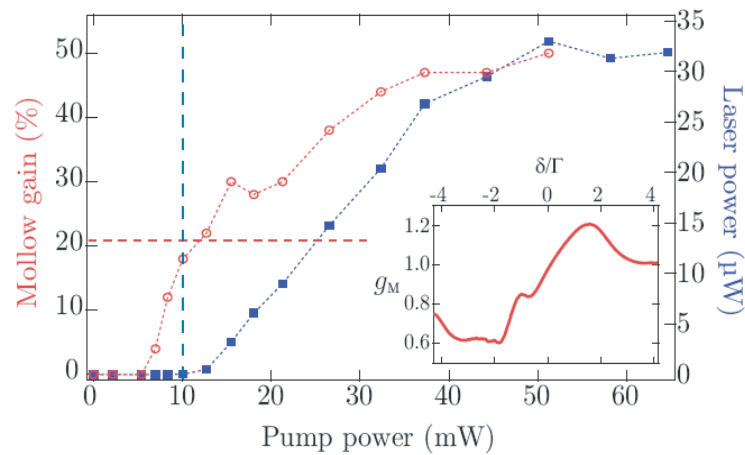


FIG. 4.12 – Courbe de seuil laser Mollow en fonction de la puissance pompe (courbe bleue). Intensité du gain Mollow mesuré sur la sonde (Courbe rouge). En insert, un exemple de spectre de gain Mollow : les fréquences qui lasent sont celle dont le gain excède 20%. ($\Delta_F = 1\Gamma$, $b_0 = 11$)

fonctionnement du laser, nous pouvons sonder le nuage d'atomes et mesurer le gain par transmission (Fig 4.8). Nous avons ainsi une preuve de plus sur l'origine du gain responsable de l'émission laser.

Nous pouvons ainsi, comme illustré par la figure (4.12), tracer la puissance du laser en fonction de la puissance pompe et vérifier que le laser démarre pour un gain Mollow de 20%. Nous obtenons bien un comportement de **seuil laser** (rupture de pente de l'intensité laser), comme dans un laser classique, dès que le gain excède les pertes. L'intensité maximum mesurée est environ $30 \mu\text{W}$.

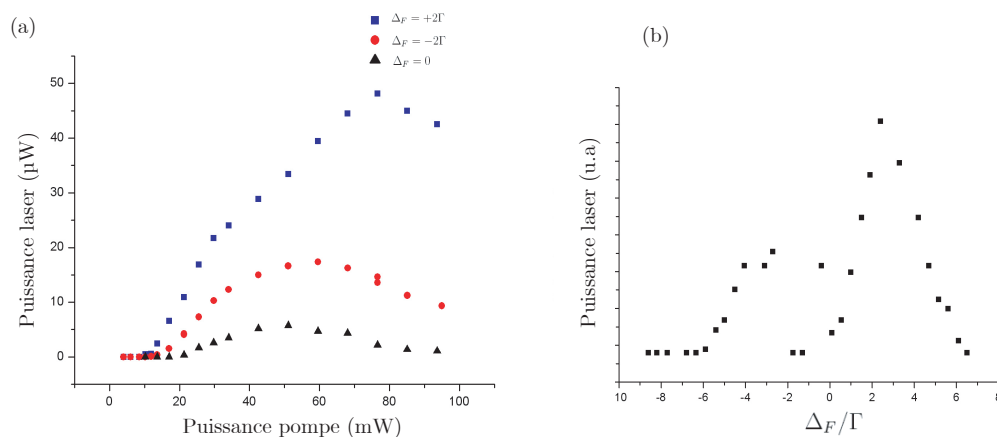


FIG. 4.13 – Evolution de l'intensité du laser Mollow en fonction de (a) puissance pompe pour plusieurs désaccords, et (b) intensité maximale du laser Mollow en fonction du désaccord pompe à puissance fixe.

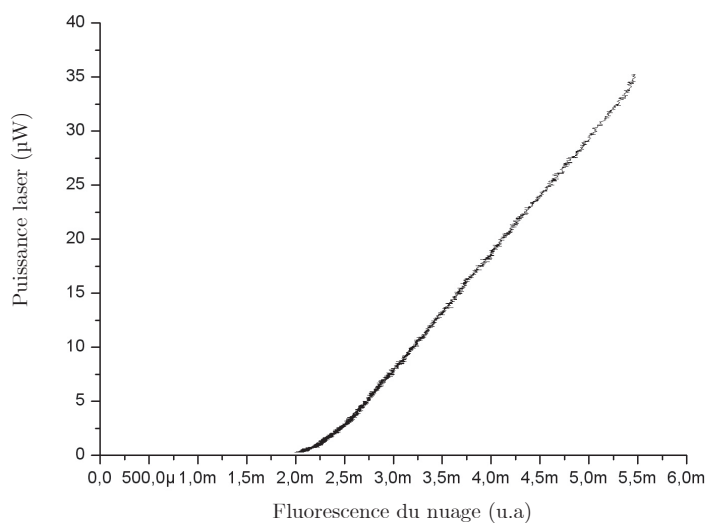


FIG. 4.14 – Intensité du laser Mollow en fonction du nombre d'atomes dans le nuage. On suppose que le nombre d'atomes est proportionnel à la fluorescence du nuage à faible épaisseur optique.

Nous avons suivi également l'évolution de l'intensité du laser en fonction du désaccord et la puissance des pompes (Fig. (4.13) (a) et (b)), et il y a clairement un optimum pour les désaccords $\Delta_F = \pm 2 - 3\Gamma$. L'asymétrie rouge-bleue (Fig. (4.13) (b)), n'est pas encore comprise, mais un effet mécanique en est probable-

ment responsable.

L'évolution de l'intensité laser en fonction du nombre d'atomes piégés est donnée par la figure (4.14), et présente aussi un comportement de seuil. Nous faisons varier le nombre d'atomes en coupant progressivement l'intensité du laser repompeur, et nous mesurons la fluorescence du nuage, qui dans le cas des faibles épaisseurs optiques, est proportionnelle au nombre d'atomes dans le piège.

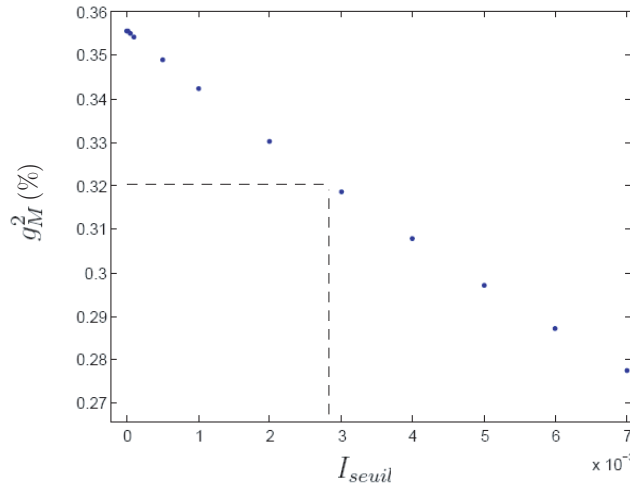


FIG. 4.15 – Résolution graphique de l'équation $g_M^2(I) = 0.32$

Notons que l'on peut comparer ici l'intensité du laser, par rapport à celle prédite avec la théorie. En effet, au chapitre 3, partie (3.3.2.2), nous avons étudié la saturation du gain Mollow, en fonction de l'intensité de la sonde. Les variations de la courbe $g_M(I_S)$ est donnée par le graphique (3.7).

Au seuil laser, on satisfait la condition où le gain linéique par double passage (exprimé en %), est égal aux pertes du système (exprimées également en %) : $g_M^2(I_{seuil})(1 - \mathcal{L}) = 1$, donc on obtient :

$$I_{seuil} = g_M^{-1}(\sqrt{1 - \mathcal{L}}) \quad (4.15)$$

où g_M^{-1} représente la fonction inverse de g_M . On résout graphiquement cette équation (Fig (4.15)), en prenant $\mathcal{L} = 32\%$. La solution est alors $I_{seuil} \simeq 2.8 \mu\text{W}$, c'est de l'ordre de ce qui est mesuré expérimentalement sur la courbe de seuil laser (Fig. (4.12)).

On peut maintenant appliquer ce même raisonnement, en faisant varier l'intensité pompe, et reproduire la courbe de seuil expérimentale. La figure (4.16)

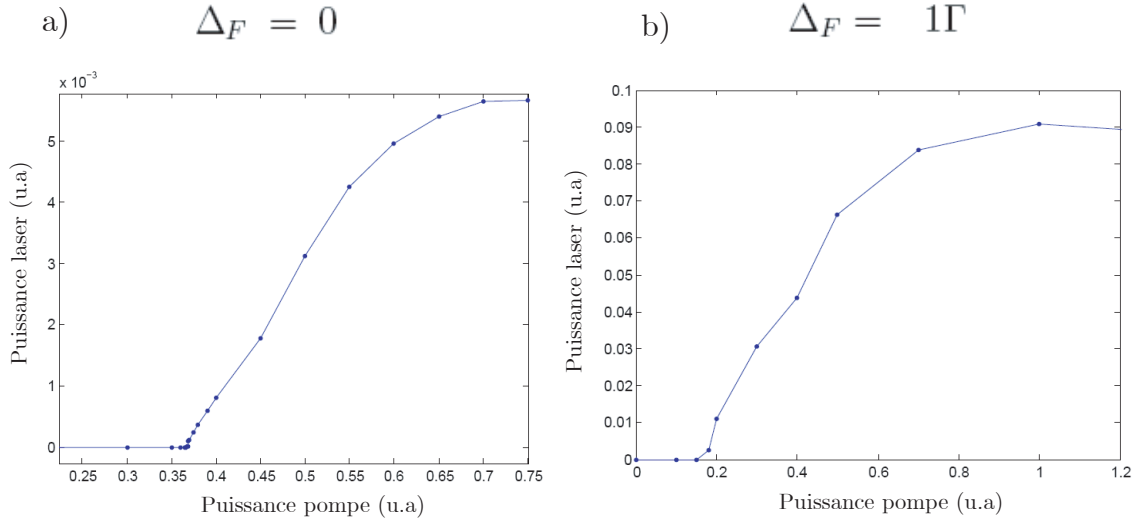


FIG. 4.16 – Seuil laser Mollow calculé théoriquement. a) Pompe à résonance atomique $\Delta_F = 0$, b) Pompe légèrement désaccordée de résonance atomique $\Delta_F = 1\Gamma$, afin de reproduire la courbe 4.12 expérimentale. Lorsque que la pompe est à résonance atomique, on atteint plus vite le régime de saturation du laser (à $\Delta_F = 0$, $I_{P_{sat}} \simeq 2I_{P_{seuil}}$), alors que à $\Delta_F = -1\Gamma$, $I_{P_{sat}} \simeq 5I_{P_{seuil}}$)

représente les variations de la puissance laser émise en fonction de la puissance pompe appliquée. Ce calcul numérique reproduit correctement le comportement du seuil laser mollow expérimental, et notons que l'on atteint plus vite la saturation du laser lorsque que l'on est proche de résonance atomique.

Aspect dynamique et temporel

Le profil temporel de ce laser est donné par la figure (4.17). On n'observe pas de délai entre l'allumage du faisceau pompe et l'émission du laser Mollow (dans la limite du temps mesurable, limité par la bande passante du détecteur qui est d'environ $1 \mu\text{s}$). Le pic d'intensité observé au début de l'émission laser est attribué à un effet de dépompage. Le laser fonctionne pendant tout le temps d'allumage de la pompe.

Par contre, nous avons rencontré des problèmes dans la caractérisation fréquentielle du laser (Fig. 4.18).

Nous avons vu que la cavité n'était pas assez sélective en fréquence afin de sélectionner une partie spécifique de la courbe de gain. Nous pensons donc que toutes les fréquences excédant un gain de 20 % dans la courbe du spectre de gain,

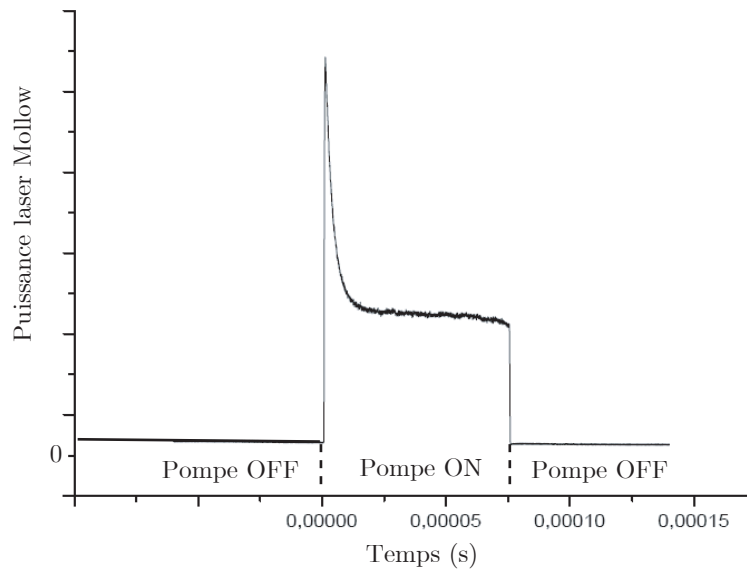


FIG. 4.17 – Trace temporelle du laser Mollow, mesuré en sortie de la cavité. Un pic dû au dépompage est remarquable à l’allumage du laser.

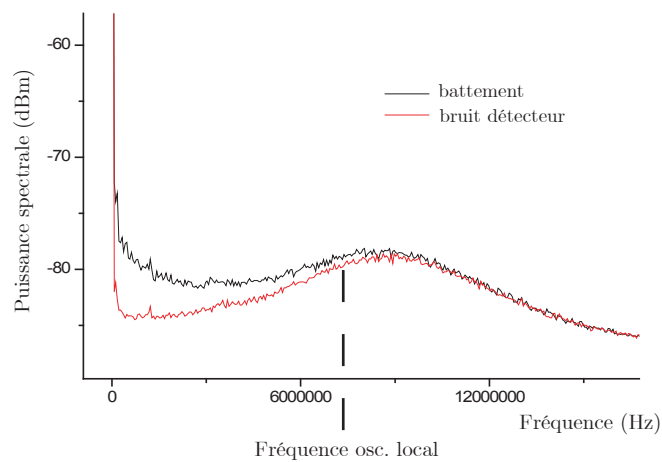


FIG. 4.18 – Spectre de battement du laser Mollow. Nous ne détectons pas de pics de fréquence particulier, seulement un spectre de bruit large.

sont présentes dans l’émission laser. Ainsi la largeur spectrale du laser doit être de l’ordre de Γ . La caractérisation expérimentale par la méthode des battements (voir 4.3.2) n’a pas donné de résultat : nous pensons que d’une part la bande

passante du détecteur utilisé n'est pas suffisante pour détecter correctement un spectre large de 1 ou 2 Γ . D'autre part, nous avons vu que la position de la résonance Mollow varie assez vite, et dépasse les fréquences que nous pouvons explorer avec l'oscillateur local (limité par les AOM). Nous gardons par contre toute confiance sur le fait c'est bien le gain Mollow qui est à l'origine de l'émission laser.

4.3.3.2 Laser Raman

Dans cette partie, nous étudions le laser basé sur le gain Raman. Ce type de laser a pour la première fois été observé par [114]. Nous garderons le même schéma d'étude que dans la partie précédente, en commençant par un bref rappel du mécanisme de gain.

On doit considérer un système à trois niveaux d'énergie : deux niveaux fondamentaux non dégénérés et un niveau excité. Dans le cas de l'atome de Rubidium, les transitions Raman qui sont observées sont celles entre les sous-niveaux Zeeman du niveau $F = 3$ ⁴, couplées par les faisceaux pompes et sonde en polarisation croisée $F \perp p$. On montre que la pompe crée une inversion de population entre les sous-niveaux Zeeman. Comme précédemment, la sonde provoque des désexcitations stimulées, et certaines fréquences correspondent à des résonances présentant du gain.

Le processus Raman produit des résonances de largeur $\gamma \simeq \Gamma_s$, qui sont de l'ordre de 100 kHz, donc très fines par rapport à la largeur naturelle du niveau excité. Le spectre Raman présente deux résonances : une présentant du gain, l'autre de l'absorption. La position ω_R des résonances est fonction de l'écart d'énergie entre les sous-niveaux Zeeman.

On rappelle que le gain Raman s'exprime par la relation suivante, dans le cas d'une sonde peu saturante, et une pompe désaccordée loin de résonance atomique :

$$g_R = e^{b_0 \alpha''(\Omega_F, \Delta_F, \delta) \frac{\omega_p^2}{c}} \quad (4.16)$$

avec dans le cas d'une transition $J = 1 \rightarrow J = 2$ [99] :

$$\alpha'' \sim \frac{\Omega_F^2}{\Delta_F^2} \left(\frac{4\gamma}{(\delta + \omega_R)^2 + \gamma^2} - \frac{9\gamma}{(\delta - \omega_R)^2 + \gamma^2} \right) \quad (4.17)$$

Un exemple expérimental de spectre de gain en transmission est donné dans l'insert de la figure (4.20).

En pratique, on éclaire le nuage d'atomes placé dans la cavité, avec un seul faisceau pompe (F ou B) suivant le schéma classique de spectroscopie pompe-sonde. On observe alors une émission laser qui démarre sur le bruit de l'émission

⁴Des résonances Raman pourraient également exister entre les niveaux hyperfins $F = 3$ et $F = 2$, mais cela est difficile à cause du dépompage

spontanée du faisceau pompe. Ce laser fonctionne pour des désaccords de pompe $|\Delta_F| > 4\Gamma$, correspondant au régime où le gain Raman est optimal.

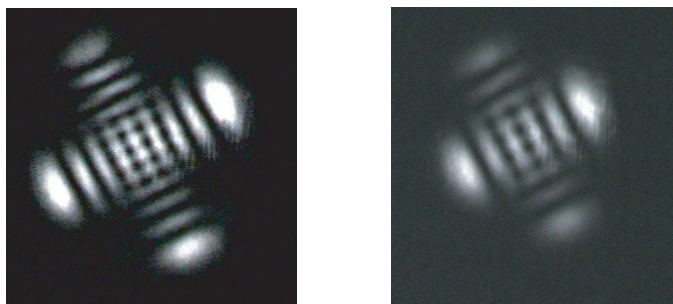


FIG. 4.19 – deux exemples des modes transverses du laser Raman. Il s'agit d'une superposition de modes d'Hermite-Gauss TEM_{08} , TEM_{011} , etc... [120]. Une symétrie rectangulaire est ici favorisée.

Profils d'intensités des modes transverses

La figure (4.19) illustre l'allure de modes transverses typiques, lorsque l'on se trouve en régime de gain Raman. Nous avons vérifié que le laser possède une polarisation perpendiculaire à celle du faisceau pompe.

La symétrie des modes est maintenant de type rectangulaire, avec des modes de type Hermite-Gauss, ce qui change radicalement du cas précédent. Nous supposons que le changement de polarisation du laser, favorise les modes de symétrie axiale dans la cavité.

Seuil Laser

Comme illustré par la figure (4.20), nous pouvons tracer la puissance du laser Raman en fonction de la puissance du pompage. Nous obtenons bien un comportement de **seuil**, comme dans un laser classique, dès que le gain excède les pertes.

La courbe de seuil Raman enregistrée ici est une moyenne du spectre de gain enregistré avec F et B séparément, afin de prendre en compte les différences de comportement du spectre Raman avec une pompe copropageante et contrapropageante. En effet, comme nous avons déjà vu, la courbe de gain Raman est très sensible à l'effet Doppler qui dépend de l'angle qu'effectue la pompe avec le sens de propagation du laser. Ici, le faisceau laser va être amplifié lorsqu'il est copropageant avec F, mais au retour, la résonance est décalée, et donc le gain n'est plus présent à la même fréquence.

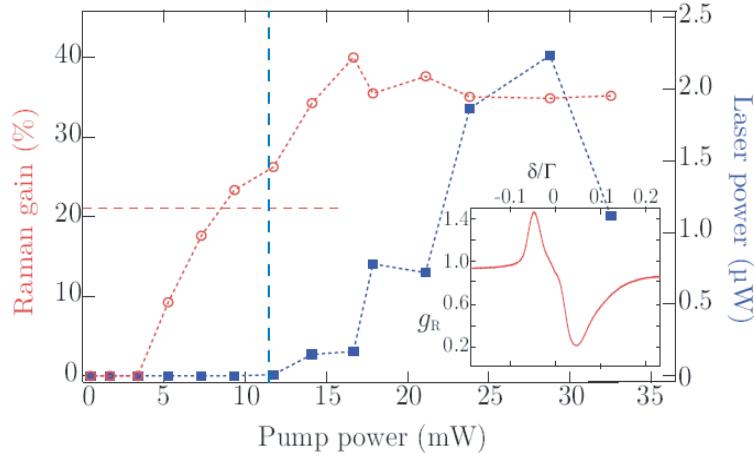


FIG. 4.20 – Courbe de seuil laser Raman en fonction de la puissance pompe (courbe bleue). Intensité du gain Raman mesuré sur la sonde (Courbe rouge). En insert, un exemple de spectre de gain Raman : les fréquences qui lasent sont celles dont le gain excède 20%. ($\Delta_F = -7\Gamma$, $b_0 = 10$).

Au final, ce biais expérimental fait que ce laser ne fonctionne pas très bien : très faible intensité de $2 \mu\text{W}$ au maximum, et une dynamique temporelle sensible à l’effet de pression de radiation des pompes. La solution à ce problème est d’équilibrer la pression de radiation en rétroalignant F et B, mais dans cette configuration, nous produisons un faisceau de mélange à quatre ondes qui domine totalement l’émission laser.

Aspect fréquentiel et temporel

Contrairement au laser Mollow qui produit une émission laser pendant toute la durée durant laquelle les atomes sont pompés, le laser Raman s’arrête toujours après environ $30 \mu\text{s}$, comme illustré sur la figure (4.21). Nous avons vérifié que cela est dû à la fois, à l’effet mécanique des pompes sur les atomes et à l’effet Doppler, mettant les atomes hors résonance Raman, et ainsi ne permettant pas un “build up” constructif dans la cavité.

Le retard systématique à l’allumage de $5 \mu\text{s}$ du laser par rapport à l’allumage des pompes, n’est pas encore très bien compris. Notons que la superfluorescence [121] produit un effet similaire, et reste une voie à explorer.

Les résonances Raman étant très étroites, l’analyse fréquentielle du laser Raman via la technique de battement est possible, et donne de bons résultats. Nous vérifions sur la figure (4.22) que le laser fonctionne bien à la fréquence où le gain Raman est maximal, c’est à dire décalé d’environ 500kHz à 1MHz de la fréquence pompe, selon les paramètres de pompage. On vérifie de plus que pour $\Delta_F < 0$, la

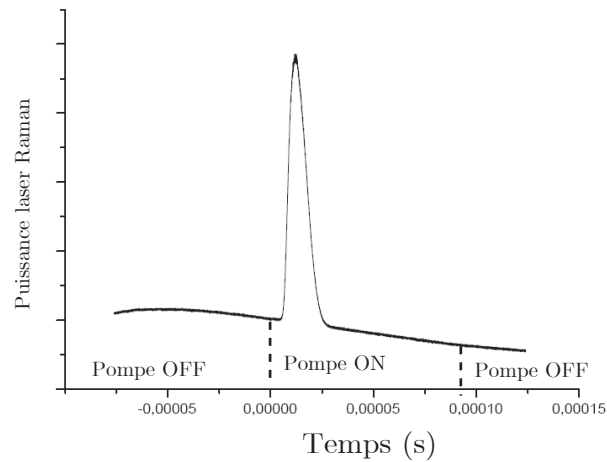


FIG. 4.21 – Trace temporelle du laser Raman, mesuré en sortie de la cavité.

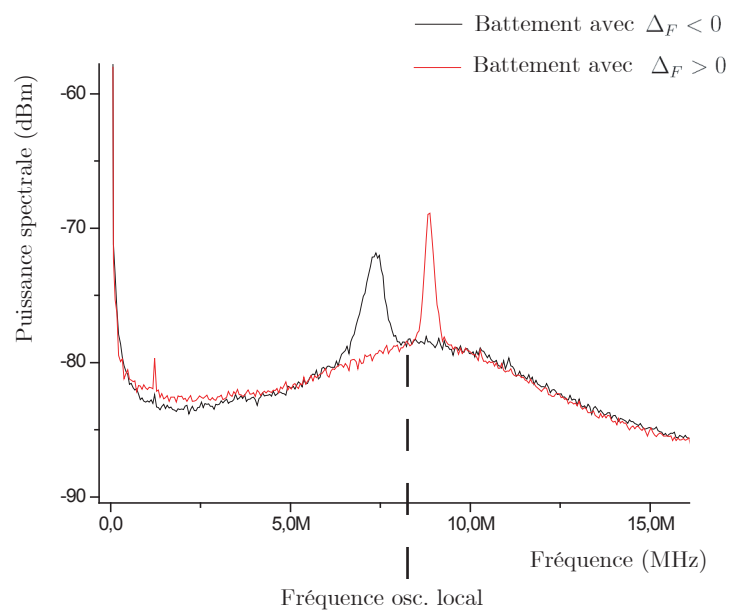


FIG. 4.22 – Spectre de battement du laser Raman. La position du gain Raman change de fréquence lorsque la pompe est désaccordée dans le rouge ou dans le bleu, l'effet est le même sur le laser.

fréquence du laser $\omega_L < \omega_F$, et pour $\Delta_F > 0$, la fréquence du laser $\omega_L > \omega_F$, donc possède le même comportement que le gain Raman.

4.3.3.3 Laser à mélange à quatre ondes

Dans cette partie, nous étudions le laser dont le gain est basé sur un processus de mélange à quatre ondes [115]. Le milieu non linéaire est pompé par deux faisceaux contrapropageants, et crée une modulation spatiale de l'indice du milieu, ou un réseau d'orientation ou d'alignement selon la polarisation respective des faisceaux. Le faisceau sonde est diffracté sur ces réseaux et un faisceau conjugué est créé, qui se propage dans la direction opposé à la sonde. On définit ainsi R_c qui est la valeur du coefficient de réflexion de la sonde sur le nuage d'atomes.

Dans l'expérience, le nuage d'atomes est éclairé par les faisceaux pompes F et B rétroalignés, et c'est le faisceau laser intra-cavité qui joue le rôle de faisceau sonde. Dans ces conditions, le faisceau conjugué se propage également dans l'axe de la cavité, et participe à la construction du faisceau laser. De plus, grâce aux propriétés de la conjugaison de phase, le faisceau conjugué possède un mode naturellement ajusté aux modes de la cavité.

Le mélange à quatre ondes est un mécanisme pouvant fonctionner dans plusieurs configurations de polarisation, et la description microscopique dans le cas de l'atome de Rubidium est assez complexe. Ici la cavité sélectionne la configuration possédant le plus de gain. On observe une émission laser pour des désaccords pompes $|\Delta_{F,B}| > 4\Gamma$ (dans le cas $|\Delta_{F,B}| < 4\Gamma$ le gain Mollow l'emporte sur le mélange à quatre ondes).

Lorsque la pompe est désaccordée dans le rouge de la résonance atomique ($\Delta_{F,B} < 0$), la polarisation du faisceau laser est perpendiculaire à celle des pompes, alors que lorsque la pompe est désaccordée dans le bleu ($\Delta_{F,B} > 0$), le faisceau laser a une polarisation parallèle à celle des pompes. Ce changement de polarisation rouge/bleu du laser est inédit jusqu'à présent. Cela illustre le mécanisme complexe du mélange à quatre ondes, dû à la structure interne de l'atome de rubidium. Nous avons vu en effet qu'il y avait plusieurs schémas atomiques pouvant expliquer le phénomène : ici on constate donc que le système sélectionne de lui même le mécanisme produisant un coefficient de réflexion le plus grand.

Profils d'intensités des modes transverses

Le faisceau laser émis est particulièrement intense ($\sim 300\mu W$), on a donc un optimum de conversion d'énergie de 0.75%).

Le mélange à quatre ondes est bien connu afin de réaliser des miroirs à conjugaison de phase. En exploitant la propriété du faisceau conjugué, qui possède la même phase par retournement temporel que le faisceau incident, on peut produire un miroir dit "parfait", ne modifiant pas le front d'onde à la réflexion. Ici, on comprend que cet effet va permettre à *TOUS* les modes de cavité, même les plus étranges, de franchir le seuil laser. Cela explique aussi pourquoi ce laser est beaucoup plus intense que les deux précédents. Le profil du mode transverse



FIG. 4.23 – Quelques exemples des modes transverses capturés sur caméra CCD. Ils peuvent être très différents l'un de l'autre, la différence étant probablement due à une mauvaise stabilité mécanique de l'ensemble du système (cavité et stabilité de l'alignement de faisceaux pompes non asservis). Les modes aux allures de pétales de fleur viennent d'une superposition deux modes de Laguerre-Gauss, et sont typiquement dus à la présence d'un mécanisme à conjugaison de phase [122, 123].

est sans doute dû à de multiples interférences entre les modes de cavité (Figure 4.23), car il est ici difficile de les comparer à des modes de Laguerre-Gauss ou Hermite-Gauss (image centrale de la figure 4.23)

Seuil Laser

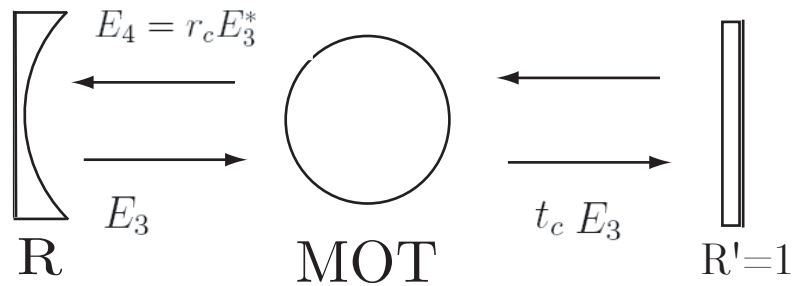


FIG. 4.24 – Amplitude des champs se propageant dans la cavité par transmission et par réflexion sur le MOT.

Comme dans les deux parties précédentes, on s'intéresse à l'étude de la dynamique du seuil laser en fonction de la puissance pompe, et du nombre d'atomes piégés.

Le critère permettant d'estimer le seuil laser est ici différent, car basé sur un effet d'interférence entre l'onde réfléchie et l'onde transmise dans le nuage

d'atomes. On a cette fois ci, non pas un critère sur le gain g par simple passage, mais un critère sur R_c , le coefficient de réflexion mélange à quatre ondes en intensité.

On démontre ce critère en considérant le schéma de la figure (4.24), où on peut écrire l'amplitude des champs intra cavité E_3 et E_4 suivant la relation [124] :

$$E_4 = r_c E_3^* \frac{1 + R(T_c - R_c)}{1 - RR_c} + E_3 \frac{\sqrt{R}T_c \exp(i\phi)}{1 - RR_c} \quad (4.18)$$

où $T_c = |t_c|^2$ est le coefficient de transmission en intensité dans le nuage, et $R_c = |r_c|^2$, le coefficient de réflexion en intensité sur le nuage. ϕ est le terme de déphasage à la propagation, et on ne considère par la suite que les termes de (4.18), en phase ($\phi = 0$), et on peut écrire :

$$\frac{I_4}{I_3} = \left| \frac{(T_c - R_c)\sqrt{R} + \sqrt{R_c}}{1 - \sqrt{RR_c}} \right|^2 \quad (4.19)$$

On se place maintenant dans le cas d'une oscillation libre dans la cavité, en supprimant le faisceau E_3 . D'après (4.19), et en considérant que $T_c - R_c \simeq 1$, on montre que la condition d'oscillation s'écrit [124] :

$$\frac{\sqrt{R} + \sqrt{R_c}}{1 - \sqrt{RR_c}} > 1 \quad (4.20)$$

La critère (4.20), se réécrit avec les paramètres de notre cavité :

$$R_c > \left(\frac{1 - \sqrt{P_{AR}}}{1 + \sqrt{P_{AR}}} \right)^2 \quad (4.21)$$

où $P_{AR} = (1 - \mathcal{L}) = 0.68$, \mathcal{L} est la valeur des pertes sur un aller retour dans la cavité (voir partie 4.3.1, caractérisation optique).

On obtient donc la condition $R_c > 0.9\%$. Ainsi moins de 1 % de réflexion suffit au système pour laser, ce qui est très facile à obtenir expérimentalement. De plus cette prédiction concorde tout à fait au seuil laser expérimental observé (Fig. 4.25). L'évolution de l'intensité laser en fonction du nombre d'atomes piégés est donnée par la figure (4.26), et présente aussi un comportement de seuil. Comme dans le cas du laser Mollow, nous faisons varier le nombre d'atomes en coupant progressivement l'intensité du laser repompeur, et nous mesurons la fluorescence du nuage, qui est dans le cas des faibles épaisseurs optiques, est proportionnelle au nombre d'atomes dans le piège.

Aspect fréquentiel et temporel

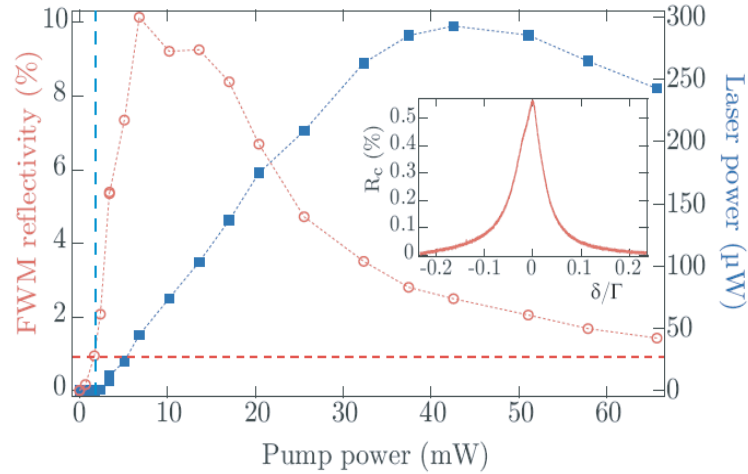


FIG. 4.25 – Courbe de seuil laser FWM en fonction de la puissance pompe (courbe bleue). Intensité FWM mesurée (Courbe rouge). En insert, un exemple de spectre de FWM : les fréquences qui franchissent le seuil laser sont celles dont le coefficient de réflexion excède 1%. ($(\Delta_{F,B} = -8\Gamma, b_0 = 10)$).

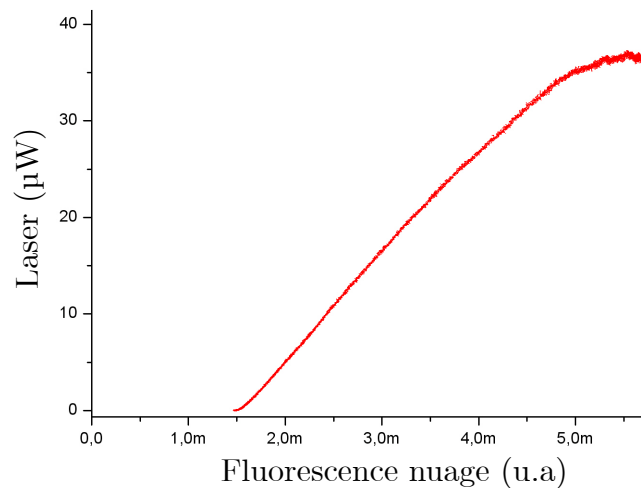


FIG. 4.26 – Intensité laser FWM, en fonction du nombre d'atomes piégés (par mesure de la fluorescence du nuage).+

Le laser émis possède la même fréquence que les pompes, ce qui est confirmé par l'expérience de battement (Fig. 4.27). Le spectre fin (< 1 MHz), est compatible avec les données expérimentales du mélange à quatre ondes non dégénéré, présentant une largeur spectrale similaire (insert de la Fig. 4.25).

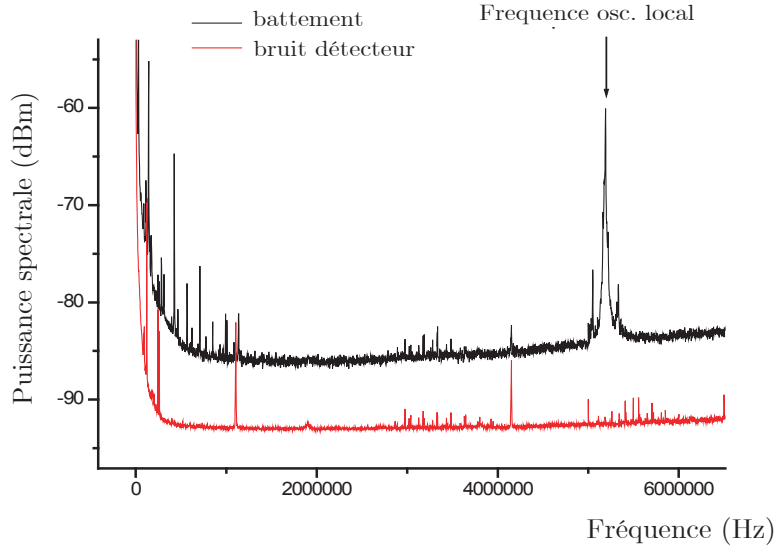


FIG. 4.27 – Spectre de battement du laser FWM. Les pics autour du battement laser, sont des bruits des lasers pompes et repompeur : modulation à 30 kHz, que nous pouvons faire disparaître en suspendant l’asservissement du laser repompeur.

Les ondes pompes F et B équilibrent la pression de radiation exercée sur le nuage, et les effets mécaniques des pompes deviennent négligeables. Cela nous permet de maintenir le laser pendant un temps long, pouvant atteindre plus d’une milliseconde.

La possibilité de maintenir le laser pendant un temps long, nous permet de présenter quelques particularités de la dynamique temporelle. Le laser démarre avec une constante de temps assez longue (environ $200\mu s$), à laquelle il faut ajouter un délai, qui est d’autant plus long que l’on s’approche du seuil laser. Cette constante de temps se retrouve lorsque l’on regarde la dynamique temporelle du mélange à quatre ondes dégénéré (Fig. 4.28). Nous n’avons pas encore d’explication significative sur l’origine de cette constante de temps : des mesures montrent toutefois que selon la densité du piège, la constante de temps varie (piège dense, constante de temps plus longue).

4.3.3.4 Régimes intermédiaires

Le passage entre les différents régimes laser étudiés ci-dessus se fait de manière continue. Ainsi, il existe des zones où deux types de laser peuvent cohabiter.

Notamment on peut reporter ici, un régime où l’on suppose que sont présents le gain Raman et le mélange à quatre ondes non dégénéré (Fig. 4.29). En effet, la

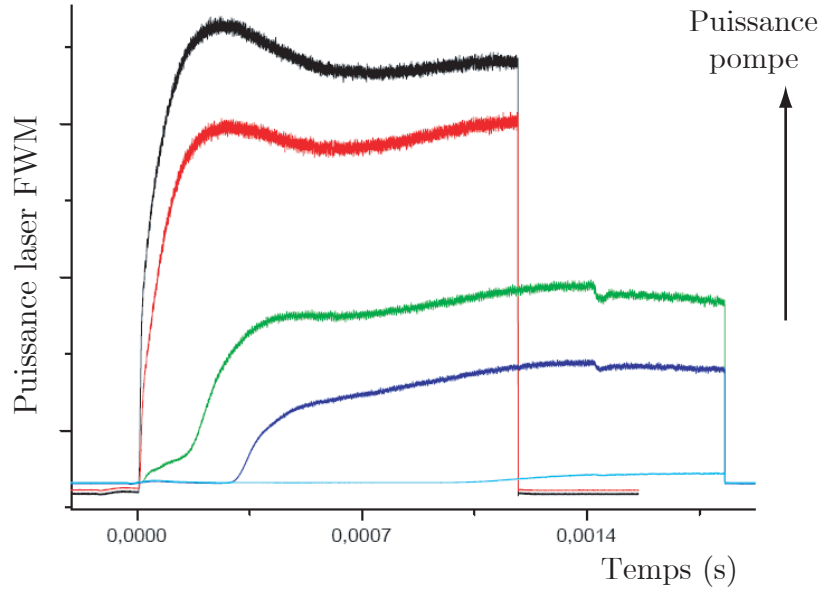


FIG. 4.28 – Profil temporel du laser mélange à quatre ondes pour différentes valeurs de la puissance des pompes. Les courbes présentant un grand délai à l’allumage sont prises proches des seuils (à pompes faibles). En augmentant l’intensité pompe, le délai disparaît, mais la constante de temps est toujours présente.

caractérisation par battement montre une structure qui ne correspond à aucun régime Raman, Mollow ou FWM.

On place le cube polariseur dans la cavité, de telle manière à forcer le laser à rester en polarisation perpendiculaire aux pompes (ne pas avoir de laser Mollow). On peut donc étudier la transition laser FWM-laser Raman.

Dans le spectre de battement (Fig. 4.29), on observe plusieurs paires de pics. Les pics extérieurs semblent être dûs au pic Raman, dont le symétrique est fabriqué par le mélange à quatre ondes. Les pics fins au centre sont pour le moment d’origine inconnue, mais vraisemblablement le mélange à quatre ondes y joue un rôle. Une étude plus détaillée pourra par la suite être intéressante, notamment la transition entre les modes de Laguerre-Gauss et Hermite-Gauss [125].

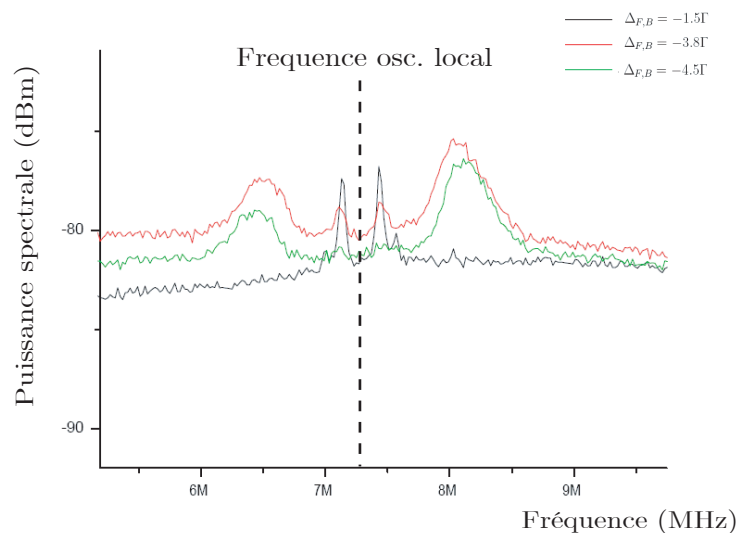


FIG. 4.29 – Spectre de battement dans le régime intermédiaire Raman/ FWM.

4.3.4 Publication : “Mechanisms for Lasing with Cold Atoms as the Gain Medium”

Mechanisms for Lasing with Cold Atoms as the Gain Medium

William Guerin, Franck Michaud, and Robin Kaiser*

Institut Non Linéaire de Nice, CNRS and Université de Nice Sophia-Antipolis, 1361 route des Lucioles, 06560 Valbonne, France
(Received 31 March 2008; published 29 August 2008)

We realize a laser with a cloud of cold rubidium atoms as gain medium, placed in a low-finesse cavity. Three different regimes of laser emission are observed corresponding, respectively, to Mollow, Raman, and four-wave mixing mechanisms. We measure an output power of up to 300 μW and present the main properties of these different lasers in each regime.

DOI: [10.1103/PhysRevLett.101.093002](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.101.093002)

PACS numbers: 42.55.Zz, 33.20.Fb, 37.30.+i, 42.55.Ye

Since Letokhov's seminal paper [1], random lasers have received increasing interest. Random lasing occurs when the optical feedback due to multiple scattering in the gain medium itself is sufficiently strong to reach the lasing threshold. In the past decade, it has been observed in a variety of systems (see [2] for a review), but many open questions remain to be investigated, for which better characterized samples would be highly valuable. A cloud of cold atoms could provide a promising alternative medium to study random lasing, allowing for a detailed understanding of the microscopic phenomena and a precise control of essential parameters such as particle density and scattering cross section. These properties have been exploited to study coherent backscattering of light [3] and radiation trapping [4] in large clouds of cold atoms. As many different gain mechanisms have been observed with cold atoms, combining multiple scattering and gain in cold atomic clouds seems a promising path towards the realization of a new random laser. Besides the realization of a random laser, cold atoms might allow one to study additional features, such as the transition from superfluorescence [5] to amplified spontaneous emission [6] in a multiple scattering regime. One preliminary step along this research line is to use a standard cavity to trigger laser oscillation with cold atoms as gain medium. Such a laser may also be an interesting tool for quantum optics, as one can take advantage of the nonlinear response of the atoms to explore nonclassical correlations or obtain squeezing [7].

In this Letter, we present the realization of a cold-atom laser, that can rely on three different gain mechanisms, depending on the pumping scheme. By pumping near resonance, Mollow gain [8,9] is the dominant process and gives rise to a laser oscillation, whose spectrum is large (of the order of the atomic natural linewidth), whereas by pumping further from resonance, Raman gain between Zeeman sublevels [10] gives rise to a weaker, spectrally sharper laser [11]. At last, by using two counter-propagating pump beams, degenerate four-wave mixing (FWM) [12,13] produces a laser with a power up to 300 μW . By adjusting the atom-laser detuning or the pump geometry, we can continuously tune the laser from one regime to another.

Our experiment uses a cloud of cold ^{85}Rb atoms confined in a vapor-loaded magneto-optical trap (MOT) produced by six large independent trapping beams, allowing the trapping of up to 10^{10} atoms at a density of 10^{10} atoms/cm³, corresponding to an on-resonance optical thickness of about 10. A linear cavity, formed by two mirrors (a coupling mirror with curvature $RC1 = 1$ m, reflection coefficient $R1 = 0.95$, and plane end mirror with reflection coefficient $R2 \approx 0.995$) separated by a distance $L = 0.8$ m is placed outside the vacuum chamber, yielding a large round trip loss $\mathcal{L} = 32\%$ with a correspondingly low finesse $\mathcal{F} = 16$. The waist of the fundamental mode of the cavity at the MOT location is $w_{\text{cav}} \approx 500$ μm . To add gain to our system, we use either one or two counterpropagating pump beams, denoted F (forward) and B (backward), produced from the same laser with a waist $w_{\text{pump}} = 2.6$ mm, with linear parallel polarizations and a total available power of $P = 80$ mW, corresponding to a maximum pump intensity of $I = 2P/(\pi w_{\text{pump}}^2) \approx 750$ mW/cm². The pump is tuned near the $F = 3 \rightarrow F' = 4$ cycling transition of the $D2$ line of ^{85}Rb (frequency ω_A , wavelength $\lambda = 780$ nm, natural linewidth $\Gamma/2\pi = 5.9$ MHz), with an adjustable detuning $\Delta = \omega_{F,B} - \omega_A$ and has an incident angle of $\approx 20^\circ$ with the cavity axis. An additional beam P is used as a local oscillator to monitor the spectrum of the laser or as a weak probe to measure single-pass gain (insets of Figs. 2–4) with a propagation axis making an angle with the cavity axis smaller than 10° . Its frequency ω_P can be swept around the pump frequency with a detuning $\delta = \omega_P - \omega_{F,B}$. Both lasers, pump and probe, are obtained by injection-locking of a common master laser, which allows one to resolve narrow spectral features. In our experiments, we load a MOT for 29 ms, and then switch off the trapping beams and magnetic field gradient during 1 ms, when lasing or pump-probe spectroscopy are performed. In order to avoid optical pumping into the dark hyperfine $F = 2$ ground state, a repumping laser is kept on all the time. Data acquisitions are the result of an average of typically 1000 cycles.

As in a conventional laser, lasing occurs if gain exceeds losses in the cavity, which can be observed as strong directional light emission from the cavity. As we will

TABLE I. Different regimes of cold-atom laser versus pump detuning. The polarization of the lasers are either parallel (\parallel) or orthogonal (\perp) to the polarization of the pump beams.

Pump beam(s)	$\Delta < -4\Gamma$	$-4\Gamma < \Delta < +4\Gamma$	$\Delta > +4\Gamma$
F	Raman (\perp)	Mollow (\parallel)	Raman (\perp)
$F + B$	FWM (\perp)	Mollow (\parallel)	FWM (\parallel)

discuss in detail below, we are able to produce lasing with cold atoms as gain medium using three different gain mechanisms: Mollow gain, Raman gain, and four-wave mixing. We can control the different mechanisms by the pump geometry and the pump detuning Δ (see Table I). Mollow and Raman gain mechanisms only require a single pump beam (F), whereas FWM only occurs when both pump beams F and B are present and carefully aligned. With a single pump beam, we find Mollow gain to be dominating close to the atomic resonance, whereas Raman gain is more important for detunings larger than $|\Delta| \approx 4\Gamma$. Furthermore, the different gain mechanisms lead to distinct polarizations. Mollow gain generates a lasing mode with a polarization parallel to the pump polarization because the Mollow amplification is maximum for a field aligned with the driven atomic dipole [8]. On the contrary, different polarizations between the pumping and the amplified waves are necessary to induce a Raman transition between two Zeeman substates: the polarization of the Raman laser is thus orthogonal to the pump polarization. Lastly, the FWM laser has a more complex polarization behavior, as it is orthogonal for red-detuned and parallel for blue-detuned pumps. We have checked that for any pump detuning or probe power, the weak-probe FWM reflectivity is stronger for orthogonal probe polarization, as expected from previous experiments and models [14]. We speculate that pump-induced mechanical effects [15] or more complex collective coupling between the atoms and the cavity [16] might be the origin of this polarization behavior.

In Fig. 1 we show spatial (transverse) patterns of these lasers, observed by imaging the beam onto a CCD camera. Without any spatial filtering in the cavity, the different lasers (Mollow, Raman, and FWM) yield distinct transverse patterns. In Fig. 1(b) [Fig. 1(c)] we show the transverse pattern obtained with a Mollow (Raman) laser. We note that the Mollow laser typically produces transverse

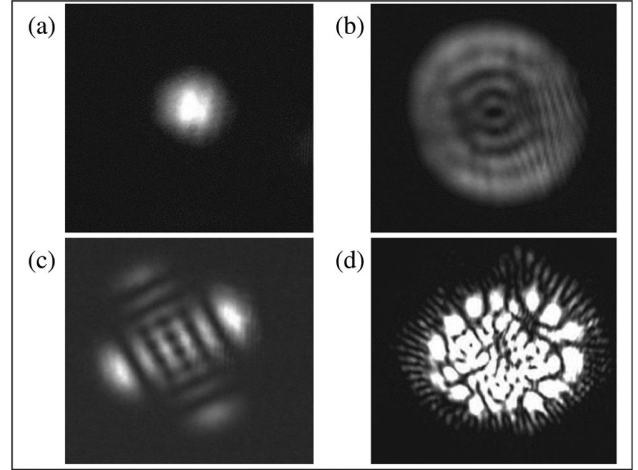


FIG. 1. Transverse modes of cold-atom lasers. (a) Gaussian TEM_{00} mode, obtained by inserting a small diaphragm in the cavity. Typical modes of (b) the Mollow laser, (c) the Raman laser, and (d) the four-wave mixing laser.

patterns with radial symmetries well described by Laguerre-Gauss modes, whereas the modes of the Raman laser are rather Hermite-Gauss modes. The origin of such radial or Cartesian symmetry may arise from the different polarization of those two lasers: the radial symmetry is preserved for the Mollow laser polarization and is broken for the Raman laser one, probably due to slightly different losses in the cavity. Figure 1(d) shows the transverse pattern of the FWM laser. As phase conjugation mechanisms are at work in such a laser, any transverse mode can easily cross the lasing threshold and complex lasing patterns are produced [17].

We now turn to a more detailed description of the gain mechanisms of the different lasers. The quantitative understanding of their behavior needs to take into account effects such as pump geometry and parameters (intensity, detuning), gain spectra, gain saturation, and mechanical effects induced by the pump beam(s).

Let us first discuss the Mollow laser. Amplification of a weak probe beam can happen when a two-level atom is excited by one strong pump beam [8,9]. The corresponding single-pass gain is $g_M = \exp[-b_0 f_M(\Omega, \Delta, \delta)]$, where b_0 is the on-resonance optical thickness (without pump) of the cold-atom cloud. The expression of $f_M(\Omega, \Delta, \delta)$ can be obtained from optical Bloch equations [8]:

$$f_M(\Omega, \Delta, \delta) = \frac{\Gamma}{2} \frac{|z|^2}{|z|^2 + \Omega^2/2} \operatorname{Re} \left[\frac{(\Gamma + i\delta)(z + i\delta) - i\Omega^2 \delta / (2z)}{(\Gamma + i\delta)(z + i\delta)(z^* + i\delta) + \Omega^2(\Gamma/2 + i\delta)} \right], \quad (1)$$

where $z = \Gamma/2 - i\Delta$ and Ω is the Rabi frequency of the atom-pump coupling, related to the pump intensity I by $\Omega^2 = \mathcal{C}^2 \Gamma^2 I / (2I_{\text{sat}})$ ($I_{\text{sat}} = 1.6 \text{ mW/cm}^2$ is the saturation intensity and \mathcal{C} is the averaged Clebsch-Gordan coefficient of the $F = 3 \rightarrow F' = 4$ transition for a linear polarization).

In our setup we observe single-pass gain higher than 50%, with a large gain curve (width $> \Gamma$). The shape of the transmission spectrum (inset of Fig. 2) is consistent with Eq. (1). From Eq. (1) we can also predict the maximum gain in respect to the pump parameters Ω, Δ . We observe

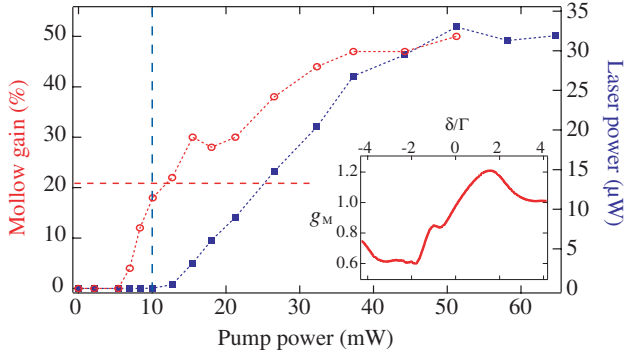


FIG. 2 (color online). Laser power (squares) and Mollow gain (open circles) versus pump power, with $b_0 = 11$ and $\Delta = +\Gamma$. Lasing threshold (vertical dashed line) is expected to appear with a gain of about 21% (horizontal dashed line), in good agreement with the experimental data. Inset: Typical weak-probe transmission spectrum.

good agreement between the behavior of the laser power and the function f_M when varying Δ : the maximum gain and laser power are achieved for $|\Delta| \sim 2\Gamma$ (the exact value depends on Ω) and $\Delta = 0$ is a local minimum. However, we measured a lower maximum gain than predicted by Eq. (1). This is due to gain-saturation induced by rescattering of spontaneous emission inside the atomic cloud [18].

As shown in Fig. 2 (squares), we observe a Mollow laser emission with an output intensity reaching $35 \mu\text{W}$. Taking into account the round trip losses \mathcal{L} , the condition for laser oscillation is $g_M^2(1 - \mathcal{L}) > 1$. This corresponds to a gain at threshold of $g_M = 1.21$ (horizontal line in Fig. 2), in good agreement with the observation.

When the pump frequency is detuned farther away from the atomic resonance, Raman gain becomes dominant. Raman gain relies on the pump-induced population inversion among the different light-shifted m_F Zeeman sublevels of the $F = 3$ hyperfine level [10,19]. Single-pass Raman gain of a weak probe can be written $g_R = e^{-b_0 f_R(\Omega, \Delta, \delta)}$. For $|\Delta| \gg \Gamma$, $f_R(\Omega, \Delta, \delta)$ is given by

$$f_R = -\frac{\Omega^2}{\Delta^2} \left(\frac{A_1}{(\delta + \delta_R)^2 + \gamma^2/4} - \frac{A_2}{(\delta - \delta_R)^2 + \gamma^2/4} \right), \quad (2)$$

where $A_{1,2}$ are the respective weights of the amplification and absorption, δ_R is the frequency difference between the Zeeman sublevels, and γ is the width of the Raman resonance [19]. We have observed the laser spectrum with a beat-note experiment, and we have checked that its frequency corresponds to the maximum gain and is related to the differential pump-induced light shift δ_R of the different Zeeman sublevels. The width of the Raman resonance γ is related to the elastic scattering rate of the pump photons and is much lower than Γ , due to the strong detuning Δ . The result is thus a much narrower gain spectrum than in the previous case (inset of Fig. 3). This leads to an im-

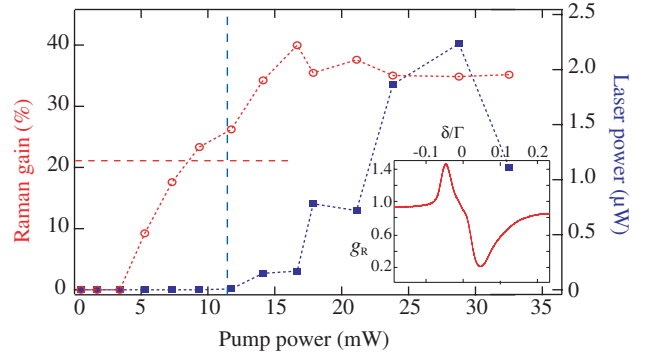


FIG. 3 (color online). Laser power (squares) and Raman gain (open circles) versus pump power, with $b_0 = 10$ and $\Delta = -7\Gamma$. Lasing threshold (vertical dashed line) is expected to appear with a gain of about 21% (horizontal dashed line), in good agreement with the experimental data. Inset: Typical weak-probe transmission spectrum.

portant practical limitation of the single-pumped Raman laser: atoms are pushed by the pump beam, acquiring a velocity v , and the subsequent Doppler shift becomes quickly larger than the width of the gain spectrum. As a consequence, the gain in the cold-atom cloud is no longer the same for a wave copropagating with the pump beam (F) and the wave running in the counterpropagating direction. For the copropagating direction, the relative Doppler shift is negligible, whereas for the counterpropagating wave, a Doppler shift of $\sim 2\omega_A v/c$, larger than the width of the gain spectrum, leads to a suppression of the corresponding gain. As a consequence, emission of our Raman laser stops after $\approx 20 \mu\text{s}$ [20].

In Fig. 3 we plot the output power of the Raman laser as a function of pump power. A comparison with the single-pass gain g_R is again in good agreement for the threshold condition $g_R^2(1 - \mathcal{L}) > 1$: for Raman gain above 21% laser emission occurs. As shown in Fig. 3 (squares), the output power of the Raman laser emission ($\approx 2 \mu\text{W}$) is much lower than the Mollow laser one. This lower output power might arise from a lower saturation intensity for Raman gain [21]. Nevertheless, with a weak signal, the Raman gain can be as high as $g_R = 2$ [21].

We have observed another lasing mechanism when a balanced pumping scheme using two counterpropagating pump beams F and B is used. In this configuration FWM appears [12,13]. The creation of photons in a reflected wave, resulting from a phase conjugation process, can also be considered as a gain mechanism. This is reminiscent of optical parametric oscillation where signal and idler photons are created under a phase matching condition. In the inset of Fig. 4 we show the FWM signal R_c (expressed as the reflection normalized to the incident probe power) illustrating the narrow spectrum of this phase conjugation signal. As expected, the maximum gain corresponds to the degenerate case $\delta = 0$ [14]. Thanks to constructive interference between transmitted and reflected waves, this

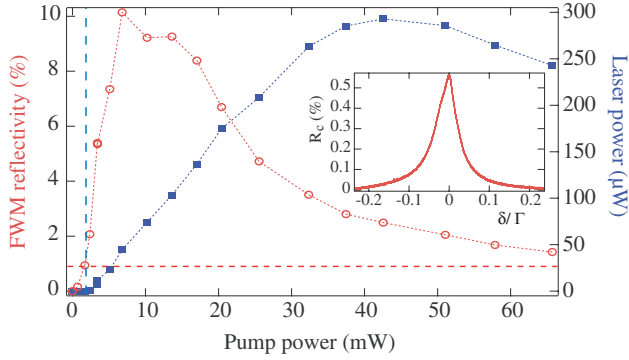


FIG. 4 (color online). Laser power (squares) and phase-conjugate reflectivity due to four-wave mixing (open circles) versus pump power, with $b_0 = 10$ and $\Delta = -8\Gamma$. Lasing threshold (vertical dashed line) is expected for a reflectivity around 1% (horizontal dashed line), in good agreement with the experimental data. Inset: Example of a weak-probe reflectivity spectrum.

mechanism produces huge double-pass gain with cold atoms [21] and it is thus an efficient mechanism to trigger laser oscillations [22]. Because of these interference effects, the threshold for laser oscillation is very different from the previous cases [21,22], and is given by

$$R_c > [(1 - \sqrt{\tilde{R}})/(1 + \sqrt{\tilde{R}})]^2 = 0.9\%, \quad (3)$$

where $\tilde{R} = 1 - \mathcal{L}$. This criterion (horizontal line in Fig. 4) is well respected for the threshold of our laser. The output power of this laser is quite strong (300 μW), with an energy conversion efficiency of 0.75% in this case. As two pump beams are used in this situation, the mechanical effects based on radiation pressure will be negligible and lasing can be sustained for a long time. However, dipole forces can induce atomic bunching and change the effective pump intensity interacting with the atoms [15].

In conclusion, we presented in this Letter three types of laser using a sample of cold atoms as gain medium. Three different gain mechanisms were demonstrated as being efficient enough to allow lasing, even with a low-finesse cavity. Comparison between Mollow and Raman laser shows that the latter has a significantly lower power, although their gain are of the same order of magnitude. These two mechanisms can produce high gain at frequencies slightly detuned from the pump, allowing one to distinguish between stimulated photons from the laser mode and scattered photons from the pump beam. Thus, they seem to be good candidates for the search of random lasing in cold atoms, and the combination of these gains with multiple scattering will be the subject of further investigations. In addition, the ability to continuously tune from a Mollow to a Raman laser (by changing the pump detuning) may allow one to study the transformation of transverse patterns from Laguerre-Gauss to Hermite-

Gauss modes [23]. The FWM laser is the most efficient in terms of power, and it should be possible to study its noise spectrum down to the shot noise level. This laser has many analogies to an optical parametric oscillator and seems to be a good candidate to explore nonclassical features of light, such as the production of twin beams [24,25]. Lastly, the coupling between the cavity mode and the atomic internal and external degrees of freedom may also reveal interesting dynamics, especially if a high-finesse cavity is used [16,26,27].

The authors thank G.-L. Gattobigio for his help at the early stages of the experiment. This work is supported by INTERCAN, DGA, and ANR-06-BLAN-0096.

*Robin.Kaiser@inln.cnrs.fr

- [1] V. S. Letokhov, Sov. Phys. JETP **26**, 835 (1968).
- [2] D. S. Wiersma, Nature Phys. **4**, 359 (2008).
- [3] G. Labeyrie *et al.*, Phys. Rev. Lett. **83**, 5266 (1999).
- [4] G. Labeyrie *et al.*, Phys. Rev. Lett. **91**, 223904 (2003).
- [5] T. Wang *et al.*, Phys. Rev. A **75**, 033802 (2007); J. O. Day, E. Brekke, and T. G. Walker, Phys. Rev. A **77**, 052712 (2008).
- [6] M. S. Malcuit *et al.*, Phys. Rev. Lett. **59**, 1189 (1987).
- [7] R. E. Slusher *et al.*, Phys. Rev. Lett. **55**, 2409 (1985).
- [8] B. R. Mollow, Phys. Rev. A **5**, 2217 (1972).
- [9] F. Y. Wu *et al.*, Phys. Rev. Lett. **38**, 1077 (1977).
- [10] D. Grison *et al.*, Europhys. Lett. **15**, 149 (1991); J. W. R. Tabosa *et al.*, Phys. Rev. Lett. **66**, 3245 (1991).
- [11] L. Hilico, C. Fabre, and E. Giacobino, Europhys. Lett. **18**, 685 (1992).
- [12] A. Yariv and D. M. Pepper, Opt. Lett. **1**, 16 (1977).
- [13] R. L. Abrams and R. C. Lind, Opt. Lett. **2**, 94 (1978); **3**, 205 (1978).
- [14] A. Lezama, G. C. Cardoso, and J. W. R. Tabosa, Phys. Rev. A **63**, 013805 (2000).
- [15] G.-L. Gattobigio *et al.*, Phys. Rev. A **74**, 043407 (2006).
- [16] D. Nagy *et al.*, Europhys. Lett. **74**, 254 (2006).
- [17] R. C. Lind and D. G. Steel, Opt. Lett. **6**, 554 (1981).
- [18] L. Khaykovich, N. Friedman, and N. Davidson, Eur. Phys. J. D **7**, 467 (1999).
- [19] T. M. Brzozowski *et al.*, Phys. Rev. A **71**, 013401 (2005).
- [20] At time scale larger than 100 μs , the single-pumped Mollow laser suffers also from mechanical effects of the pump.
- [21] F. Michaud *et al.*, J. Opt. Soc. Am. B **24**, A40 (2007).
- [22] M. Pinard, D. Grandclement, and G. Grynberg, Europhys. Lett. **2**, 755 (1986).
- [23] E. G. Abramochkin and V. G. Volostnikov, J. Opt. A Pure Appl. Opt. **6**, S157 (2004).
- [24] M. Vallet, M. Pinard, and G. Grynberg, Europhys. Lett. **11**, 739 (1990).
- [25] C. F. McCormick *et al.*, Opt. Lett. **32**, 178 (2007).
- [26] D. Kruse *et al.*, Phys. Rev. Lett. **91**, 183601 (2003).
- [27] R. Miller *et al.*, J. Phys. B **38**, S551 (2005).

4.4 Résumé et perspectives : vers un laser aléatoire

4.4.1 Résumé

Nous avons démontré dans cette partie, qu'un nuage d'atomes froids pouvait devenir un milieu amplificateur laser. Nous sommes parvenus en effet à produire une émission laser en pompant un nuage d'atomes froids placé dans une cavité.

Plusieurs preuves évidentes confirment bien, que le faisceau généré peut être qualifié de "laser"

- observation de modes de cavité
- comportement de seuil
- cohérence du faisceau
- bon accord théorie/expérience

Nous avons en effet au chapitre 3, identifié et étudié expérimentalement plusieurs mécanismes de gain. En pompant le nuage d'atomes sur la transition $F = 3 \rightarrow F' = 4$, nous pouvons amplifier un faisceau sonde peu saturant, par transmission à travers le nuage. Il s'agit du gain Mollow et Raman.

Le gain Mollow est caractérisé par des résonances de largeur de l'ordre de Γ , la largeur naturelle du niveau excité, et le gain maximum est proche de résonance atomique. Le gain Raman est produit par une transition à deux photons entre le niveau excité et la structure Zeeman du niveau fondamental : la largeur des résonances est inférieure à Γ , et le maximum du gain est très proche de la fréquence des pompes. Il faut désaccorder la pompe loin de résonance atomique pour observer un gain maximum.

Ces deux processus ne nécessitent pas d'accord de phase particulier entre les faisceaux pompe et sonde. Au contraire, le troisième mécanisme étudié est le mélange à quatre ondes, qui nécessite que le nuage soit pompé par deux pompes contrapropageantes. Dans ces conditions, on montre qu'un faisceau peut être créé par réflexion de la sonde sur le nuage. Ce quatrième faisceau peut être plus intense que la sonde, et conserve toutes les propriétés de phase de la sonde, par retournement temporel. Expérimentalement nous n'avons pas observé un coefficient de réflexion supérieur à l'unité, mais proche de l'unité.

Nous avons dans cette partie montré que chacun des trois gains énumérés ci-dessus produit un laser, avec chacun différentes caractéristiques :

- Laser Mollow : fréquence proche de résonance atomique ($\omega \sim [\omega_{at} - 3\Gamma, \omega_{at} + 3\Gamma]$), et spectre large ($\sim \Gamma$). Mode de cavité de Laguerre-Gauss. Intensité $\sim 35\mu\text{W}$.
- Laser Raman : fréquence éloignée de résonance atomique ($\omega \sim \omega_{at} \pm 4\Gamma$), et spectre fin ($\sim \Gamma/10$). Mode de cavité de Hermite-Gauss. Peu performant

en terme de puissance $\sim 2\mu\text{W}$, à cause de la sensibilité à l'effet mécanique de la pompe sur les atomes.

- Laser FWM (mélange à quatre ondes) : fréquence également éloignée de résonance atomique ($\lambda \sim \omega_{at} \pm 5\Gamma$), et spectre fin ($< \Gamma/10$). C'est le laser le plus performant en terme de puissance et de rendement : le seuil laser est atteint pour un coefficient de réflexion de seulement 1 %, et produit plus de 300 μW au maximum.

Diverses données sur le comportement temporel, ou dans les spectres des laser ne sont encore pas bien comprises. Notamment, une étude des propriétés statistiques de la lumière émise par le laser *FWM* pourrait être intéressante.

Néanmoins, la première étape consistant à produire un laser de manière classique avec le nuage d'atome froids a été fructueuse. Les mécanismes de gain sont donc bien maîtrisés, et dans le cadre du laser aléatoire, nous devons étudier maintenant la partie diffusion. Cette étude servira également à prédire un seuil théorique en fonction des divers paramètres, au delà duquel nous pourrions produire un laser aléatoire.

4.4.2 Vers un laser aléatoire

Plusieurs études sont actuellement en cours : nous étudions expérimentalement les propriétés de la lumière diffusée dans le cas du gain Raman, Mollow et mélange à quatre ondes, et nous essayons de produire un faisceau de mélange à quatre ondes à résonance atomique.

Mélange à quatre ondes à résonance atomique

Nous voulons utiliser le mélange à quatre ondes, qui est le processus de gain le plus efficace dans le laser avec cavité, pour produire un faisceau laser à résonance atomique (Fig. (4.30)), et ainsi combiner les effets de gain et diffusion multiple de la lumière. Pour cela, l'idée est de modifier quelque peu le montage, de telle sorte que les faisceaux pompes F et B aient respectivement des fréquences $\omega_{at} \pm \omega$. Nous avons vérifié théoriquement que dans ces conditions, avec un faisceau sonde à résonance atomique, ce processus était efficace [126].

Détection fluorescence sonde

Il est utile de rappeler qu'une des difficultés de notre montage, est que les atomes sont à la fois les diffuseurs et les porteurs de gain. Ainsi, gain et diffusion sont liés, ce qui introduit quelques difficultés fondamentales :

La détection de la lumière diffusée sur une sonde en présence de gain est difficile car elle est dominée par les pompes. Ce problème se retrouvera d'ailleurs dans la détection du signal laser aléatoire, noyé dans la fluorescence des pompes.

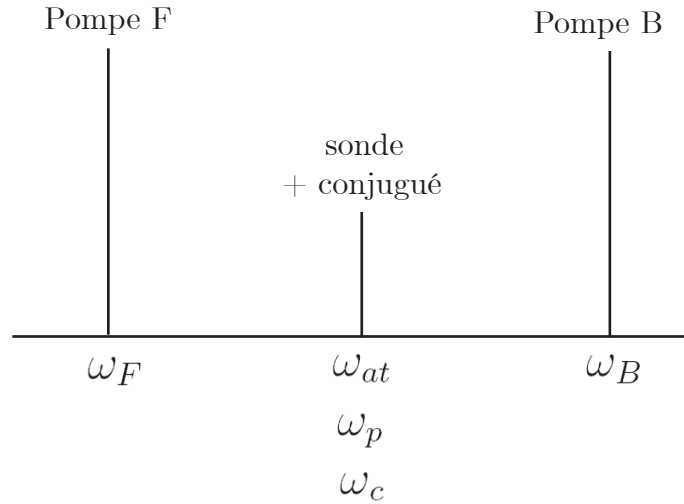


FIG. 4.30 – Configuration des fréquences des faisceaux pompes et sonde, afin de produire un signal de mélange à quatre ondes non dégénéré à résonance atomique.

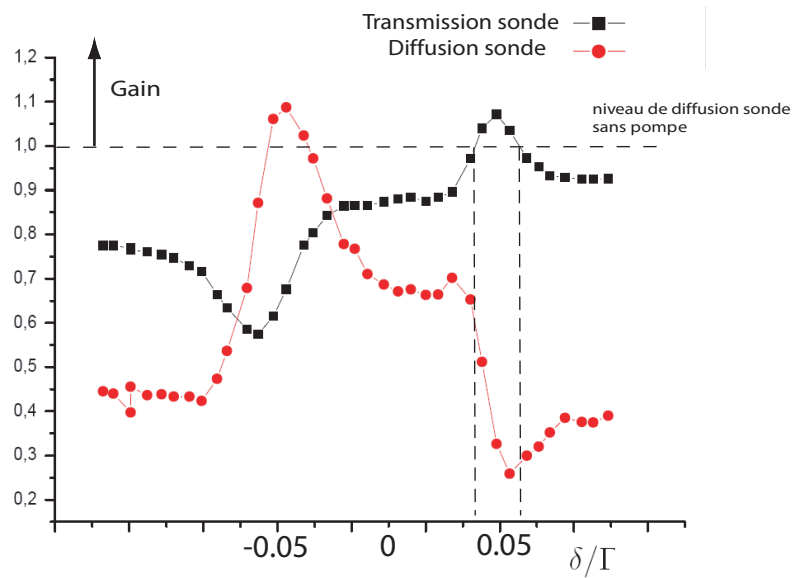


FIG. 4.31 – Spectre de transmission (normalisé par rapport à l'intensité sonde incidente) et de fluorescence (normalisé par rapport à la fluorescence de la sonde seule (sans les pompes)) d'un faisceau sonde, dans le régime de gain Raman.

Une première solution afin de distinguer la lumière sonde, de la lumière pompe, est de moduler l'intensité du laser sonde, puis extraire le signal par détection synchrone.

Expérimentalement, nous nous sommes placés en premier lieu dans le régime où l'on a du gain Raman en transmission sur la sonde (c'est le régime où le gain est le plus visible). La fréquence de la sonde est modulée à environ 50 kHz, et on détecte la lumière diffusée totale, puis on effectue une détection synchrone à la fréquence de modulation du signal de fluorescence. Un résultat préliminaire, présenté sur la figure (4.31), montre une petite zone combinant à la fois du gain et de la diffusion ne diminuant de dramatiquement. Les courbes expérimentales de diffusion et de transmission mesurées peuvent être reliées l'une à l'autre par les relations de Kramers-Kronig (voir Chap 3, équation (3.5)).

Il ne s'agit que de mesures préliminaires, et beaucoup de gammes de paramètres restent à explorer. D'autres méthodes de détection de la lumière diffusée vont être mise en oeuvre, comme l'utilisation d'un Fabry-Pérot, par battements avec un autre laser, ou par des mesures d'autocorrelation $g^{(2)}(\tau)$ de l'intensité.

Prédiction du seuil

La mesure indépendante de la lumière diffusée et du gain, nous permettra d'estimer les conditions d'observation du laser aléatoire incohérent avec le critère de Letokhov dans un premier temps. On rappelle que la condition de Letokhov donne la longueur critique d'un système à gain, pour que l'intensité de la lumière diffusée diverge :

$$L_{cr} = 2\pi\sqrt{\frac{l_t l_g}{3}} \quad (4.22)$$

où l_g est la longueur de gain et l_t le libre parcours moyen de transport (voir Chap. 1, partie 1.1.2.3). Dans notre cas le libre parcours moyen est modifié par la présence de gain, car ce sont les atomes qui à la fois, font le gain, et la diffusion.

Avec un modèle simple d'atome à deux niveaux (voir Chap 3, partie 3.3.1.2) on peut exprimer (facilement) l_g et l_t :

$$l_t = \frac{1}{n\sigma_{diff}} \quad (4.23)$$

σ_{diff} est la section efficace de diffusion, qui dans le cas d'un atome à deux niveaux, est proportionnelle au module carré de la polarisabilité diélectrique du milieu :

$$\sigma_{diff} = \frac{k^4}{6\pi} |\alpha_{at}|^2 \quad (4.24)$$

On définit la longueur de gain de la manière suivante :

$$l_g = \frac{1}{n(\sigma_{trans} - \sigma_{diff})} \quad (4.25)$$

où σ_{trans} la fonction de transmission :

$$\sigma_{trans} = k\mathfrak{I}m(\alpha_{at}) \quad (4.26)$$

Sachant que $b_0 = n\sigma_0 L = n\frac{3\lambda^2}{2\pi}L$, on peut écrire, le critère (4.22) de la manière suivante :

$$b_{0,cr} = \frac{2\pi}{\sqrt{(3|\alpha_{at}|^2(|\alpha_{at}|^2 - \Im(\alpha_{at})))}} \quad (4.27)$$

Ce critère est illustré par la figure (4.32), où on a représenté la valeur de l'épaisseur optique au seuil Letokhov, en fonction du désaccord et la puissance des faisceaux. On a ajouté la condition $b_0\sigma_{sc} > 1$, pour sélectionner les événements qui présentent plus qu'une diffusion.

Les résultats, pour le moment préliminaires, nous montrent qu'il faut avoir une épaisseur optique d'au moins 300 pour satisfaire le critère, pour des désaccords et puissance pompe classique (partie bleue foncée de la courbe). C'est une valeur assez difficilement atteignable (mais pas impossible suivant les techniques de compression) dans notre piège d'atomes, mais il reste encore d'autres pistes à explorer avec le gain Raman, et le mélange à quatre ondes. De plus, il ne s'agit d'un modèle préliminaire, dont le problème reste le domaine de validité du régime diffusif. Un traitement via les équations de transfert radiatif donnera des résultats plus rigoureux.

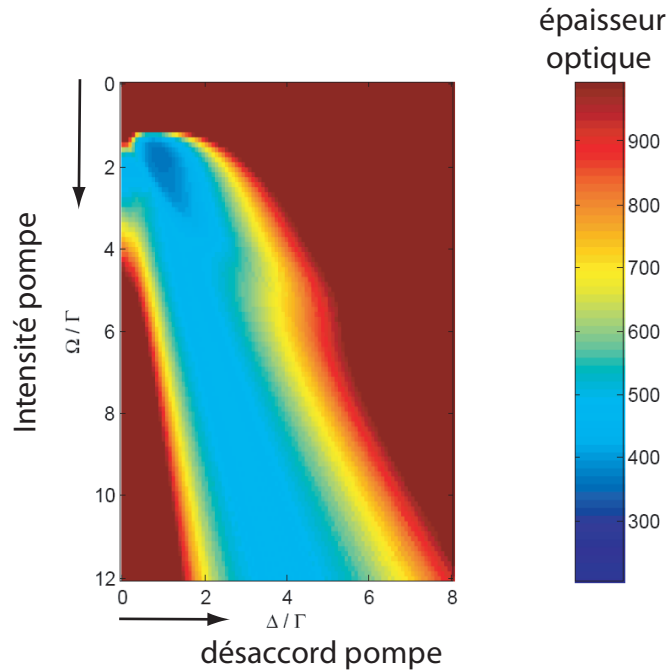


FIG. 4.32 – Épaisseur critique théorique du seuil du laser aléatoire, en fonction de l'intensité pompe, et du désaccord pompe. Seules les valeurs minimisant l'épaisseur optique nous intéressent.

Conclusion

Dans cette thèse nous avons étudié différents mécanismes de gain intervenant dans un nuage d'atomes froids de Rb^{85} piégés dans un piège magnéto-optique. Il s'agit de la première étape, essentielle, au projet de réalisation d'un laser aléatoire.

Nous avons utilisé le comportement non linéaire des atomes, lorsqu'ils sont soumis à une onde pompe de forte intensité, afin de produire du gain sur une sonde perturbative. La spectroscopie de l'atome de Rubidium étant riche, on peut trouver différents mécanismes de gain suivant les paramètres de pompage. Nous en avons étudié trois en particulier, expérimentalement et théoriquement : le gain Mollow, le gain Raman, et le mélange à quatre ondes.

Les deux premiers gain (Mollow et Raman) sont des gains en transmission à travers le nuage d'atomes. Le gain Mollow est dominant lorsque l'on pompe avec un faisceau proche de résonance atomique sur les niveaux $F = 3 \rightarrow F' = 4$. On obtient une courbe de gain qui s'étale typiquement sur une largeur de quelques Γ autour de la résonance atomique. Expérimentalement le gain mesuré est entre 20 et 50 %. Le gain Raman est plus efficace car nous avons mesuré des gains atteignant 300%, avec un faisceau pompe désaccordé loin de résonance atomique : le mécanisme est ici différent car il fait intervenir la structure Zeeman du niveau $F = 3$. Le gain est quasiment à la fréquence de la pompe, et les résonances Raman possèdent des structures très fines, de largeur $\ll \Gamma$.

Le mélange à quatre ondes se distingue des gains Mollow et Raman, car il s'agit d'un gain par réflexion sur le nuage d'atomes. On doit pomper le nuage avec deux faisceaux pompes contrapropageants, et un faisceau conjugué est créé par la réflexion du faisceau sonde sur le nuage. Expérimentalement, nous sommes parvenus à produire un coefficient de réflexion en amplitude proche de l'unité. Cela nous a permis dans un premier temps d'étudier les effets d'une semi-cavité composée du nuage d'atomes pompés, et d'un miroir : le gain Raman par transmission interfère constructivement avec le faisceau de mélange à quatre ondes, lors de multiples allers et retours du faisceau sonde entre le nuage d'atomes et le miroir. Nous avons alors grâce à ce procédé obtenu plus de 2000% de gain.

La possibilité d'obtenir des gains de valeur assez conséquente, nous a permis de faire laser le nuage d'atomes froids en le plaçant dans une cavité plan-concave.

Malgré la faible finesse de la cavité due aux pertes importantes sur la cellule à vide, nous avons produit une émission laser souvent intense, allant jusqu'à $300\mu\text{W}$.

Les gains Mollow, Raman et mélange à quatre ondes, permettent tous trois d'obtenir un laser, avec pour chacun des caractéristiques différentes, propres au gain utilisé (fréquence d'émission, largeur spectrale, etc...). Nous pouvons de plus passer continuellement d'un type de laser à un autre, en changeant les paramètres de pompage.

Nous avons ainsi démontré que le nuage d'atomes froids pouvait produire un laser classique, ce qui était une étape nécessaire à maîtriser, avant de produire un laser non classique comme le laser aléatoire.

Nous devons désormais étudier les propriétés de la lumière diffusée en présence de gain. La prochaine étape sera de produire un laser aléatoire incohérent qui est l'éventualité la plus vraisemblable étant donné la densité des atomes (ou le degré de désordre faible) dans le nuage. Il reste à choisir quel mécanisme de gain est compatible de manière optimale avec une diffusion multiple efficace. Dans tous les cas, une grande épaisseur optique est nécessaire pour avoir de la diffusion multiple, et nous devons poursuivre avec les techniques permettant d'augmenter la densité atomique dans le nuage, et ainsi nous approcher des conditions de localisation d'Anderson.

Détail du fonctionnement de l'expérience

On présente dans cette annexe les données de calibration des fréquences de tous les laser utilisés. La figure A.1 illustre schématiquement les positions des modules acousto-optiques (AOM), qui permettent de balayer les fréquences de laser pièges, pompe et sonde.

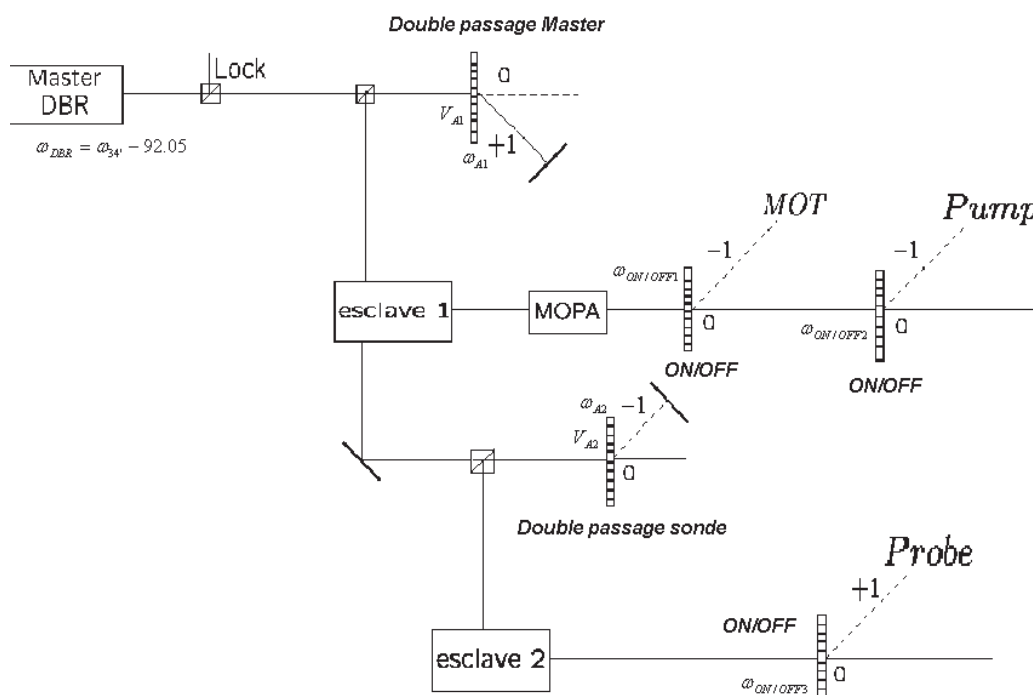


FIG. A.1 – Schéma de construction des fréquences des lasers de l'expérience

A toutes fins utiles, nous donnons la calibration de chaque module AOM. Les chiffres donnés ci dessous, sont susceptibles d'être modifiés, mais on s'intéresse ici surtout au raisonnement.

La diode laser maître est asservie sur le cross over entre la raie 34' et 32' (les

fréquences sont toutes en MHz, et $\Gamma \sim 6\text{MHz}$) :

$$\omega_{DBR} = \omega_{34'} - 92.05$$

La fréquences des photons arrivant dans l'esclave 1, après le double passage est :

$$\omega_1 = \omega_{DBR} + 2\omega_{A1}$$

où ω_{A1} est le décalage en fréquence de l'ordre -1 de l'AOM :

$$\omega_{A1} = 58.27 + 1.152\Gamma V_{A1}$$

où V_{A1} est la tension appliqué au VCO¹ de l'AOM.

Les offsets des AOM ON/OFF du MOT et de la sonde sont différents :

– Pour le MOT : $\omega_{ON/OFF1} = -97.08$

– Pour la pompe : $\omega_{ON/OFF2} = -80.38$

La fréquence des photons arrivant sur l'esclave 2, après le double passage pompe est :

$$\omega_2 = \omega_1 - 2\omega_{A2}$$

où ω_{A2} est le décalage en fréquence de l'ordre -1 de l'AOM :

$$\omega_{A2} = 45.7 + 0.490\Gamma V_{A2}$$

Enfin, l'offset de l'AOM ON/OFF de la sonde est : $\omega_{ON/OFF3} = +80$

En résumé on a donc :

– Pour les faisceaux MOT :

$$\omega_{MOT} = \omega_{34'} - 92.05 + 2(58.27 + 1.152\Gamma V_{A1}) - 97.08$$

– Pour les faisceaux Pompe :

$$\omega_{PUMP} = \omega_{34'} - 92.05 + 2(58.27 + 1.152\Gamma V_{A1}) - 80.38$$

– Pour le faisceau sonde :

$$\omega_{PROBE} = \omega_{34'} - 92.05 + 2(58.27 + 1.152\Gamma V_{A1}) - 2(45.7 + 0.490\Gamma V_{A2}) + 80$$

En faisant les applications numériques, on trouve que les faisceaux pompes sont à résonance atomique pour $V_{A1} = 4.118\text{V}$.

Le décalage en fréquence entre le faisceau pompe et le faisceau sonde est :

$$\delta = \omega_{PROBE} - \omega_{PUMP} = 1.86\Gamma - 0.980\Gamma V_{A2}$$

On donne ci après le schéma complet de l'expérience, également à toutes fins utiles :

¹Voltage Controlled Oscillator

Données Rubidium 85

On présente dans cette annexe quelques données utiles sur les propriétés quantiques de l'atome de Rubidium 85 (^{85}Rb). Des données plus exhaustives peuvent être trouvées dans [127].

– Propriétés physiques

Nombre atomique	$Z = 37$
Abondance relative	72.17(2)%
Masse	$m = 1.409\,993\,199 \times 10^{-25}$ kg
Liquéfaction	$T_L = 39.30^\circ\text{C}$
Vaporisation	$T_V = 688^\circ\text{C}$
Spin nucléaire	$I = 5/2$

– Propriétés de la raie D_2

Longueur d'onde (air)	$\lambda = 780.241\,368\,271(27)$ nm
Largeur de raie	$\Gamma/2\pi = 6.0666(18)$ MHz
Intensité de saturation	$I_{\text{sat}} = 1.67$ mW/cm ²
Température Doppler	$T_D = 145.57$ μK
Énergie de recul	$E_r/h = 3.8597$ kHz
Vitesse de recul	$v_r = 6.0230$ mm/s
Température de recul	$T_r = 370.47$ nK

Nous rappelons ici la relation entre le taux d'émission spontanée Γ et le dipôle $d = 2.53 \cdot 10^{-29}$ C.m, associé à la transition $S \rightarrow P$, indépendant de l'état fin ou hyperfin [51] :

$$\Gamma = \frac{8\pi^2 d^2}{3\epsilon_0 \hbar \lambda^3}. \quad (\text{B.1})$$

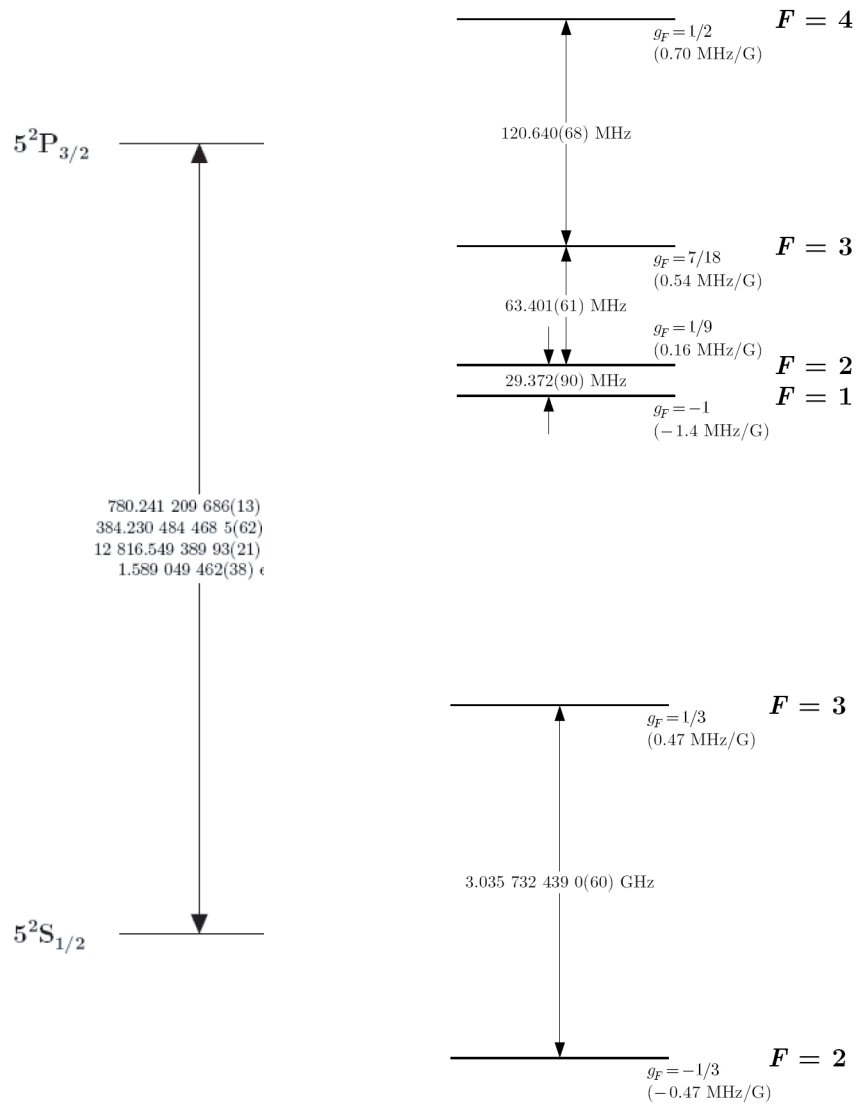


FIG. B.1 – Raie D_2 du ^{85}Rb . Seule la raie D_2 intervient dans le processus de refroidissement laser (chapitre 2), et pour les mécanismes de pompage (chapitre 3 et 4). Les longueurs d'onde sont ici données dans le vide.

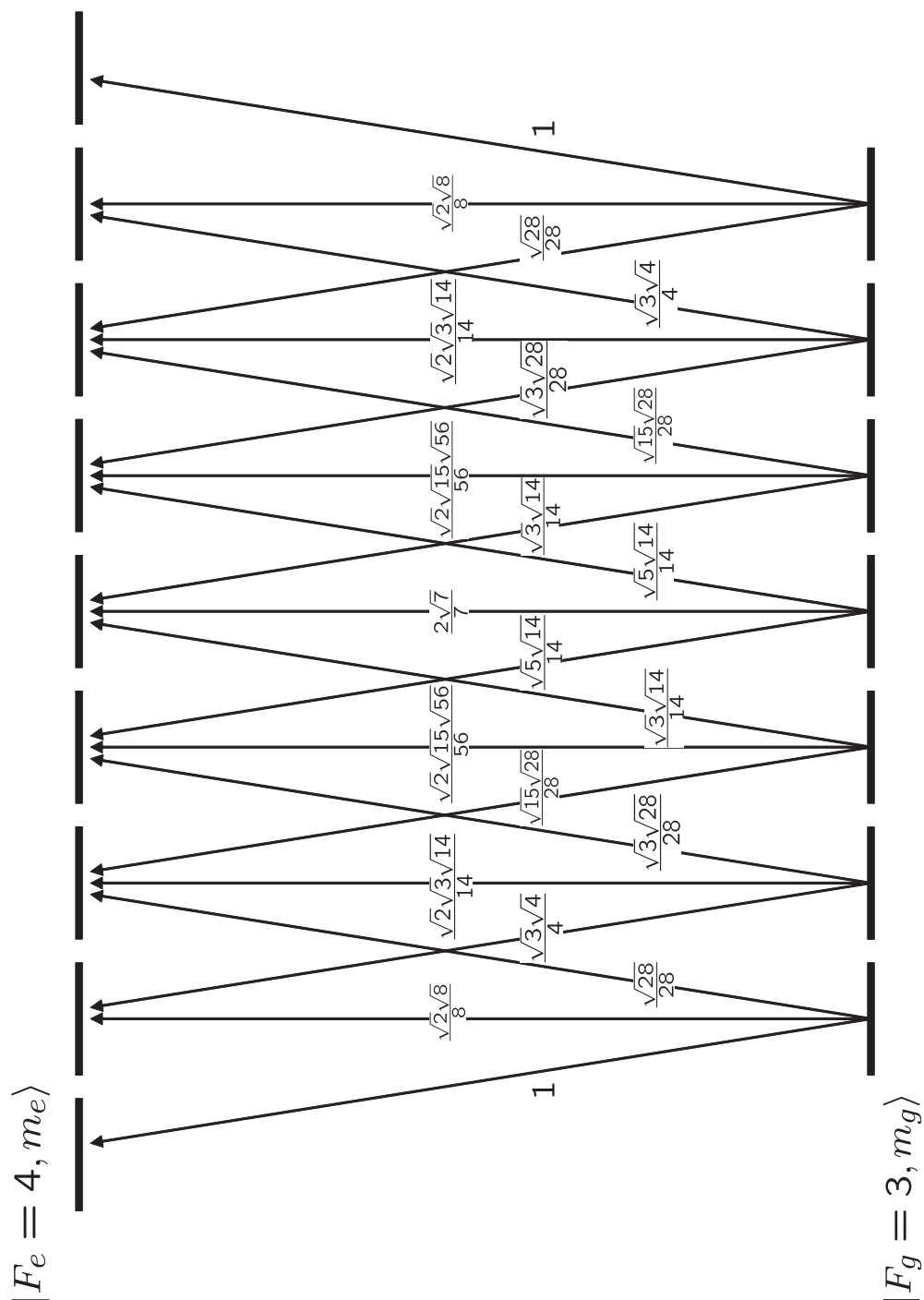


FIG. B.2 – Coefficient de Clebsch-Gordan de la transition $F = 3 \rightarrow F' = 4$ du ^{85}Rb

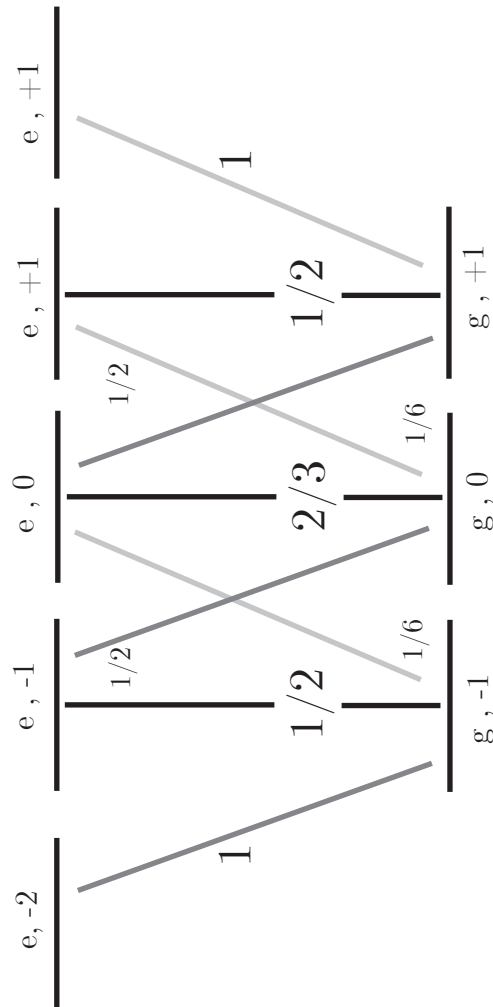


FIG. B.3 – Carré des coefficients de Clebsch-Gordan d'une transition $F = 1 \rightarrow F' = 2$

Mode transverse d'une cavité laser

On présente dans cet annexe, quelques méthodes de calcul des modes de Laguerre-Gauss et d'Hermite-Gauss présents dans une cavité laser, comme ceux observés au chapitre 4. Pour plus de détails on pourra consulter [120].

C.1 Modes Gaussiens

Le faisceau se propage suivant l'axe Oz, on regarde dans le plan $\{Ox, Oy\}$. z_R est la longueur de Rayleigh

$$z_R = \frac{\pi\omega_0^2}{\lambda}$$

où ω_0 est le waist du faisceau à $z=0$ et λ la longueur d'onde. On pose $\zeta = z/z_R$ et k le vecteur d'onde. Le mode de propagation gaussien s'écrit en amplitude :

$$E_0 = \frac{1}{\omega_0^2 + \frac{2iz}{k}} \exp\left(ikz - \frac{x^2 + y^2}{\omega_0^2 + \frac{2iz}{k}}\right) \quad (\text{C.1})$$

C.2 Modes d'Hermite-Gauss

D'autres modes plus élevés existent dans les symétries axiales, le champ peut s'écrire :

$$E_{m,n}^H = \frac{1}{w(\zeta)^{(m+n)/2+1}} H_m\left(\frac{x}{\omega_0(1+i\zeta)^{1/2}}\right) H_n\left(\frac{y}{\omega_0(1+i\zeta)^{1/2}}\right) \exp\left(ikz - \frac{x^2 + y^2}{\omega_0^2(1+i\zeta)} - i\psi_{m,n}\right) \quad (\text{C.2})$$

où $\psi_{m,n} = \left(1 + \frac{m+n}{2}\right) \arctan(\zeta)$ est appelé phase de Gouy, $w(\zeta) = \omega_0(1 + \zeta^2)^{1/2}$. Les polynômes d'Hermite peuvent être définis par la suite récurrente suivante pour $n \geq 0$:

$$H_{n+1}(x) = 2xH_n(x) - 2nH_{n-1}(x) \quad (\text{C.3})$$

avec comme conditions initiales : $H_{-1} = 0$ et $H_0 = 1$

C.3 Modes de Laguerre-Gauss

Pour les problèmes à symétrie radiale, les polynômes de Laguerre sont mieux adaptés le champ peut s'écrire :

$$E_{m,n}^L = \frac{e^{-in\phi}}{w(\zeta)^{m+n+1}} (x^2 + y^2)^n L_m^n \left(\frac{x^2 + y^2}{\omega_0(1+i\zeta)} \right) \exp \left(ikz - \frac{x^2 + y^2}{\omega_0^2(1+i\zeta)} - i\psi_{m,n}^L \right) \quad (\text{C.4})$$

Les polynômes de Laguerre peuvent être définis également par une suite récurrente : pour $n \geq 0$

$$L_{n+1}(x) = (2n + 1 - x)L_n(x) - n^2 L_{n-1}(x) \quad (\text{C.5})$$

avec comme conditions initiales : $L_{-1} = 0$ et $L_0 = 1$

Bibliographie

- [1] P. W. ANDERSON, “Absence of Diffusion in Certain Random Lattices”, *Phys. Rev.* **109**, 1492 (1958).
- [2] D. THOULESS, “Electrons in Disordered Systems and the Theory of Localisation”, *Phys. Rep.* **13**, (1974).
- [3] S. JOHN, “The localisation of Light and Other Classical Waves in Disordered Media”, *Comments Cond. Phys.* **14**, (1988).
- [4] P. SHENG, B. WHITE, Z. ZHANG, , ET G. PAPANICOLAOU, *Wave Localization and Multiple Scattering in Randomly-Layered Media* (World Scientific, Singapour, 1990).
- [5] S. FISHMAN, D. R. GREMPEL, ET R. E. PRANGE, “Chaos, Quantum Recurrences, and Anderson Localization”, *Phys. Rev. Lett.* **49**, 509 (1982).
- [6] D. S. WIERSMA, P. BARTOLINI, A. LAGENDIJK, ET R. RIGHINI, “Localization of light in a disordered medium”, *Nature* **390**, 671 (1997).
- [7] F. SCHEFFOLD, R. LENKE, R. TWEER, ET G. MARET, “Localization or classical diffusion of light?”, *Nature* **398**, 206 (1999).
- [8] D. S. WIERSMA, J. G. RIVAS, P. BARTOLINI, A. LAGENDIJK, ET R. RIGHINI, “Reply Localization or classical diffusion of light?”, *Nature* **398**, 207 (1999).
- [9] J. BILLY, V. JOSSE, Z. ZUO, A. BERNARD, B. HAMBRECHT, P. LUGAN, D. CLÉMENT, L. SANCHEZ-PALENCIA, P. BOUYER, ET A. ASPECT, “Direct observation of Anderson localization of matter waves in a controlled disorder”, *Nature* **453**, 891 (2008).
- [10] G. ROATI, C. D’ERRICO, L. FALLANI, M. FATTORI, C. FORT, M. ZACCANTI, G. MODUGNO, M. MODUGNO, ET M. INGUSCIO, “Anderson localization of a non-interacting Bose-Einstein condensate”, *Nature* **453**, 895 (2008).
- [11] Z. V. VARDENY ET A. NAHATA, “Slow light : Anderson localization of slow light”, *Nature Photonics* **2**, 75 (2008).
- [12] M. STÖRZER, P. GROSS, C. M. AEGERTER, ET G. MARET, “Observation of the critical regime near anderson localization of light”, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 063904 (2006).

-
- [13] M. C. W. VAN ROSSUM ET T. M. NIEUWENHUIZEN, “Multiple scattering of classical waves : microscopy, mesoscopy, and diffusion”, *Rev. Mod. Phys.* **71**, 313 (1999).
- [14] V. S. LETOKHOV, “Stimulated Emission of an Ensemble of Scattering Particles with Negative Absorption”, *Sov. Phys. JETP* **26**, 835 (1968).
- [15] N. LAWANDY, R. BALACHANDRAN, A. GOMES, ET E. SAUVAIN, “Laser action in strongly scattering media”, *Nature* **369**, 436 (1994).
- [16] N. LAWANDY ET R. BALACHANDRAN, “Random Laser?”, *Nature* **373**, 204 (1995).
- [17] D. WIERSMA, M. VAN ALBADA, ET A. LAGENDIJK, “Random Laser?”, *Nature* **373**, 203 (1995).
- [18] D. WIERSMA, “Laser physics : The smallest random laser”, *Nature* **406**, 132 (2000).
- [19] N. NOGINOV, *Solid-State Random Lasers* (Springers, New York, 2005).
- [20] H. CAO, “Random lasers : development, features, and applications”, *Opt. Photon. News* **16**, 24 (2005).
- [21] H. CAO, “Lasing in random media”, *Waves in Random Media* **13**, R1 (2003).
- [22] H. CAO, “Review on Latest developments in random lasers with coherent feedback”, *J. Phys. A : Math. Gen.* **38**, 10497 (2005).
- [23] C. W. J. BEENAKKER, “Thermal Radiation and Amplified Spontaneous Emission from a Random Medium”, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 1829 (1998).
- [24] R. PIERRAT ET R. CARMINATI, “Threshold of random lasers in the incoherent transport regime”, *Physical Review A (Atomic, Molecular, and Optical Physics)* **76**, 023821 (2007).
- [25] H. CAO, Y. LING, J. Y. XU, C. Q. CAO, ET P. KUMAR, “Photon Statistics of Random Lasers with Resonant Feedback”, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 4524 (2001).
- [26] D. WIERSMA, “The physics and applications of random lasers”, *Nature Physics* **4**, 359 (2008).
- [27] C. VANNESTE, P. SEBBAH, ET H. CAO, “Lasing with Resonant Feedback in Weakly Scattering Random Systems”, *Physical Review Letters* **98**, 143902 (2007).
- [28] G. LABEYRIE, R. KAISER, ET D. DELANDE, “Radiation trapping in a cold atomic gas”, *Applied Physics B* **81**, 1001 (2005).
- [29] A. FIORETTI, A. F. MOLISCH, J. H. MÜLLER, P. VERKERK, ET M. ALLEGRI, “Observation of radiation trapping in a dense Cs magneto-optical trap”, *Opt. Comm.* **419**, (1998).

- [30] G. LABEYRIE, D. DELANDE, C. A. MÜLLER, C. MINIATURA, ET R. KAISER, “Coherent backscattering of light by an inhomogeneous cloud of cold atoms”, *Phys. Rev. A* **67**, 033814 (2003).
- [31] C. COHEN-TANOUDJI, J. DALIBARD, P. DESBIOLLES, et D. GUERY-ODELIN, Atomes ultra-froids, Cours du DEA de Physique Quantique, disponible sur <http://www.lkb.ens.fr/~dalibard/>.
- [32] G. LABEYRIE, F. MICHAUD, ET R. KAISER, “Self-Sustained Oscillations in a Large Magneto-Optical Trap”, *Physical Review Letters* **96**, 023003 (2006).
- [33] A. DI STEPHANO, P. VERKERK, ET D. HENNEQUIN, “Deterministic instabilities in the magneto-optical trap”, *Eur. Phys. J. D* **30**, 243 (2004).
- [34] D. WILKOWSKI, J. RINGOT, D. HENNEQUIN, ET J. C. GARREAU, “Instabilities in a Magneto-optical Trap : Noise-Induced Dynamics in an Atomic System”, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 1839 (2000).
- [35] G. LABEYRIE, D. DELANDE, R. KAISER, ET C. MINIATURA, “Light Transport in Cold Atoms and Thermal Decoherence”, *Physical Review Letters* **97**, 013004 (2006).
- [36] B. R. MOLLOW, “Stimulated Emission and Absorption near Resonance for Driven Systems”, *Phys. Rev. A* **5**, 2217 (1972).
- [37] J. W. R. TABOSA, G. CHEN, Z. HU, R. B. LEE, ET H. J. KIMBLE, “Nonlinear spectroscopy of cold atoms in a spontaneous-force optical trap”, *Phys. Rev. Lett.* **66**, 3245 (1991).
- [38] T. M. BRZOWSKI, M. BRZOWSKA, J. ZACHOROWSKI, M. ZAWADA, ET W. GAWLIK, “Probe spectroscopy in an operating magneto-optical trap : The role of Raman transitions between discrete and continuum atomic states”, *Physical Review A (Atomic, Molecular, and Optical Physics)* **71**, 013401 (2005).
- [39] F. MICHAUD, G.-L. GATTOBIGIO, J. W. R. TABOSA, ET R. KAISER, “Interference between Raman gain and four-wave mixing in cold atoms”, *J. Opt. Soc. Am. B* **24**, A40 (2007).
- [40] A. SAVAGE ET R. C. MILLER, “Measurements of Second Harmonic Generation of the Ruby Laser Line in Piezoelectric Crystals”, *Appl. Opt.* **1**, 661 (1962).
- [41] M. LUKIN, P. HEMMER, ET M. SCULLY, *Adv. At. Mol. Opt. Phys.* .
- [42] W. GUERIN, F. MICHAUD, ET R. KAISER, “Mechanisms for Lasing with Cold Atoms as the Gain Medium”, *Physical Review Letters* **101**, 093002 (2008).
- [43] C. I. WESTBROOK, R. N. WATTS, C. E. TANNER, S. L. ROLSTON, W. D. PHILLIPS, P. D. LETT, ET P. L. GOULD, “Localization of atoms in a three-dimensional standing wave”, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 33 (1990).

- [44] D. S. SAXON, “Tensor Scattering Matrix for the Electromagnetic Field”, *Phys. Rev.* **100**, 1771 (1955).
- [45] S. CHANDRASEKHAR, *Radiative transfert* (Dover, New York, 1960).
- [46] S. SKIPETROV, *Dynamique des figures de tavelures en milieux désordonnés*, Mémoire d’Habilitation à Diriger des Recherches, 2007.
- [47] B. VAN TIGGELEN, A. LAGENDIJK, ET D. S. WIERSMA, “Reflection and Transmission of Waves near the Localization Threshold”, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 4333 (2000).
- [48] J. JACKSON, “*Classical Electrodynamics*”, seconde édition (Wiley, 1975).
- [49] E. AKKERMANN ET G. MONTAMBAUX, *Physique mésoscopique des électrons et des photons* (EDP Science, CNRS éditions, 2001).
- [50] C. COHEN-TANNOUJJI, J. DUPONT-ROC, ET G. GRYNBERG, *Processus d’interaction entre photons et atomes* (EDP Science, CNRS éditions, 2001).
- [51] G. GRYNBERG, A. ASPECT, ET C. FABRE, *Introduction aux lasers et à l’optique quantique* (Ellipses, 1997).
- [52] A. LAGENDIJK ET B. V. TIGGELEN, “Resonant multiple scattering of light”, *Phys. Rep.* **270**, 143 (1996).
- [53] B. V. TIGGELEN, Mesoscopic light scattering in atomic physics, Cours Ecoles de Physique des Houches, 1999, disponible sur <http://lpmmc.grenoble.cnrs.fr/spip.php?article311>.
- [54] T. HOLSTEIN, “Imprisonment of Resonance Radiation in Gases”, *Phys. Rev.* **72**, 1212 (1947).
- [55] L. A. APRESYAN ET Y. A. KRAVTSOV, *Radiative Transfer : Statistical and Wave Aspects* (Gordon and Breach, New York, 1996).
- [56] G. LABEYRIE, F. DE TOMASI, J.-C. BERNARD, C. A. MÜLLER, C. MINIATURA, ET R. KAISER, “Coherent Backscattering of Light by Cold Atoms”, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 5266 (1999).
- [57] M. P. V. ALBADA ET A. LAGENDIJK, “Observation of Weak Localization of Light in a Random Medium”, *Phys. Rev. Lett.* **55**, 2692 (1985).
- [58] C. MULLER, *Localisation faible de la lumière dans un gaz d’atomes froids : rétrodiffusion cohérente et structure quantique interne*, Mémoire de Thèse de Doctorat, 2001.
- [59] A. F. IOFFE ET A. REGEL, “Wave propagation and scattering in random media”, *Prog. Semicond.* **4**, (1960).
- [60] P. M. JOHNSON, A. IMHOF, B. P. J. BRET, J. G. RIVAS, ET A. LAGENDIJK, “Time-resolved pulse propagation in a strongly scattering material”, *Phys. Rev. E* **68**, 016604 (2003).

- [61] K. Y. BLIOKH, Y. P. BLIOKH, V. FREILIKHER, A. Z. GENACK, B. HU, ET P. SEBBAH, “Localized Modes in Open One-Dimensional Dissipative Random Systems”, *Physical Review Letters* **97**, 243904 (2006).
- [62] H. HU, A. STRYBULEVYCH, J. PAGE, S. SKIPETROV, ET B. V. TIGGLEN, “Localization of ultrasound in a three-dimensional elastic network”, *Nature Physics* .
- [63] J. CHABÉ, G. LEMARIÉ, B. GRÉMAUD, D. DELANDE, P. SZRIFTGISER, ET J. C. GARREAU, “Experimental observation of the Anderson transition with atomic matter waves”, **arXiv :0709.4320v2 [quant-ph]**, .
- [64] G. GATTOBIGIO, *Manipulation of a Large Magneto-Optical Trap : application to Four-Wave Mixing*, Mémoire de Thèse de Doctorat, 2008.
- [65] K. L. VAN DER MOLEN, R. W. TJERKSTRA, A. P. MOSK, ET A. LANGENDIJK, “Spatial Extent of Random Laser Modes”, *Physical Review Letters* **98**, 143901 (2007).
- [66] A. Z. GENACK ET J. M. DRAKE, “Scattering for super-radiation”, *Nature* **368**, 400 (1994).
- [67] H. E. TÜRECI, L. GE, S. ROTTER, ET A. D. STONE, “Strong Interactions in Multimode Random Lasers”, *Science* **320**, (2008).
- [68] C. VANNESTE ET P. SEBBAH, “Selective Excitation of Localized Modes in Active Random Media”, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 183903 (2001).
- [69] X. JIANG ET C. M. SOUKOULIS, “Time Dependent Theory for Random Lasers”, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 70 (2000).
- [70] N. VANSTEENKISTE, *Réalisation d’un laser LNA monomode et asservi sur la transition 23S1-23P de l’hélium 4 (1083nm) : utilisation pour quelques expériences de refroidissement radiatif d’atomes d’hélium 4 métastable*, Mémoire de Thèse de Doctorat, 1989.
- [71] A. ASPECT, E. ARIMONDO, R. KAISER, N. VANSTEENKISTE, ET C. COHEN-TANNOUJJI, “Laser Cooling below the One-Photon Recoil Energy by Velocity-Selective Coherent Population Trapping”, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 826 (1988).
- [72] D. E. PRITCHARD, E. L. RAAB, V. BAGNATO, C. E. WIEMAN, ET R. N. WATTS, “Light Traps Using Spontaneous Forces”, *Phys. Rev. Lett.* **57**, 310 (1986).
- [73] G. GATTOBIGIO, T. POHL, G. LABEYRIE, ET R. KAISER, “Scaling laws for large magneto-optical traps”, *submitted to EPJD* .
- [74] S. HAROCHE ET F. HARTMANN, “Theory of Saturated-Absorption Line Shapes”, *Phys. Rev. A* **6**, 1280 (1972).
- [75] M. DEPUE, W. S. LUKMAN, D. J. HAN, ET D. S. WEISS, “Transient compression of a MOT and high intensity fluorescent imaging of optically thick clouds of atoms”, *Opt. Comm.* **180**, (2000).

- [76] R. GRIMM, M. WEIDEMÜLLER, ET Y. B. OVCHINIKOV, *Adv. At. Mol. Opt. Phys.* **42**, (2000).
- [77] T. POHL, G. LABEYRIE, ET R. KAISER, “Self-driven nonlinear dynamics in magneto-optical traps”, *Physical Review A (Atomic, Molecular, and Optical Physics)* **74**, 023409 (2006).
- [78] J. T. MENDONÇA, R. KAISER, H. TERÇAS, ET J. LOUREIRO, “Collective oscillations in ultracold atomic gas”, *Physical Review A (Atomic, Molecular, and Optical Physics)* **78**, 013408 (2008).
- [79] T. WALKER, D. SESKO, ET C. WIEMAN, “Collective behavior of optically trapped neutral atoms”, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 408 (1990).
- [80] F. MICHAUD, *Instabilités dynamiques dans un nuage d’atomes froids*, Rapport de stage, Ecole Nationale Supérieure de Physique de Marseille, 2004.
- [81] P. VERKERK, B. LOUNIS, C. SALOMON, C. COHEN-TANNOUJDI, J.-Y. COURTOIS, ET G. GRYNBERG, “Dynamics and spatial order of cold cesium atoms in a periodic optical potential”, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 3861 (1992).
- [82] B. LOUNIS, J.-Y. COURTOIS, P. VERKERK, C. SALOMON, ET G. GRYNBERG, “Measurement of the friction coefficient in 1D corkscrew optical molasses by stimulated Rayleigh spectroscopy”, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 3029 (1992).
- [83] D. GRISON, B. LOUNIS, C. SALOMON, J.-Y. COURTOIS, ET G. GRYNBERG, *Europhys. Lett* **15**, 149 (1991).
- [84] G. GRYNBERG ET C. ROBILLARD, “Cold Atoms in Dissipative Optical Lattices”, *Physics Reports* **355**, 335 (2001).
- [85] F. Y. WU, S. EZEKIEL, M. DUCLOY, ET B. R. MOLLOW, “Observation of Amplification in a Strongly Driven Two-Level Atomic System at Optical Frequencies”, *Phys. Rev. Lett.* **38**, 1077 (1977).
- [86] A. LIPSICH, S. BARREIRO, A. M. AKULSHIN, ET A. LEZAMA, “Absorption spectra of driven degenerate two-level atomic systems”, *Phys. Rev. A* **61**, 053803 (2000).
- [87] R. BOYD, *NonLinear Optics* (Academic Press Inc., 1992).
- [88] R. L. ABRAMS ET R. C. LIND, “Degenerate four-wave mixing in absorbing media”, *Opt. Lett.* **2**, 94 (1978).
- [89] J. GUO, P. R. BERMAN, B. DUBETSKY, ET G. GRYNBERG, “Recoil-induced resonances in nonlinear spectroscopy”, *Phys. Rev. A* **46**, 1426 (1992).
- [90] J.-Y. COURTOIS, G. GRYNBERG, B. LOUNIS, ET P. VERKERK, “Recoil-induced resonances in cesium : An atomic analog to the free-electron laser”, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 3017 (1994).

- [91] M. VENGALATTORE ET M. PRENTISS, “Recoil-induced resonances in the high-gain regime”, *Physical Review A (Atomic, Molecular, and Optical Physics)* **72**, 021401 (2005).
- [92] M. D. LUKIN, M. FLEISCHHAUER, A. S. ZIBROV, H. G. ROBINSON, V. L. VELICHANSKY, L. HOLLBERG, ET M. SCULLY, “Spectroscopy in Dense Coherent Media : Line Narrowing and Interference Effects”, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 2959 (1997).
- [93] M. FLEISCHHAUER, A. IMAMOGLU, ET J. P. MARANGOS, “Electromagnetically induced transparency : Optics in coherent media”, *Reviews of Modern Physics* **77**, 633 (2005).
- [94] F. B. M. DOS SANTOS ET J. W. R. TABOSA, “Application of electromagnetically induced transparency for cold-atom velocimetry”, *Physical Review A (Atomic, Molecular, and Optical Physics)* **73**, 023422 (2006).
- [95] Z. FICEK ET H. S. FREEDHOFF, “Resonance-fluorescence and absorption spectra of a two-level atom driven by a strong bichromatic field”, *Phys. Rev. A* **48**, 3092 (1993).
- [96] C. FABRE, Atomes et Lumière. Interaction Matière et Rayonnement, Cours du DEA de Physique Quantique, disponible sur <http://www.spectro.jussieu.fr/Optquant/fabre/Page-personnelle.html>.
- [97] T. H. YOON, M. S. CHUNG, ET H.-W. LEE, “Absorption spectra of two-level atoms interacting with a strong polychromatic pump field and an arbitrarily intense probe field”, *Phys. Rev. A* **60**, 2547 (1999).
- [98] G. GRYNBERG ET C. COHEN-TANNOUJDI, “Central resonance of the Mollow absorption spectrum : physical origin of gain without population inversion”, *Optics Communications* **96**, 150 (1993).
- [99] J. COURTOIS, *Spectroscopie Raman et Rayleigh stimulée d’atomes refroidis par laser. Dynamique des Mélasses Optiques Unidimensionnelle*, Mémoire de Thèse de Doctorat, 1993.
- [100] B. R. MOLLOW, “Power Spectrum of Light Scattered by Two-Level Systems”, *Phys. Rev.* **188**, 1969 (1969).
- [101] H. J. KIMBLE ET L. MANDEL, “Theory of resonance fluorescence”, *Phys. Rev. A* **13**, 2123 (1976).
- [102] G. S. AGARWAL, A. C. BROWN, L. M. NARDUCCI, ET G. VETRI, “Collective atomic effects in resonance fluorescence”, *Phys. Rev. A* **15**, 1613 (1977).
- [103] L. GUIDONI ET P. VERKERK, “Optical lattices : cold atoms ordered by light”, *J. Opt. B : Quantum Semiclass. Opt.* **1**, R23 (1999).
- [104] G. L. GATTOBIGLIO, F. MICHAUD, J. JAVALOYES, J. W. R. TABOSA, ET R. KAISER, “Bunching-induced asymmetry in degenerate four-wave mixing

- with cold atoms”, *Physical Review A (Atomic, Molecular, and Optical Physics)* **74**, 043407 (2006).
- [105] R. L. ABRAMS ET R. C. LIND, “Degenerate four-wave mixing in absorbing media : errata”, *Opt. Lett.* **3**, 205 (1978).
- [106] P. F. LIAO, D. M. BLOOM, ET N. P. ECONOMOU, “cw optical wave-front conjugation by saturated absorption in atomic sodium vapor”, *Appl. Phys. Lett.* **32**, 813 (1978).
- [107] G. P. AGRAWAL, A. V. LERBERGHE, P. AUBOURG, ET J. L. BOULNOIS, “Saturation splitting in the spectrum of resonant degenerate four-wave mixing”, *Opt. Lett.* **7**, 540 (1982).
- [108] M. PINARD, B. KLEINMANN, ET G. GRYNBERG, “Theory of degenerate four-wave mixing in three-level atoms”, *Optics Communications* **51**, 281 (1984).
- [109] A. LEZAMA, G. C. CARDOSO, ET J. W. R. TABOSA, “Polarization dependence of four-wave mixing in a degenerate two-level system”, *Phys. Rev. A* **63**, 013805 (2000).
- [110] R. BONIFACIO, L. DE SALVO, L. M. NARDUCCI, ET E. J. D’ANGELO, “Exponential gain and self-bunching in a collective atomic recoil laser”, *Phys. Rev. A* **50**, 1716 (1994).
- [111] C. J. DAVISSON ET L. H. GERMER, “Scattering of Electrons by a Single Crystal of Nickel”, *Nature* **119**, 558 (1927).
- [112] C. F. MCCORMICK, V. BOYER, E. ARIMONDO, ET P. D. LETT, “Strong relative intensity squeezing by four-wave mixing in rubidium vapor”, *Opt. Lett.* **32**, 178 (2007).
- [113] A. M. MARINO, V. BOYER, R. C. POOSER, P. D. LETT, K. LEMONS, ET K. M. JONES, “Delocalized Correlations in Twin Light Beams with Orbital Angular Momentum”, *Physical Review Letters* **101**, 093602 (2008).
- [114] L. HILICO, C. FABRE, ET E. GIACOBINO, “Operation of a “Cold-Atom Laser” in a Magneto-Optical Trap”, *Europhys. Lett.* **18**, 685 (1992).
- [115] E. L. BIHAN, P. VERKERK, M. PINARD, ET G. GRYNBERG, “Observation of self-oscillation in ring cavities with sodium vapor phase conjugate mirrors”, *Optics Communications* **56**, 202 (1985).
- [116] M. ORIA, D. BLOCH, M. FICHET, ET D. M., “Efficient phase conjugation of a cw low-power laser diode in a shirt Cs vapor cell at 852 nm”, *Optics Letters* **14**, 1082 (1989).
- [117] J. FEINBERG ET R. W. HELLWARTH, “Phase-conjugating mirror with continuous-wave gain”, *Opt. Lett.* **5**, 519 (1980).
- [118] A. E. SIEGMAN, *Lasers* (University Science Books, 1986).

- [119] P. A. BELANGER, Résonateur optique, disponible sur <http://copl.gel.ulaval.ca/pab/fomrl/chap4.pdf>.
- [120] H. KOGELNIK ET T. LI, "Laser beams and resonators", *Appl. Opt.* **5**, 1966 (1550).
- [121] T. WANG, S. F. YELIN, R. CÔTÉ, E. E. EYLER, S. M. FAROOQI, P. L. GOULD, M. KOŠTRUN, D. TONG, ET D. VRINCEANU, "Superradiance in ultracold Rydberg gases", *Physical Review A (Atomic, Molecular, and Optical Physics)* **75**, 033802 (2007).
- [122] G. GRYNBERG, A. MAÎTRE, ET A. PETROSSIAN, "Flowerlike patterns generated by a laser beam transmitted through a rubidium cell with single feedback mirror", *Phys. Rev. Lett.* **72**, 2379 (1994).
- [123] T. ACKEMANN ET W. LANGE, "Optical pattern formation in alkali metal vapors : Mechanisms, phenomena and use", *Applied Physics B : Lasers and Optics* **72**, 21 (2001).
- [124] M. PINARD, D. GRANDCLÉMENT, ET G. GRYNBERG, "Continuous-Wave Self-Oscillation Using Pair Production of Photons in Four-Wave Mixing in Sodium", *Europhys. Lett.* **2**, 755 (1986).
- [125] E. ABRAMOCHKIN ET V. VOLOSTNIKOV, "Generalized gaussian beams", *J. Opt. A Pure Appl. Opt.* **6**, 178 (2004).
- [126] N. MERCADIER, *Diffusion à Résonance Atomique. Application au mélange à 4 ondes et au vol de Lévy du photon*, Rapport de stage, Ecole Centrale de Paris, 2008.
- [127] D. A. STECK, Rubidium 85 D Line data, disponible sur le site internet <http://steck.us/alkalidata>.

RÉSUMÉ

Le laser aléatoire est un nouveau type de laser, dont les propriétés d'émission sont basées sur la diffusion multiple de lumière dans un milieu désordonné, en présence de gain. Nous avons comme projet de réaliser un tel laser aléatoire, avec comme milieu à gain un nuage d'atomes froids de ^{85}Rb , piégés dans un piège magnéto-optique. Cette thèse présente les premières étapes de recherche, portant sur les processus de gain dans le nuage d'atomes. Nous avons étudié théoriquement et expérimentalement trois types de gain : le gain Mollow, le gain Raman, et le mélange à quatre ondes. L'existence de ces gains nous permet de produire de façon classique un laser, en plaçant le nuage d'atomes dans une cavité Fabry-Pérot ; ce qui représente une étape préliminaire, et essentielle, dans la réalisation d'un laser aléatoire. D'autre part, une étude est menée sur le comportement de la lumière diffusée par le nuage d'atomes en présence de gain.

MOTS CLÉS

ATOMES FROIDS – OPTIQUE ATOMIQUE – LASER ALÉATOIRE – DIFFUSION MULTIPLE – GAIN MOLLOWS
– GAIN RAMAN – MÉLANGE À 4 ONDES

ABSTRACT

The random laser is a new type of laser, whose feedback mechanism is provided by multiple scattering, in a random medium with gain. Our projet is to produce such a laser, with ^{85}Rb cold atoms trapped in a magneto-optical trap, as gain and scattering medium. In this thesis, we present several process of gain in cold atoms, which we have studied theoretically and experimentally : Mollow gain, Raman Gain, and Four-wave Mixing. Each type of these gain, permit us to produce a classical laser, putting a Fabry-Pérot cavity around the atomic cloud. A study is already led on multiple scattering in presence of gain, in a preliminary part of the realization of a random laser.

KEY WORDS

COLD ATOMS – ATOM OPTICS – RANDOM LASER – MULTIPLE SCATTERING – MOLLOWS GAIN – RAMAN GAIN – FOUR WAVES MIXING