



Effets résonants et cohérents dans un cristal dopé aux ions erbium : oscillations cohérentes de population et transparence induite électromagnétiquement

E. Baldit

► To cite this version:

E. Baldit. Effets résonants et cohérents dans un cristal dopé aux ions erbium : oscillations cohérentes de population et transparence induite électromagnétiquement. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Paris Sud - Paris XI, 2007. Français. NNT : . tel-00335251

HAL Id: tel-00335251

<https://theses.hal.science/tel-00335251>

Submitted on 28 Oct 2008

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

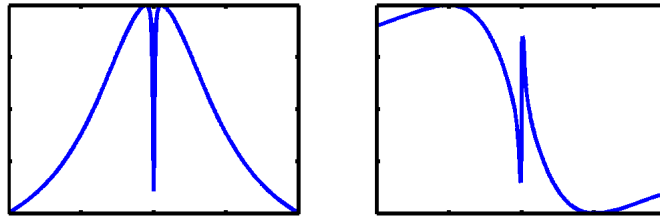
UNIVERSITE PARIS XI
UFR SCIENTIFIQUE D'ORSAY

Thèse présentée pour obtenir le grade de
DOCTEUR EN SCIENCES DE L'UNIVERSITE PARIS-XI

par

Elisa BALDIT

EFFETS RÉSONANTS ET COHÉRENTS DANS UN
CRISTAL DOPÉ AUX IONS ERBIUM :
OSCILLATIONS COHÉRENTES DE POPULATION ET
TRANSPARENCE INDUITE ELECTROMAGNÉTIQUEMENT



M. Mikael AFZELIUS	Rapporteur
M. Kamel BENCHEIKH	Co-directeur de thèse
M. Olivier GUILLOT-NOËL	Invité
M. Jean-Louis LEGOUËT	Examineur
M. Ariel LEVENSON	Directeur de thèse
M. Jean-François ROCH	Rapporteur
M. Christopher WESTBROOK	Président

Laboratoire de Photonique et de Nanostructures
CNRS-UPR 20 - route de Nozay - 91460 MARCOUSSIS

Merci

Cette thèse s'est déroulée au laboratoire de Photonique et de Nanostructures à Marcoussis. Mes premiers remerciements vont à Jean-Yves Marzin, directeur du LPN qui m'a accueillie de janvier 2004 à juin 2007. Merci d'avoir permis à cette expérience de voir le jour et de lui avoir donné les moyens d'avancer. Merci aussi d'avoir résolu les problèmes administratifs lorsqu'ils sont arrivés et de m'avoir aidé à conclure ce travail dans de bonnes conditions.

Je tiens à exprimer toute ma reconnaissance à Mikael Afzelius, Olivier Guillot-Noël, Jean-Louis Legouët, Jean-François Roch et Chris Westbrook de m'avoir fait l'honneur de participer au jury et d'avoir pris le temps de discuter de physique avec moi. Merci de surcroît à Mikael Afzelius et Jean-François Roch qui se sont acquittés de la lourde tâche de rapporteurs en un temps record. Je remercie tout particulièrement Mikael Afzelius pour sa lecture très attentive et ses remarques éclairées et éclairantes sur la spectroscopie et la transparence induite.

Ce travail a été réalisé sous la double direction d'Ariel Levenson et Kamel Bencheikh. Je vous remercie tous les deux de m'avoir fait confiance et de m'avoir aiguillé de loin ou de près tout au long de ce travail. Merci Ariel pour ta disponibilité aux moments cruciaux et ton enthousiasme pour la physique en général et tout nouveau résultat expérimental en particulier. Merci Kamel d'avoir pensé à un sujet pareil et d'avoir partagé ce bébé-là avec moi. La réussite de ce travail doit énormément à ton calme et à ta disponibilité. Ta constance face aux résultats les plus inattendus et l'ambiance chaleureuse et travailleuse que tu as su créer ont été absolument essentiels pour moi durant ces trois ans.

Un grand merci à Stéphan Briaudeau, maître de conférence au CNAM en délégation au LPN, d'avoir partagé cette aventure et donné un coup de main magistral pendant ma troisième année de thèse. Un grand merci aussi à Paul Monnier, ingénieur d'étude dans le groupe PHOTONIQ d'avoir toujours été là en cas de besoin, qu'il soit technique ou scientifique, merci pour les milles bonnes questions / idées qui permettent d'avancer jour après jour. Merci également à Jacqueline Bloch du groupe GOSS de nous avoir prêté un cryostat à bain d'hélium pour les expériences de ralentissement. Merci enfin à Patrick Hisope pour son service *Hélium Express* et à Nicolas Allemandou, Gilbert Chanconie et Laurent Merzeau du service technique du LPN pour avoir fait, notamment, un beau berceau au cryostat.

Ce travail n'aurait pas beaucoup avancé sans les précieuses collaborations que nous avons menées avec le Laboratoire Aimé Cotton (LAC) et le Laboratoire de Chimie Appliquée à l'Etat Solide (LCAES).

Merci donc à Ivan Lorgeré et Vincent Crozatier du LAC, pour nous avoir ouvert les portes de leur salle de manip et avoir partagé des heures d’expériences sur l’erbium 167. Merci à tout le reste de l’équipe, Fabien Bretenaker, Fabienne Goldfarb, Guillaume Gorgu, Jean-Louis Legouët et Anne Louchet d’avoir partagé votre expertise et vos conseils sur les terres rares, la spectroscopie et les effets cohérents... et le choix des prénoms de bébé.

Je tiens à exprimer toute ma gratitude à Olivier Guillot-Noël et Philippe Goldner du LCAES sans qui la structure hyperfine de l’erbium 167 dans YSO resterait un mystère. Travailler avec vous, découvrir la RPE et la physique atomique du même coup fût extrêmement stimulant pour mon cerveau d’opticienne. Merci pour votre persévérance et votre enthousiasme, qui ont jalonné ces trois ans. La réussite de cette collaboration est pour moi un très grand motif de satisfaction.

Il me reste à remercier tous les compagnons de cette route travailleuse, et plus particulièrement les membres du groupe PHOTONIQ : Alin Apetrei, Nadia Belabas-Plougonven, Alejandro Giacomotti, Paul Monnier, Fabrice Raineri, Rama Raj, Marjorie Thomas et Gabriele Vecchi, ainsi que Jean-Marie Moison du groupe PEQ, d’avoir accueilli une doctorante dopée à l’erbium alors que vous étiez des nano-structurés. Merci à tous pour les discussions, conseils et soutiens scientifiques, physiques et métaphysiques, pédiatriques et gastronomiques prodigués généreusement et en toute saison autour d’un café, d’un repas ou d’un arrêt de bus.

Merci également à l’équipe pédagogique 1A de l’École Supérieure d’Optique¹ avec qui j’ai eu l’occasion de travailler durant trois années de monitorat : Thierry Avignon, Carole Arnaud, Fabienne Bernard, François Goudail, Rodolphe Hoppeler, Lionel Jacuboviez, Jean-Michel Jonathan, Sébastien De Rossi et les enseignants des TP notamment Aude Bouchier, William Guerin et Aurélien Dantan. Un merci spécial à Lionel Jacuboviez pour m’avoir laissé faire trois cours dans l’amphithéâtre du bâtiment 503, expérience redoutable... pour laquelle il convient sans doute de remercier également les étudiants.

Je dédie ce travail à ma Maman qui a gardé fidèlement dans son portefeuille l’intitulé de cette thèse gribouillé sur un papier, et à Cuero et Guilhem, le grand et le petit homme de ma vie, qui ont supporté mes doutes et illuminé mon quotidien de la douceur réconfortante d’une famille.

¹Institut d’Optique Graduate School

J'fais des trous, des p'tits trous, encor des p'tits trous...
Serge Gainsbourg

Table des matières

1	Introduction générale	9
2	Ions de terre rare en matrice cristalline	15
2.1	Quelques généralités	16
2.1.1	Structure électronique	16
2.1.2	Niveaux d'énergie	16
2.1.3	Largeur de raie	20
2.2	$\text{Er}^{3+} : \text{Y}_2\text{SiO}_5$	23
2.2.1	Cristal Y_2SiO_5	24
2.2.2	Détail des niveaux d'énergie	24
2.2.3	Spectres linéaires	26
2.3	Quelques aspects expérimentaux	27
2.3.1	Laser	27
2.3.2	Cryogénie	28
2.4	A retenir	29
3	Caractérisations spectroscopiques de Er : YSO	31
3.1	Introduction aux méthodes spectroscopiques	32
3.1.1	Echo de photon	32
3.1.2	Creusement spectral	34
3.1.3	Résonance paramagnétique électronique	41
3.2	Mesure des temps de vie des cohérences et des populations	46
3.2.1	Echo de photon et mesure de T_2	46
3.2.2	Dynamique de creusement spectral et mesure de T_1	48
3.3	Eclatements hyperfins	54
3.3.1	Creusement spectral	54
3.3.2	Résonance paramagnétique électronique	60
3.3.3	Identification de systèmes en Λ	75
3.4	Conclusion et perspectives sur les caractérisations spectroscopiques	78
4	Ralentissement de la lumière avec l'erbium	81
4.1	De la vitesse de la lumière au ralentissement	82
4.1.1	Impulsion lumineuse	82

4.1.2	Vitesses	84
4.1.3	Relations de Kramers-Krönig	86
4.1.4	Lumière lente et lumière ultra-lente	87
4.1.5	Conclusion	89
4.2	Oscillations cohérentes de population	89
4.2.1	Théorie	90
4.2.2	Élargissement homogène	93
4.2.3	Élargissement inhomogène	95
4.2.4	Homogène versus inhomogène	97
4.2.5	Conclusion	98
4.3	Ralentissement dans Er :YSO	99
4.3.1	Dispositif expérimental	99
4.3.2	Mesures de vitesse de groupe	104
4.3.3	Élargissement inhomogène comme paramètre du matériaux	110
4.3.4	Propagation et ralentissement d'impulsions	112
4.4	Conclusions et perspectives sur le ralentissement de la lumière	120
5	Transparence Induite à 1.5 μm	125
5.1	Systèmes en Λ et transparence induite	126
5.1.1	Système à trois niveaux	126
5.1.2	Transparence induite	128
5.1.3	Etat noir	131
5.2	Etude préliminaire	131
5.2.1	Expériences à 2 faisceaux	132
5.2.2	Expérience à 3 faisceaux	136
5.3	Résultats expérimentaux	138
5.3.1	Dispositif	138
5.3.2	Résultats	147
5.4	Modélisation et simulations numériques	152
5.4.1	Élargissement inhomogène	152
5.4.2	Pompage optique seul	154
5.4.3	Pompage optique et cohérence Raman	156
5.4.4	Résultats de simulations	157
5.5	Conclusions et perspectives sur la transparence induite dans Er :YSO	163
6	Conclusion générale	165
A	Résultats de spectroscopie	171

Chapitre 1

Introduction générale

Optique non linéaire résonante

Exciter un système atomique en résonance permet de bénéficier d'une réponse non linéaire importante avec des intensités relativement faibles. L'absorption du faisceau est la contre partie à cette forte non-linéarité : plus on s'approche de la résonance plus l'effet non linéaire est fort et plus le faisceau est absorbé. Des études théoriques et expérimentales ont cependant permis de démontrer qu'il est possible de s'affranchir de cette absorption en utilisant une excitation optique cohérente [1]. La forte réponse non linéaire obtenue et l'absence d'absorption peuvent alors être mises à profit pour développer des effets à faible intensité pour le traitement de l'information classique et aller au delà avec des faisceaux d'intensité de plus en plus faible, contenant un nombre réduit de photons, pour le traitement de l'information quantique [2]. De plus, le couplage lumière-matière permet de stocker l'état de la lumière dans un état de la matière, ouvrant une nouvelle voie pour stocker l'information optique classique et aussi pour mémoriser un état quantique.

Les oscillations cohérentes de population (abrévié CPO, de l'anglais Coherent Population Oscillation) et la transparence induite électromagnétiquement (EIT, Electromagnetically Induced Transparency) sont deux effets non-linéaires emblématiques dans ce contexte. Bien que leur principe soit fondamentalement différent, ils présentent un trait commun : tous les deux permettent de créer une fenêtre de transparence autour du maximum de l'absorption.

Les oscillations cohérentes de population ont été utilisées comme méthode de spectroscopie dans les années 70-80 pour mesurer les temps de vie des populations [3, 4]. En excitant une transition atomique avec deux faisceaux cohérents et de fréquence assez proche, la population d'un ensemble atomique à deux niveaux se met à osciller à la fréquence du battement et en phase avec celui-ci. Il en résulte une fine fenêtre de transparence à l'intérieur de la largeur homogène, aussi fine que la largeur naturelle, limite ultime de la transition atomique. Cette transparence est associée à une forte dispersion et à une diminution de la vitesse de propagation des faisceaux résonants. Des vitesses extrêmement lentes ont ainsi pu être démontrées dans les milieux les plus divers [5, 6]. Ce phénomène étant lié à la dynamique des populations il est insensible aux processus déphasants et peut avoir lieu même

à température ambiante. Cette propriété est intéressante pour les applications de mémoire tampon dans les systèmes de communication fibré ou pour les applications de retard en temps réel de signaux radio-fréquence.

La transparence induite électromagnétiquement est obtenue dans un système à trois niveaux et est particulièrement efficace dans les systèmes formés de deux niveaux fondamentaux $|1\rangle$ et $|2\rangle$ et d'un état excité $|3\rangle$ [1, 7]. Un tel système est appelé système en Λ . Lorsqu'il est excité de manière cohérente sur chacun de ses deux bras $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ (sonde) et $|2\rangle \rightarrow |3\rangle$ (couplage), son absorption peut être nulle alors que les deux faisceaux sont en résonance. La transparence induite est un phénomène d'interférence quantique qui annule la susceptibilité linéaire de la sonde mais pas la susceptibilité non-linéaire. A la différence des oscillations cohérentes de population cet effet est très sensible aux processus déphasants les cohérences optiques. Les applications sont nombreuses et peuvent être regroupées en deux "branches", mémoires d'un côté et effets non linéaires de l'autre.

1. La transparence induite électromagnétiquement crée une fenêtre de transparence qui peut être totale dans le profil d'absorption, on peut donc bénéficier de la forte dispersion qui lui est associée et ralentir fortement la propagation de la lumière à résonance. L'exaltation de la dispersion de l'indice de réfraction autour de la fenêtre de transparence induite a été observé dès 1996 dans une vapeur de rubidium [8], ouvrant la voie aux premières expériences de lumière "ultra-lente" dans un condensat de sodium [9] en 1999. Notons que ce ralentissement dépend de l'intensité du faisceau de couplage qui excite le système en Λ . Il est ainsi possible de ralentir la lumière jusqu'à l'arrêter et de transférer l'excitation optique dans un état cohérent d'un ensemble macroscopique de systèmes à deux niveaux, superposition des deux niveaux fondamentaux. En allumant de nouveau le champ de couplage, le faisceau sonde est restauré, avec les mêmes caractéristiques que le champ stocké [10]. Des mémoires basées sur ce principe ont été démontrées sous plusieurs forme : avec un champ pompe stationnaire [11] ou avec des photons uniques [12, 13].

2. La possibilité de bénéficier de non-linéarités fortes liées à la résonance sans pour autant pâtir de l'absorption constitue un atout pour bon nombre d'applications. En effet, si des interférences destructives annulent la susceptibilité linéaire $\chi^{(1)}$, des interférences constructives peuvent avoir lieu pour les susceptibilités d'ordre supérieur et permettent ainsi d'envisager des effets non linéaires "géants" [7, 14, 15]. Parmi les effets qui peuvent être exaltés citons l'indice non linéaire du troisième ordre, l'effet Kerr optique géant, prédit par Schmidt *et al.* [14] qui peut être mis à profit pour réaliser de grands déphasages à faible intensité [16].

Ces deux types d'applications sont particulièrement intéressants dans le cadre de l'information quantique. Que l'information soit portée par un champ cohérent, par un champ comprimé ou par la polarisation d'un photon, ne pas avoir d'absorption est crucial pour ne pas détruire cette information.

Vers la matière condensée

La transposition des propriétés des milieux dilués à la matière condensée est une étape essentielle pour favoriser les applications. Les cristaux dopés aux ions de terre rare sont

des matériaux de choix parce que les terres rares sont connues pour présenter certaines propriétés optiques proches des milieux dilués. Ils ont de plus l'avantage des cristaux : la densité atomique peut être importante et les ions, piégés dans la matrice cristalline, sont figés spatialement, contrairement aux vapeurs atomiques.

Les oscillations cohérentes de population ont été démontrées dans la matière condensée pour la première fois dans les années 1980 dans un cristal dopé aux ions samarium en 1980 [17] puis dans le ruby [18]. Mais ce sont les démonstrations de lumière ralentie en 2003 dans le ruby [6], puis l'alexandrite [5] qui ont suscité un réel engouement pour cet effet. Depuis, des résultats expérimentaux ont été obtenus dans les systèmes les plus variés, des puits quantiques semi-conducteur [19, 20] jusqu'aux protéines de bactéries [21].

Depuis la démonstration de la transparence induite en 1997 [22] dans un cristal d' Y_2SiO_5 dopés aux ions praséodyme, ce système est étudié par plusieurs équipes notamment à Canberra en Australie et à Lund en Suède. Le ralentissement de la lumière à 45 m/s et le stockage d'impulsion laser ont été démontrés [23]. Le stockage a été particulièrement amélioré en utilisant des séquences d'impulsions radiofréquence pour maintenir la cohérence entre les états fondamentaux pendant plus de 1 s [24]. La difficulté du travail avec les ions Pr^{3+} est la longueur d'onde de 609 nm, qui nécessite l'utilisation de laser à colorant. D'autres démonstrations de la transparence induite électromagnétiquement ont été obtenues dans la matière condensée notamment dans les centres NV du diamant [25] et les puits quantiques [26].

Parmi les terres rares, les ions erbium ont particulièrement attiré notre attention pour leur résonance à 1.5 μm . A cette longueur d'onde les pertes des fibres optiques en silice utilisées en télécommunications sont minimales et les sources de lasers commerciales de faible largeur spectrale sont disponibles.

Une clé pour l'obtention des effets non linéaires cohérents du type EIT est l'existence de systèmes à trois niveaux dans lesquels les cohérences sont importantes. L'utilisation de la structure hyperfine de l'ion erbium constitue une option prometteuse. Nous avons donc travaillé avec l'isotope 167 de l'erbium, le seul ayant un spin nucléaire non nul $I = 7/2$ et une structure hyperfine résultant de l'interaction entre ce spin nucléaire et le spin électronique.

Ce travail de thèse s'est concentré sur un cristal d' Y_2SiO_5 dopé aux ions erbium triplement ionisés $^{167}\text{Er}^{3+}$. La matrice de Y_2SiO_5 a été choisie car les spins nucléaires de ses éléments sont soit nuls soit très faibles. Cela limite les interactions entre les ions erbium et le cristal, réduisant d'autant les processus déphasants et permettant à la largeur homogène des transitions optiques de se rapprocher de la limite de la largeur naturelle comme c'est le cas pour les systèmes dilués. Avant ce travail de thèse, les cristaux d' Y_2SiO_5 dopés à l'erbium 167 n'avaient fait l'objet d'aucune publication. Le travail expérimental sur $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ a débuté au sein du groupe PHOTONIQ avec ce travail de thèse. Dans ce cristal, nous avons identifiés plusieurs systèmes à trois niveaux dont les deux niveaux fondamentaux sont séparés de quelques dizaines à quelques centaines de MHz. De tels décalages en fréquence permettent de générer les faisceaux cohérents nécessaires à partir d'un seul laser par des méthodes de modulation, et d'éviter le recours à plusieurs sources asservies.

Organisation du manuscrit

Alors même que les propriétés de l'erbium semblent parfaitement connues tant il est utilisé à actuellement, les détails de sa structure hyperfine dans un site cristallin de basse symétrie étaient inconnus au début de la thèse. Il a donc fallu dans un premier temps caractériser le cristal et trouver les systèmes en Λ dans $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$. Pour décrire le travail réalisé, le manuscrit est organisé en 4 chapitres.

Le **chapitre 2** est une présentation succincte des propriétés des ions de terre rare en matrice cristalline. La structure des niveaux d'énergie ainsi que les contributions aux largeurs optiques des transitions sont passées en revue pour permettre de bien comprendre les spectres du cristal $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$.

Les caractérisations spectroscopiques de $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ que nous avons faites sont présentées dans le **chapitre 3**. Le manque de données existantes concernant les niveaux hyperfins de l'isotope 167 de l'erbium dans cette matrice cristalline tient notamment à la faible symétrie du site de substitution des ions qui rend la structure hyperfine particulièrement complexe. La recherche des systèmes en Λ dans $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ a constitué une partie importante du travail. Les résultats concernant la structure hyperfine du niveau fondamental ont été obtenus par spectroscopie de résonance paramagnétique électronique. Couplés aux expériences de creusement spectral optique, plusieurs systèmes en Λ ont été identifiés puis étudiés pour la transparence induite dans le chapitre 5. Des mesures d'échos de photons ont permis de déterminer la largeur homogène de la transition. La durée de vie des niveaux a été étudiée grâce à la dynamique de relaxation des spectres de creusement spectral. .

Le **chapitre 4** est dédié aux oscillations cohérentes de population, effet qui nous a permis de ralentir la lumière à quelques m/s dans $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$. Quelques rappels sont d'abord faits sur la vitesse de propagation de la lumière dans un milieu résonant. Le concept de lumière ralentie est précisé et détaillé à l'aide de quelques résultats expérimentaux marquants, reprenant différentes méthodes utilisées autres que les oscillations cohérentes de population. Le principe et les propriétés des oscillations cohérentes de population sont ensuite détaillées en fonction du type d'élargissement de la transition optique. Enfin les résultats expérimentaux obtenus dans $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ à basse température sont évoqués : le ralentissement à quelques m/s et la possibilité d'utiliser l'élargissement inhomogène comme variable du système.

Le **chapitre 5** se concentre sur la transparence induite électromagnétiquement. Après avoir rappelé le cadre théorique et la nature de cette transparence, les résultats préliminaires issus des expériences de creusement spectral sont présentés. Dans la riche structure hyperfine de l'erbium 167, deux systèmes en Λ ont été particulièrement scrutés. Le dispositif expérimental nécessaire pour les étudier doit permettre d'avoir deux faisceaux cohérents spatialement et temporellement indépendants. Ce dispositif s'appuie sur une modulation d'amplitude suivie d'un filtrage en fréquence qui permet toute l'accordabilité nécessaire pour exploiter les différents systèmes en Λ . Après l'avoir passé en revue, les résultats de transparence induite électromagnétiquement dans $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ sont présentés ainsi que la modélisation permettant de les comprendre. Cette modélisation est basée sur la

résolution en régime stationnaire des équations de la matrice densité, en prenant en compte le pompage optique, la cohérence entre niveaux fondamentaux et les élargissements inhomogènes des deux fréquences en jeu.

Chapitre 2

Ions de terre rare en matrice cristalline

Ce premier chapitre est une brève introduction aux propriétés des terres rares en matrice cristalline et plus spécifiquement aux ions erbium dans le cristal Y_2SiO_5 .

Dans une première partie, les différentes interactions électroniques sont détaillées pour aboutir au diagramme d'énergie des terres rares en matrice cristalline. La largeur des raies d'absorption et notamment les différentes contributions à la largeur homogène sont ensuite rappelées.

Les spécificités des ions erbium dans la matrice inorganique Y_2SiO_5 sont présentées dans une seconde partie. Les caractéristiques du cristal, les niveaux d'énergie et l'échantillon sont passés en revue ainsi que l'absorption linéaire de l'erbium à 1536 nm. C'est cette transition particulière qui va être étudiée dans toute la suite du manuscrit.

2.1 Quelques généralités

2.1.1 Structure électronique

Les terres rares, ou lanthanides, sont la famille des éléments de la classification périodique dont les numéros atomiques vont de 57 à 71, c'est-à-dire du lanthane à l'ytterbium. Leur structure électronique est de la forme

$$[Xe]4f^n 5d^1 6s^2, \text{ avec } 1 \leq n \leq 13.$$

Les ions de terre rare triplement ionisés (TR^{3+}) perdent les électrons des sous-couches $5d$ et $6s$. Les derniers niveaux d'énergie occupés par les électrons correspondent à la sous-couche $4f$. Les orbitales $4f$ étant plus localisés que les orbitales $5s$ et $5p$, les électrons $4f$ sont protégés des interactions avec l'environnement par les électrons $5s$ et $5p$. Cet écrantage confère aux lanthanides des propriétés spectrales spécifiques.

Tout d'abord les niveaux d'énergie des ions de terre rare en matrice cristalline sont très bien décrits par la spectroscopie atomique. Les effets collectifs dus à la matrice sont simplement traités comme une perturbation. Cette propriété permet de connaître approximativement les niveaux des ions TR^{3+} quelle que soit la matrice utilisée. Le diagramme de niveaux établi par Carnall *et al.* [27] (reporté sur la figure 2.1) pour tous les ions TR^{3+} dans la matrice LaF_3 en est une illustration.

Ensuite les durées de vie des populations et des cohérences atomiques sont grandes ce qui conduit à des raies d'absorption particulièrement fines pour des dopants dans la matière condensée [28].

Ces deux qualités rapprochent les ions TR^{3+} dopés dans des cristaux des systèmes atomiques. Cela en fait de bons candidats pour la transposition des propriétés des milieux dilués dans la matière condensée. A l'instar des travaux présentés dans ce manuscrit, les cristaux dopés aux TR^{3+} sont aujourd'hui étudiés par plusieurs équipes pour des applications en optique cohérente et quantique.

2.1.2 Niveaux d'énergie

Les niveaux d'énergie des ions TR^{3+} en matrice cristalline sont décrits par l'hamiltonien généralisé :

$$H = H_0 + H_{el} + H_{SO} + H_{CC} + [H_{hf} + H_Q]. \quad (2.1)$$

H_0 se rapporte à l'énergie cinétique des électrons et à l'énergie potentielle de ces électrons dans le potentiel coulombien du noyau. H_0 peut se développer sous la forme

$$H_0 = - \sum_i^n \left(\frac{\hbar^2}{2m_e} \nabla_i^2 + \frac{Ze^2}{r_i^2} \right)$$

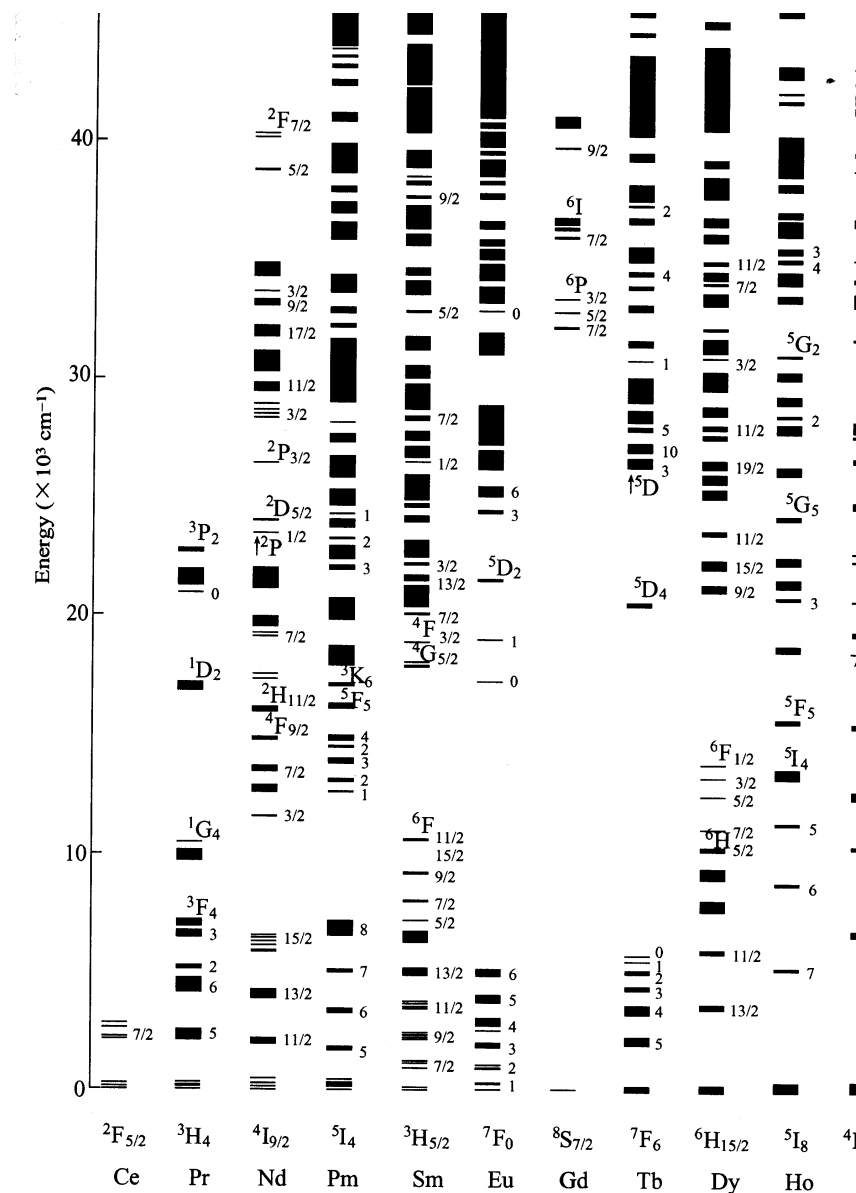


FIG. 2.1 – Niveaux d'énergie ions TR^{3+} : LaF_3 basé sur les calculs des hamiltoniens de l'ion libre et du champ cristallin [27], copié de [29] p 25.

Le second terme H_{el} correspond aux interactions coulombiennes répulsives entre électrons

$$H_{el} = \sum_{i < j}^n \frac{e^2}{r_{ij}}$$

H_{SO} ¹ est l'hamiltonien de couplage spin-orbite et H_{CC} l'hamiltonien de champ cristallin. H_{hf} et H_Q sont des interactions liées au spin nucléaire de l'ion TR^{3+} et dépendent donc de l'ion et de l'isotope considéré. L'interaction hyperfine H_{hf} entre les spins nucléaire et électronique de l'ion TR^{3+} et l'interaction quadrupolaire H_Q entre le gradient de champ électrique au niveau du noyau et le moment quadrupolaire de celui-ci sont beaucoup plus faibles que les précédentes. Leur forme sera détaillée au chapitre 2 pour l'isotope 167 de l'erbium dans la matrice Y_2SiO_5 .

Ion libre

Dans le cadre de l'approximation du champ central, l'hamiltonien $H_0 + H_{el}$ est réécrit sous la forme $H'_0 + V$.

$$H'_0 = - \sum_i^n \left(\frac{\hbar^2}{2m_e} \nabla_i^2 + U(r_i) \right)$$

correspond au potentiel du noyau additionné du potentiel moyen créé par les autres électrons $U(r_i)$.

$$U(r_i) = - \sum_i \frac{Ze^2}{r_i^2} + \left\langle \sum_{i < j} \frac{e^2}{r_{ij}} \right\rangle.$$

L'interaction électrostatique entre électrons, V , est traitée comme une perturbation de H'_0 .

$$V = \sum_{i < j} \frac{e^2}{r_{ij}} - \left\langle \sum_{i < j} \frac{e^2}{r_{ij}} \right\rangle.$$

La résolution de l'hamiltonien de champ central amène à utiliser les nombres quantiques n, l, m_l de l'électron. Les électrons de la couche $4f$ correspondent à $n = 4$ et $l = 3$, $|m_l| \leq l$. La prise en compte des interactions électrostatiques V entre électrons aboutit à l'introduction des nombres quantiques L et S , attachés au moment orbital total $\mathbf{L} = \sum \mathbf{l}_i$ et au moment de spin total $\mathbf{S} = \sum \mathbf{s}_i$. V conduit à une première levée de dégénérescence des niveaux $4f$ en sous-niveaux ^{2S+1}L , séparés de $\sim 10\,000 \text{ cm}^{-1} / 3 \cdot 10^{14} \text{ Hz}$.

Pour les ions de terre rare, le couplage spin-orbite est considéré comme faible, on parle de couplage $L-S$ ou couplage Russel-Saunders : $H_{SO} \ll H_{el}$. Le moment angulaire total $\mathbf{J} = \mathbf{L} + \mathbf{S}$ commute avec l'hamiltonien $H'_0 + V + H_{SO}$; J est donc un bon nombre quantique pour décrire le système. La levée de dégénérescence due au couplage spin-orbite conduit aux niveaux $^{2S+1}L_J$, dégénérés en M_J . Les règles de Hund permettent de déterminer le

¹ $H_{SO} = \sum_i^n \xi(r_i) \mathbf{l}_i \mathbf{s}_i$, avec r_i la distance au noyau, $\mathbf{l}_i$ le moment orbital $\mathbf{s}_i$ le spin du i ème électron $4f$ et ξ la constante de couplage spin-orbite.

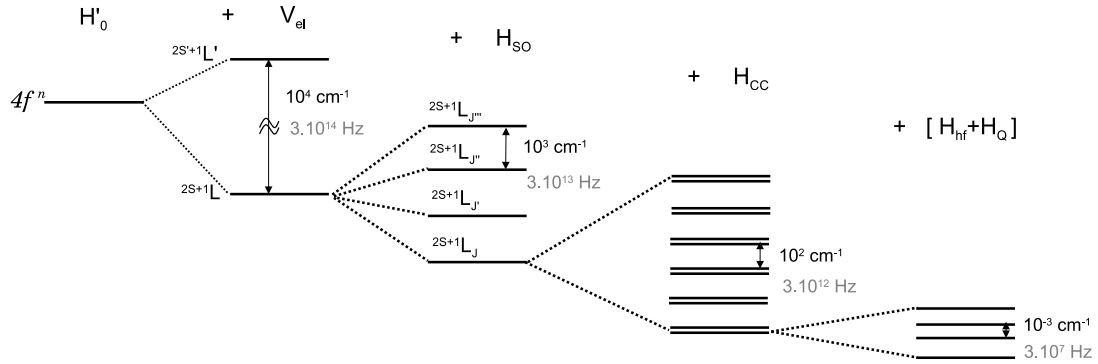


FIG. 2.2 – Niveaux d'énergie des terres rares, levées de dégénérescence et différentes contributions des hamiltoniens de l'équation (2.1).

niveau de plus basse énergie [30]. Pour les ions erbium, le niveau fondamental est $^4I_{15/2}$, correspondant à $L=6$, $S=3/2$, $J=15/2$ comme on peut le voir sur le diagramme 2.1.

A ce stade, les niveaux de l'ion libre sont des états purs $^{2S+1}L_J$. Un développement plus avancé des interactions entre les électrons $4f$ permet d'affiner ce modèle, conduisant à l'introduction de 20 paramètres ajustables aux spectres expérimentaux. Ce développement sort du cadre de ce travail, le lecteur intéressé peut se reporter aux références [29, 31] pour plus de détails. Malgré le mélange entre termes $^{2S+1}L_J$ que cela induit, celui-ci reste faible et les niveaux de l'ion libre sont toujours appelés $^{2S+1}L_J$.

Champ cristallin

Dans une matrice cristalline, l'ion TR^{3+} voit un champ électrique statique dû aux ions formant le cristal. L'hamiltonien H_{CC} de ce champ cristallin vu par l'ion dans son site de substitution est développé comme une somme d'harmoniques sphériques, $C_q^{(k)}(i)$:

$$H_{CC} = \sum_{i,k,q} B_q^k C_q^{(k)}(i), \quad (2.2)$$

avec i , l'indice de sommation sur les électrons $4f$, $k = 2, 4, 6$ pour les ions TR^{3+} et $|q| \leq k$. Les coefficients B_q^k sont appelés paramètres du champ cristallin ou coefficients de Judd. Comme on l'a précisé plus haut, H_{CC} est considéré comme une perturbation de $H_0 + H_{el} + H_{SO}$. Cela conduit à une levée de la dégénérescence en M_J par effet Stark qui dépend de la symétrie locale du site de substitution ainsi du nombre d'électrons de l'ion TR^{3+} .

Pour des raisons d'invariance de l'hamiltonien $H_0 + H_{el} + H_{SO} + H_{CC}$ par renversement du temps, la levée de dégénérescence due au champ cristallin ne peut pas être complète pour des ions TR^{3+} ayant un nombre impair d'électrons $4f$. La dégénérescence restante, dite de Kramers, conduit à la formation de $J + 1/2$ *doublets de Kramers*. Les ions de terre rare ayant un nombre impair d'électrons $4f$ (Nd^{3+} , Sm^{3+} , Gd^{3+} , Dy^{3+} , Er^{3+} , Yb^{3+}), présentent cette dégénérescence et sont appelés *ions Kramers*. Pour les ions TR^{3+} ayant un

nombre pair d'électrons $4f$, appelés *ions non-Kramers* (Pr^{3+} , Pm^{3+} , Eu^{3+} , Tb^{3+} , Ho^{3+} , Tm^{3+}), la levée de dégénérescence due au champ cristallin peut en revanche être totale. Notons que pour des ions Kramers présentant une structure hyperfine, la dégénérescence de Kramers peut être levée puisque H_{hf} n'est pas invariant par renversement du temps.

Les différentes levées de dégénérescences évoquées ici sont représentées sur la figure 2.2. Les ordres de grandeur des éclatements en énergie (cm^{-1} et Hz) sont précisés pour chaque interaction [29, 32, 33]. L'éclatement en énergie dû aux interactions hyperfine et quadrupolaire est 5 ordres de grandeur inférieur à celui dû au champ cristallin et n'est pas toujours résolu optiquement. Ces niveaux hyperfins sont cependant intéressants pour la mise en évidence de système en Λ faciles à exciter de manière cohérentes (voir par exemple [22] pour les ions Pr^{3+} ou [34, 35] pour les ions Tm^{3+}).

2.1.3 Largeur de raie

Comme nous l'avons dit en introduction les spectres des TR^{3+} dans les cristaux inorganiques présentent des raies très fines. Deux types d'élargissement sont à l'oeuvre : l'élargissement homogène qui est identique pour tous les ions du cristal et l'élargissement inhomogène qui dépend de l'environnement local/direct de chaque ion.

Largeur homogène

L'élargissement homogène provient de mécanismes dynamiques qui perturbent la fréquence de résonance des ions ou la phase de leur dipôle. La largeur homogène Γ_h est définie comme l'inverse du temps de vie caractéristique du dipôle T_2 , appelé temps de déphasage ou temps de vie de la cohérence optique² :

$$\Gamma_h = 1/\pi T_2. \quad (2.3)$$

Dans le cas d'ions de terre rare en matrice cristalline, la largeur homogène Γ_h s'écrit comme la somme de plusieurs contributions :

$$\Gamma_h = \Gamma_{pop} + \Gamma_{ion-ion} + \Gamma_{phonon} + \Gamma_{ion-matrice} + \Gamma_{ISD} \quad (2.4)$$

$\Gamma_{pop} = \frac{1}{2\pi T_1}$ est la largeur naturelle de la transition optique, liée au processus d'émission stimulée et au temps de vie T_1 des populations du niveau excité. Γ_{pop} est la borne inférieure de la largeur homogène pour un ion complètement isolé et qui conduit à la relation fixant une borne supérieure au temps de déphasage T_2

$$T_2 \leq 2T_1.$$

²parfois résumé à 'temps de cohérence'.

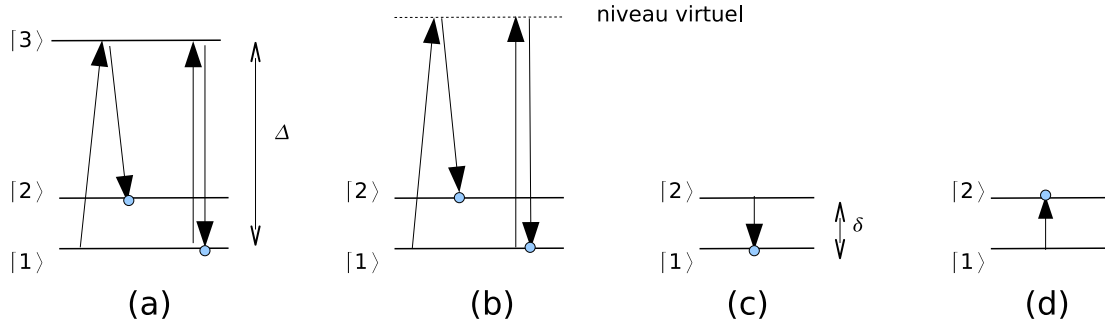


FIG. 2.3 – Différents processus faisant intervenir des phonons et réduisant la durée de vie de la cohérence optique : (a) Orbach ou Raman résonant (b) Raman (c) émission directe (d) absorption directe .

Ion-ion $\Gamma_{ion-ion}$ reflète le fait que la fréquence de transition des ions TR^{3+} dépend de l'état des autres ions. Les basculements de spin électronique des autres TR^{3+} dans leur état fondamental changent le champ magnétique local et induisent un changement de la fréquence de chaque ion. Ces basculements de spins peuvent être assisté par phonon, on parle de “spin flip”, ou avoir lieu sans échange d'énergie entre deux ions proches, on parle alors de spin “flip-flop”. La contribution des spins flip varie en $1/r^3$, celle des spins flip flop en $1/r^6$, où r est la distance entre les ions TR^{3+} . Un faible taux de dopage augmente la distance moyenne entre ions et donc minimise $\Gamma_{ion-ion}$. L'utilisation d'un champ magnétique externe permet également de réduire les basculements de spin [36].

Phonon Le terme Γ_{phonon} regroupe les processus déphasant dus aux vibrations du réseau cristallin. Le travail à des températures cryogéniques (< 15 K) minimise les contributions impliquant un grand nombre de phonons.

Les processus à deux phonons résonant (Orbach) et non résonant (Raman) sont décrits sur les figures 2.3.a et 2.3.b respectivement. L'évolution de la contribution des processus Raman avec la température est en $(T/T_D)^9$ pour les ions Kramers et en $(T/T_D)^7$ pour les ions non Kramers, avec T_D la température de Debye du cristal (plusieurs centaines de K). Elle est négligeable à basse température. Cette évolution est en $e^{-\Delta/kT}$ pour les processus Orbach, où Δ est la différence d'énergie avec le niveau de transit [3].

Les mécanismes directs à un phonon, émission (figure 2.3.c) et absorption (figure 2.3.d), varient de manière proportionnelle à la température [37].

Sachant qu'à $T=1$ K, l'énergie thermique kT correspond à une énergie de 21 GHz ou 0.7 cm^{-1} , les processus phononiques résonants entre niveaux Stark séparés de quelques dizaines de cm^{-1} ont une faible contribution à l'élargissement homogène. Cependant ces processus ne devraient pas être négligeables entre niveaux hyperfins séparés de quelques centaines de MHz seulement. A ma connaissance, aucune étude de ce type de processus déphasants sans champ magnétique appliqué n'a été publiée.

Ion–matrice $\Gamma_{ion-matrice}$ reflète les basculements de spins dus au couplage entre spin nucléaire du ligand et spin électronique de l’ion TR^{3+} . Le choix de la matrice cristalline est crucial pour réduire cette contribution. A ce titre Y_2SiO_5 est donc un hôte de choix pour les terres rares, dans lequel des temps de cohérence très longs ont pu être démontrés à basse température : 0.3 ms pour les ions praséodyme Pr^{3+} [38], 1.5 ms pour les ions europium Eu^{3+} [39] (sans champ magnétique appliqué dans les deux cas). Les moments magnétiques des éléments de Y_2SiO_5 sont soit faibles $-0.137\mu_B$ pour ^{89}Y ($I=1/2$), soit peu représentés : l’isotope ^{29}Si ($I=1/2$, $-0.554\mu_B$) a une abondance naturelle 4.6%, et les isotopes magnétiques de l’oxygène représentent 0.04 % des atomes et donc 99.96 % des oxygènes ont un moment magnétique nul.

Diffusion spectrale D’une manière générale, le terme de diffusion spectrale correspond à la variation de la fréquence de résonance des ions dans le temps. Ces changements de fréquences sont dûs aux variations locales des champs électriques et magnétiques vus par les ions et peuvent avoir diverses origines, comme les basculements des spins électroniques ou nucléaires [40]. La diffusion spectrale instantannée Γ_{ISD} est liée à l’excitation optique elle-même. En effet lorsqu’un ion est excité par une onde électromagnétique, son moment électronique est changé ce qui induit un décalage en fréquence des ions voisins qui élargit la raie homogène. Travailler à faible intensité optique et avec des basses concentrations permet de réduire ce phénomène [41].

Ions Kramers et non–Kramers Étant paramagnétiques les ions Kramers ont un moment magnétique permanent et sont donc plus sensibles aux interactions avec l’environnement. Il présentent donc en général des temps de cohérence plus courts que les ions non–Kramers [28]. Un temps de cohérence record de 4.32 ms a cependant été mesuré dans un cristal d’ Y_2SiO_5 dopé à l’erbium naturel à 0.001% avec un champ magnétique externe de 7 T dont l’orientation a été choisie minutieusement par rapport aux axes propres du cristal. Le champ magnétique permet de lever la dégénérescence des doublets de Kramers par effet Zeeman. Pour 7 T, l’éclatement entre ces niveaux devient grande devant l’énergie thermique kT , ce qui réduit les contributions des phonons. De plus le champ magnétique aligne les spins et réduit leurs fluctuations [36].

Largeur inhomogène

A basse température, l’élargissement homogène des ions TR^{3+} varie de la centaine de Hz jusqu’à la centaine de kHz [28, 33]. Cependant les spectres d’absorption linéaire présentent des largeurs plus grandes que la largeur homogène : c’est l’élargissement inhomogène. Du fait des imperfections de la matrice cristalline – dislocations, impuretés, contraintes– les champs électrique et magnétique locaux ne sont pas parfaitement les mêmes pour tous les ions TR^{3+} . Chaque ion a donc une fréquence de résonance qui dépend de son environnement propre. La distribution qui en résulte est généralement gaussienne.

Ce phénomène est illustré sur la figure 2.4. La largeur inhomogène est formée de différentes classes d’ions qui “voient” un champ cristallin légèrement différent les uns

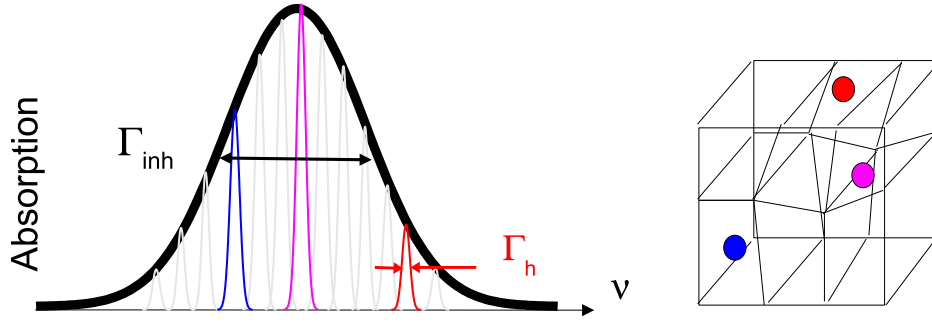


FIG. 2.4 – Élargissement inhomogène et homogène .

des autres. Les techniques de spectroscopie non linéaires, dont certaines seront détaillées dans ce manuscrit, permettent l'investigation à l'intérieur de l'élargissement inhomogène.

Pour les Er^{3+} dans les matrices cristallines les largeurs inhomogènes vont de quelques centaines de MHz à plusieurs dizaines de GHz.

2.2 $Er^{3+} : Y_2SiO_5$

Dans le monde des télécommunications optiques, l'ion erbium occupe une place de premier rang grâce à sa transition entre le niveau fondamental $^4I_{15/2}$ et le premier état excité $^4I_{13/2}$ à $1.5 \mu m$ correspondant à la fenêtre de transparence de la silice. Cela confère un avantage aux ions erbium par rapport aux autres ions de terre rare : toute la technologie des lasers, des amplificateurs optiques, des modulateurs et détecteurs rapides, souvent développée dans des composants fibrés est disponible pour le travail expérimental.

Cela dit l'ion erbium est un ion Kramers, paramagnétique. A ce titre il est d'avantage sensible aux interactions avec ses voisins. L'utilisation d'une matrice cristalline comme Y_2SiO_5 dont les éléments possèdent de faibles moments nucléaires est importante pour bénéficier du long temps de vie (~ 10 ms) du niveau excité $^4I_{13/2}$.

Le travail décrit dans ce manuscrit a été effectué avec un cristal d' Y_2SiO_5 dont la croissance a été faite par la méthode de Czochralski, dopé avec l'isotope 167 de l'erbium exclusivement. Le taux de dopage est de 0.005% (50 ppm) ce qui correspond à une densité d'ions erbium dans le site 1 de l'ordre de $4,6 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$. Ce cristal est fabriqué par la société *Scientific Materials*³, Montana USA. L'isotope 167 de l'erbium a été choisi car il est le seul à présenter une structure hyperfine dans laquelle, comme nous l'avons démontré, il est possible de trouver des systèmes en Λ exploitables pour la transparence induite électromagnétiquement.

³<http://www.scientificmaterials.com/>

Nous résumons dans ce qui suit les propriétés essentielles de $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$: la géométrie de la matrice et du site de substitution des ions erbiums, les niveaux d'énergie et la structure hyperfine attendue. Les spectres d'absorption linéaire selon les différents axes optiques sont également présentés, ce qui nous permettra d'évoquer les différentes largeurs de la transition étudiée.

2.2.1 Cristal Y_2SiO_5

L'orthosilicate d'yttrium Y_2SiO_5 (YSO) cristallise en une maille monoclinique dans le groupe d'espace $C2/c$. Les paramètres de maille sont $a = 1.0419$ nm, $b = 0.6726$ nm et $c = 1.2495$ nm et un angle entre les axes a et c de $\beta = 102.65^\circ$. La maille monoclinique implique que Y_2SiO_5 est un cristal biaxe, dont les axes principaux ne coïncident pas avec les axes cristallographiques. Par symétrie l'axe b est un des axes optiques, mais les deux autres axes principaux sont situés dans le plan a - c [42, 43]. D_1 est situé à 79° de l'axe a et 24° de l'axe c , D_2 est perpendiculaire à D_1 et b .

Les ions erbium se substituent aux ions yttrium qui occupent deux sites cristallographiques différents, tous les deux de basse symétrie C_1 . Le site 1 est entouré de 7 atomes d'oxygène (6 proches et un plus éloigné) alors que le site 2 est entouré de 6 atomes d'oxygène.

Les cristaux utilisés ont été orientés par diffraction de rayons X. Les axes de tailles correspondent aux axes optiques D_1 , D_2 , b . Nous disposons de cristaux dopés à l'erbium 167 de $5\text{ mm} \times 6\text{ mm} \times 1\text{ mm}$, $5\text{ mm} \times 6\text{ mm} \times 3\text{ mm}$ et de deux cristaux de $1\text{ mm} \times 1\text{ mm} \times 1\text{ mm}$ l'un dopé à l'erbium naturel et l'autre dopé à l'erbium 167, pour les expériences de résonance paramagnétique électronique. Dans ce cas, 3 des 6 faces du cube sont polies afin de repérer les axes.

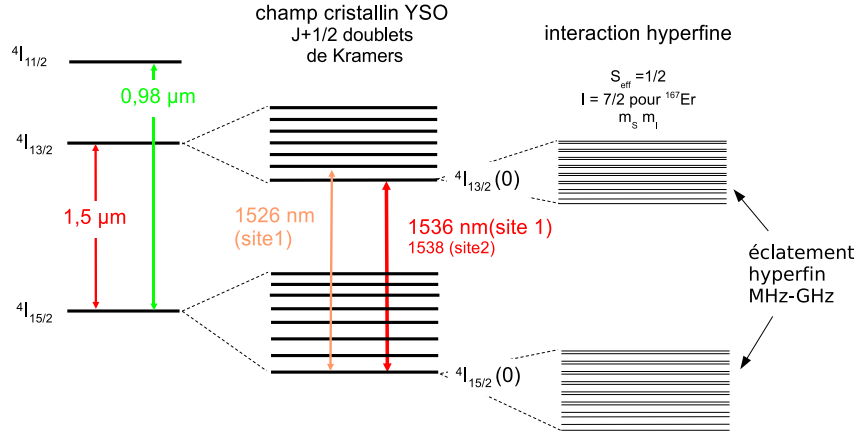
2.2.2 Détail des niveaux d'énergie

Les niveaux $^{2S+1}L_J$ de l'erbium dans YSO ont été déterminés par spectroscopie optique [44]. Le champ cristallin induit une levée de dégénérescence partielle en $J + 1/2$ doublets de Kramers : cela donne pour l'erbium 8 doublets dégénérés en $\pm M_J$ pour $^4\text{I}_{15/2}$, et 7 doublets pour $^4\text{I}_{13/2}$. La position de ces doublets a été étudiée avec des spectres d'absorption et de fluorescence sélective pour chacun des deux sites cristallographiques par C. Li *et al.* en 1992 [45] et T. Böttger dans le cadre de sa thèse en 2003 [36].

Nous avons travaillé avec les ions du site 1 pour lequel la transition optique entre les doublets de Kramers fondamentaux $^4\text{I}_{15/2}(0) \rightarrow ^4\text{I}_{13/2}(0)^4$ est à 1536.4 nm^5 . La même transition optique pour le site 2 est à 1538 nm , et ne peut pas être confondue avec la transition du site 1.

Les niveaux d'énergie de l'erbium 167 sont représentés sur la figure 2.5.

⁴Egalement noté par T. Böttger $^4\text{I}_{15/2}(0) \leftrightarrow ^4\text{I}_{15/2} : Z_1, ^4\text{I}_{13/2}(0) \leftrightarrow ^4\text{I}_{13/2} : Y_1$
⁵pour mémoire $\lambda = 1536.4\text{ nm} \longleftrightarrow \nu = 195,130\text{ THz} \longleftrightarrow \sigma = 6508.7\text{ cm}^{-1}$.
et autour de 1536.4 nm , $\Delta\lambda = 1\text{ nm} \longleftrightarrow \Delta\nu = 127\text{ GHz} \longleftrightarrow \delta\sigma = 4.2\text{ cm}^{-1}$

FIG. 2.5 – Niveaux d'énergie de l'erbium 167 dopé dans Y_2SiO_5 .

Structure hyperfine

L'erbium possède 5 isotopes pairs, ^{162}Er , ^{164}Er , ^{166}Er , ^{168}Er et ^{170}Er , et un isotope impair ^{167}Er . Parmi tous ces isotopes, seul l'isotope 167, impair, possède un spin nucléaire I non nul qui vaut $I=7/2$. Son abondance naturelle est de $\sim 23\%$.

L'interaction hyperfine reflète le couplage entre le spin nucléaire I et le moment total du doublet de Kramers. Elle aboutit à une levée de dégénérescence du doublet et un éclatement en plusieurs niveaux hyperfins. En l'absence de tout champ magnétique extérieur, cette structure hyperfine permet de disposer de niveaux atomiques faiblement espacés en énergie. Il est alors possible de trouver des systèmes à trois niveaux en Λ qui peuvent être excités de manière cohérente par deux faisceaux issus d'un seul laser en décalant sa fréquence à l'aide de dispositifs de modulation (typiquement modulateur acousto-optique).

Regardons de plus près la structure hyperfine de $^{167}Er^{3+} : Y_2SiO_5$. À chaque doublet de Kramers, pour lequel la dégénérescence est en $\pm M_J$, on associe un spin effectif S_{eff} valant $1/2$. Compte tenu de la très faible symétrie du site de substitution des ions erbium la levée de dégénérescence attendue est totale, c'est-à-dire que le doublet de Kramers doit s'éclater en $(2I+1)(2S_{eff}+1) = 16$ niveaux hyperfins. Ces 16 niveaux apparaissent en principe pour tous les doublets de Kramers de chaque multiplet $^{2S+1}I_J$, tant que l'éclatement hyperfin est supérieur à la largeur homogène de la transition. Ils sont cependant généralement masqués par l'élargissement inhomogène.

Grâce à cette structure hyperfine, nous disposons donc de nombreux systèmes en Λ potentiels pour la mise en évidence de la transparence induite électromagnétiquement. Cependant, cette structure hyperfine est plus ou moins masquée dans l'élargissement inhomogène comme le montrent les spectres d'absorption (figure 2.6) que nous allons détailler maintenant.

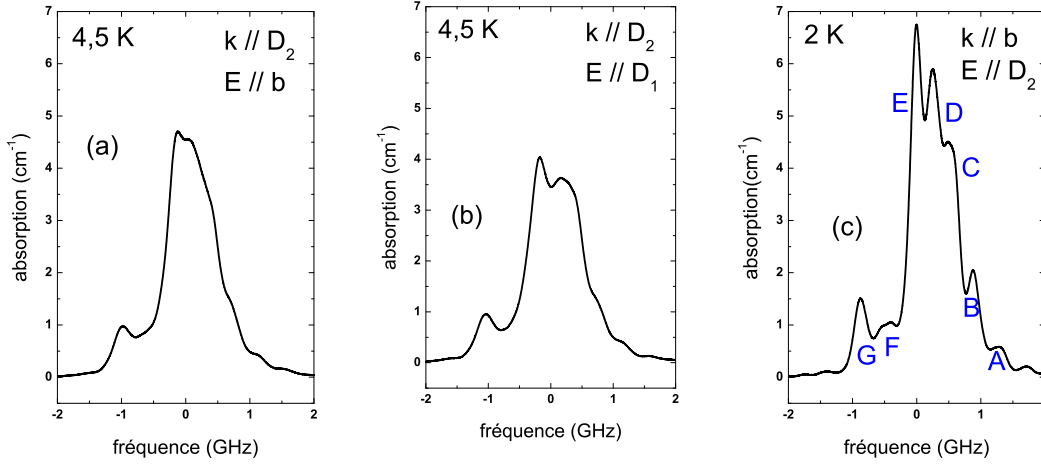


FIG. 2.6 – Spectres d'absorption à basse température dans $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ pour différentes directions de polarisation. La différence d'allure des spectres obtenus à 4.5 K et à 2 K ne tient pas à la température mais au dispositif expérimental utilisé, les raies A à G se retrouvant dans toutes les directions de propagation et de polarisation.

2.2.3 Spectres linéaires

La figure 2.6 représente les spectres d'absorption linéaire à basse température autour de 1536.4 nm de l'erbium 167 dans Y_2SiO_5 pour différentes directions du vecteur d'onde ($\vec{k}$) et de la polarisation linéaire du champ optique. Les puissances utilisées sont de l'ordre du μW . On remarque que le maximum de l'absorption n'est pas le même selon les différentes directions de polarisation du champ excitateur $\vec{E}$: 4.5 cm^{-1} , 4 cm^{-1} , 6.5 cm^{-1} pour $\vec{E}$ parallèle à b , D_1 et D_2 respectivement. Cette différence est due à l'anisotropie de l'élément de matrice dipolaire et reflète la faible symétrie du site de substitution de l'erbium. Elle a déjà été observée pour l'erbium naturel [46]. Une absorption maximale de 6.5 cm^{-1} est obtenue pour un champ se propageant suivant l'axe b polarisé linéairement et parallèlement à l'axe D_2 . C'est dans cette configuration que nous travaillerons toujours.

La largeur des spectres est de quelques GHz et ils présentent une modulation révélant la structure hyperfine. Cette affirmation trouve sa démonstration dans des expériences et calculs qui sont présentés ultérieurement. Comme on peut le voir sur la figure 2.7.a représentant un spectre en échelle logarithmique, l'éclatement hyperfin total est vraisemblablement très large, jusqu'à 7 GHz. La structure hyperfine n'est cependant et malheureusement pas résolue. Les lettres A à G ont été attribuées arbitrairement aux raies les plus intenses. Cette notation sera utilisée par la suite, notamment pour les spectres de creusement spectral.

La figure 2.7.b représente les spectres d'absorption de l'erbium naturel et de l'erbium 167 sur la même figure. Pour l'isotope 167 l'élargissement inhomogène semble être plus faible, inférieur au 0.5 GHz de l'erbium naturel (là encore les expériences confirment cette

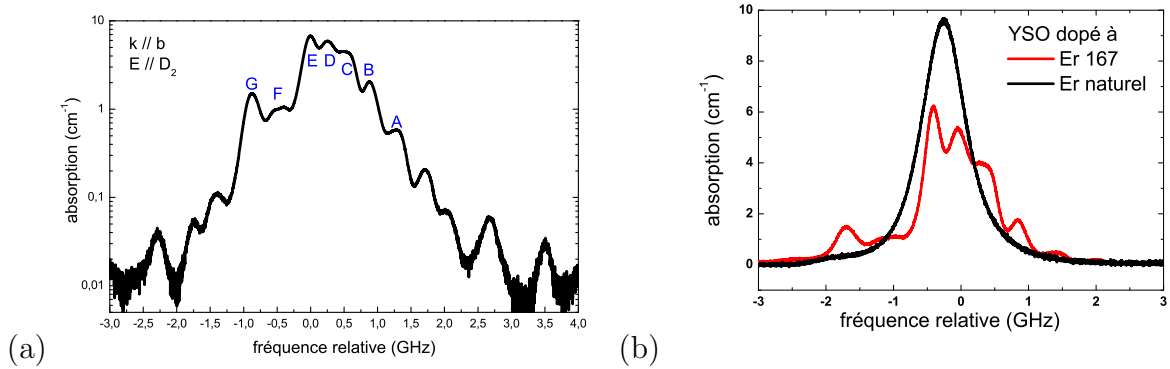


FIG. 2.7 – (a) Spectre d’absorption en échelle logarithmique de l’erbium 167 révélant une structure hyperfine de plusieurs GHz. (b) Spectres d’absorption de Er :YSO, dopé avec de l’erbium naturel et avec l’isotope 167 exclusivement.

affirmation)

Dans la littérature la largeur homogène de l’erbium (naturel) dans Y_2SiO_5 est de l’ordre de la centaine de kHz [47, 36, 48]. Une largeur homogène de 212 kHz a été mesuré dans la référence [48] à 1.7 K dans un cristal dopé à 0.005% à l’erbium naturel. En appliquant un champ magnétique de 1.3 T, la largeur homogène est réduite à 8 kHz.

Le temps de vie T_1 des populations dans l’état excité est de l’ordre de la dizaine de milliseconde quelle que soit la matrice utilisée. (C’est là encore une propriété liée à l’écrantage des électrons $4f$.) La largeur naturelle de la transition $^4\text{I}_{15/2} \rightarrow ^4\text{I}_{13/2}$ est de l’ordre de la dizaine de Hertz.

Comme nous l’avons déjà précisé, aucune étude n’a été publiée auparavant sur les propriétés optiques de l’isotope 167 de l’erbium dans Y_2SiO_5 . Dans ce travail de thèse, le temps de déphasage T_2 et la largeur homogène Γ_h d’une part et le temps de vie des populations T_1 et la largeur naturelle Γ_{nat} d’autre part ont été mesurés et feront l’objet du paragraphe 3.2.

2.3 Quelques aspects expérimentaux

2.3.1 Laser

Pour caractériser le cristal et manipuler d’une manière cohérente les états hyperfins de l’erbium 167, une source laser adéquate est nécessaire. Sa largeur de raie d’émission et sa gigue en fréquence doivent être inférieures à la largeur homogène des transitions optiques.

Nous avons travaillé avec un laser commercial (continu) à fibre dopée erbium “*Koheras adjustik*” de type “distributed feedback” (DFB) dont la largeur de raie est inférieure au kHz selon le constructeur. Sa gigue en fréquence est de l’ordre de la dizaine de kHz sur une

échelle de temps de l'ordre de la milliseconde.

La longueur d'onde d'émission du laser *Koheras* est centrée autour de 1536.4 nm dans le vide (1536.1 nm dans l'air) pour pouvoir exciter la transition entre les deux doublets de Kramers $^4I_{15/2}(0)$ et $^4I_{13/2}(0)$. L'accordabilité de cette source est obtenue en contrôlant la température de la fibre autour de 35°C et la longueur de la fibre via une cale piézo-électrique. L'accord en température est de 0.3 nm (38 GHz) et permet de se positionner précisément dans l'absorption de l'erbium dans Y_2SiO_5 . Le contrôle de la cale piézo-électrique par une tension allant de 0 V à 90 V permet une accordabilité "rapide" supplémentaire de 0.3 nm. Une tension triangulaire amplifiée est appliquée à la cale pour réaliser les spectres en fréquence comme ceux des figures 2.6. Les vitesses de balayage utilisées sont de l'ordre de 100 MHz/ms.

La puissance maximale de sortie du laser est de 150 mW. Une fuite est disponible et est envoyée vers un étalon Fabry Péroth de 300 MHz d'intervalle spectral libre pour l'étalonnage en fréquence de la source.

2.3.2 Cryogénie

Pour bénéficier des grands temps de cohérence des terres rares, il est impératif de travailler à basse température de manière à réduire la largeur homogène de la transition. Au cours de ce travail de thèse 3 cryostats ont été successivement utilisés.

Un cryostat à flux d'hélium, dans lequel l'échantillon est placé au dessus du point de vaporisation de l'hélium nous a permis de faire des expériences préliminaires, notamment les spectres linéaires à 4,5 K. Nous avons ensuite emprunté un cryostat à bain d'hélium à Jacqueline Bloch (LPN, groupe Goss du LPN), nous permettant d'obtenir des résultats à $T < 4$ K qui nous ont incités à investir dans un cryostat *Janis SVT 400*, schématisé sur la figure 2.8.

Ce système commercial permet de travailler sous flux d'hélium gazeux (~ 4 K) ou dans l'hélium superfluide (~ 2 K) en appliquant une dépression de 30 mbar à 50 mbar). Une thermistance placée en bas de la colonne où se trouve l'échantillon et le système d'asservissement du courant la traversant (*Lakeshore 311*) permettent également de travailler à des températures différentes.

La température est mesurée en deux points au niveau du capillaire amenant l'hélium et de l'échantillon par des diodes en silicium (*DT670*). La température de travail mesurée lors des expériences présentées dans ce manuscrit est de **2 K**, sauf indication contraire. L'accès optique au cristal se fait grâce à deux couples de fenêtres optique de quartz (interne) et de verre (externe). La transmission totale des fenêtres T_f , T_{quartz} et des faces du cristal T_{YSO} hors résonance est de

$$T_f^4 T_{quartz}^4 T_{YSO}^2 = 78\%$$

Par rapport à la puissance mesurée avant le cryostat P_{in} , la puissance vue par les ions est de $P = P_{in} T_f^2 T_{quartz}^2 T_{YSO} = 0.88 P_{in}$.

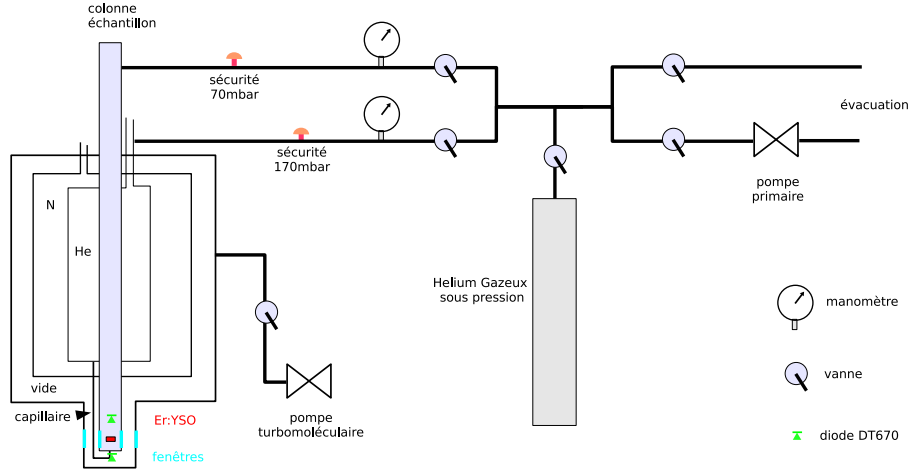


FIG. 2.8 – Schéma du cryostat à bain d'hélium utilisé pour les expériences d'optique de ralentissement, de spectroscopie et de transparence induite. He : réservoir d'hélium ; N : réservoir d'azote ; DT670 : diode silicium pour la mesure de la température.

2.4 A retenir

Les points essentiels des caractéristiques des ions $^{167}\text{Er}^{3+}$ dans Y_2SiO_5 sont résumés ici :

- Les ions erbium présentent l'avantage d'avoir une transition optique entre les niveaux $^4\text{I}_{15/2}$ et $^4\text{I}_{13/2}$ à $1.5\ \mu\text{m}$ ce qui permet d'utiliser les lasers, amplificateurs, modulateurs, détecteurs rapides commerciaux. Nous travaillons avec la transition à $1536.4\ \text{nm}$ entre les doublets de Kramers de plus basse énergie dans le fondamental et l'excité $^4\text{I}_{15/2}(0) \rightarrow ^4\text{I}_{13/2}(0)$.
- L'isotope 167 de l'erbium a été choisi pour sa structure hyperfine, dans laquelle il est possible de trouver de nombreux systèmes en Λ . La levée de dégénérescence due à l'interaction hyperfine dans un site cristallographique de basse symétrie est a priori totale. 16 niveaux hyperfins dans le fondamental et dans l'excité sont attendus.
- Le temps de vie T_1 des populations dans l'état excité $^4\text{I}_{13/2}$ est de l'ordre de 10 ms. Le temps de déphasage dans Y_2SiO_5 sans champ magnétique est de l'ordre de la μs pour l'erbium naturel. Le choix du cristal Y_2SiO_5 permet d'obtenir des temps de déphasage très longs, notamment parce que les éléments de la matrice ont une interaction magnétique faible avec l'ion dopant.
- Au point de vue expérimental, un laser fibré commercial de grande finesse spectrale est utilisé pour exciter les ions erbium. Le cristal est refroidi, généralement à 2 K, dans un cryostat à bain d'hélium.

Bien que le cristal $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ ait été étudié comme milieu laser [45, 49, 50], pour le traitement de signaux RF [51] et la stabilisation de fréquence laser [52], sa caractérisation n'en est qu'à ses débuts. La structure hyperfine des ions $^{167}\text{Er}^{3+}$ est complètement inconnue

dans cette matrice. Par ailleurs, les temps de vie des populations T_1 et de la cohérence optique T_2 n'ont jamais été explicitement mesurés pour l'isotope 167.

La première préoccupation de ce travail de thèse a donc été de caractériser le cristal, particulièrement la structure hyperfine. A défaut de l'avoir complètement comprise, identifier des systèmes en Λ a été une étape nécessaire avant de travailler sur la transparence induite électromagnétiquement. Ce travail de caractérisation spectroscopique fait l'objet du chapitre 3.

Chapitre 3

Caractérisations spectroscopiques de Er : YSO

Ce chapitre reprend les caractérisations spectroscopiques que nous avons faites de la transition à 1536.4 nm des ions $^{167}\text{Er}^{3+}$ dans Y_2SiO_5 .

Outre la mesure des temps de vie des populations T_1 du niveau excité $^4\text{I}_{13/2}(0)$ et de la cohérence optique T_2 , un travail important a été fait pour comprendre la structure hyperfine complexe des ions erbium 167. Celle-ci n'est pas complètement élucidée, mais nous avons pu identifier plusieurs systèmes en Λ , point clef pour la réalisation de la transparence induite électromagnétiquement.

Les techniques utilisées sont l'écho de photon spontané et les spectroscopies de creusement spectral et de résonance paramagnétique électronique. Leur principe est présenté dans la première partie du chapitre. La seconde partie se focalise sur la mesure des temps de vie T_1 et T_2 . Les résultats des expériences de creusement spectral et de résonance paramagnétique électronique sur la structure hyperfine sont présentés dans la troisième et dernière partie. La conclusion fait le point sur ces résultats et propose des expériences complémentaires de caractérisation.

3.1 Introduction aux méthodes spectroscopiques

3.1.1 Echo de photon

Les premiers échos de photons ont été observés en 1964 par Kurnit *et al.* [53, 54] dans le ruby, ils sont l’analogue optique des échos de spin bien connus en résonance magnétique nucléaire depuis les années cinquante [55]. L’écho de photon utilise différentes séquences d’impulsions laser pour mesurer de manière indirecte la largeur homogène, sans être limité par l’élargissement inhomogène. On peut trouver un traitement théorique complet dans de nombreuses références [56], nous allons ici simplement donner quelques définitions et présenter le principe de l’écho de photon spontané.

Considérons un échantillon composé d’un ensemble de systèmes à deux niveaux caractérisés par des temps de relaxation des populations T_1 et des cohérences T_2 entre les 2 niveaux $|1\rangle$ et $|2\rangle$ (figure 3.1), en interaction avec un champ électrique $\mathbf{E}(t)$:

$$\mathbf{E}(t) = \frac{1}{2}\mathcal{E}(t)e^{i\omega t}\mathbf{e} + cc, \quad (3.1)$$

avec ω la fréquence optique centrale, $\mathcal{E}(t)$ l’amplitude complexe du champ (enveloppe lentement variable par rapport à ω), et $\mathbf{e}$ sa direction de polarisation (supposée fixe par la suite). Pour ce champ, on définit la pulsation de Rabi Ω , associée à la transition optique entre les niveaux $|1\rangle$ et $|2\rangle$ par

$$\Omega(t) = \mu_{12}\mathcal{E}(t)/\hbar, \quad (3.2)$$

où μ_{12} est l’élément de matrice dipolaire électrique de la transition $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$. L’aire d’une impulsion est définie par l’intégrale de la pulsation de Rabi :

$$\Theta = \int \Omega(t)dt. \quad (3.3)$$

Dans une expérience d’écho de photon spontané, deux impulsions laser de durée inférieure à T_2 sont envoyées sur l’échantillon comme présenté sur la figure 3.2.

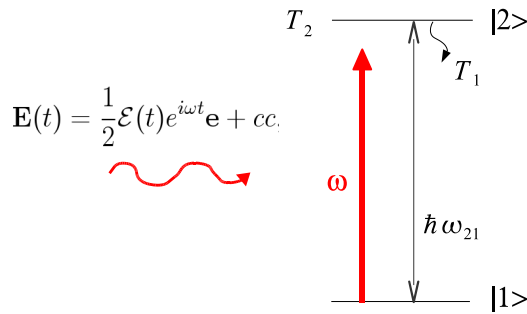


FIG. 3.1 – Système à 2 niveaux excité par un champ électrique monochromatique.

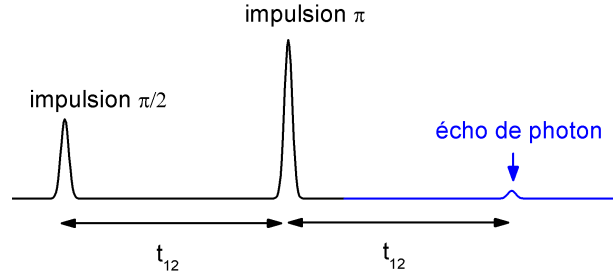


FIG. 3.2 – Séquence des impulsions pour écho de photon spontané.

La première impulsion d'aire $\pi/2$, appliquée en $t = 0$, crée ainsi une superposition cohérente des deux états fondamental et excité, avec égalité des populations. Après un temps t , chaque ion est dans l'état :

$$|\psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(e^{-iE_1 t/\hbar}|1\rangle + e^{-iE_2 t/\hbar}|2\rangle)$$

où E_1 et E_2 sont les énergies des niveaux $|1\rangle$ et $|2\rangle$ respectivement. Après cette première impulsion, le dipole de chaque ion vaut

$$d_{12} = \langle\psi^*|\mathbf{er}|\psi\rangle = \mu_{21}e^{-i\omega_{21}t}$$

avec $\omega_{21} = (E_2 - E_1)/\hbar$ et $\mu_{21} = \langle 2^*|\mathbf{er}|1\rangle$. Tous les ions excités rayonnent à la pulsation ω_{21} de la résonance et en phase tant que celle-ci n'est pas brouillée par des collisions, ou d'autres interactions.

Après un temps t_{12} , une seconde impulsion d'aire π est appliquée au système. L'effet d'une impulsion d'aire π est d'inverser les fonctions d'onde de l'état excité et de l'état fondamental. En t_{12} , on a donc (sans prendre en compte les phénomènes déphasants)

$$|\psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(e^{-iE_2 t_{12}/\hbar}|1\rangle + e^{-iE_1 t_{12}/\hbar}|2\rangle).$$

En t cette fonction d'onde évolue sous la forme :

$$|\psi\rangle(t, t_{12}) = \frac{1}{\sqrt{2}}(e^{-iE_2 t_{12}/\hbar}e^{-iE_1(t-t_{12})/\hbar}|1\rangle + e^{-iE_1 t_{12}/\hbar}e^{-iE_2(t-t_{12})/\hbar}|2\rangle).$$

Le dipole de chaque ion s'écrit alors

$$d_{12} = \mu_{21}e^{-i\omega_{21}(t-2t_{12})}.$$

La phase du dipole rayonné par chaque ion va s'annuler en $t = 2t_{12}$, c'est-à-dire en t_{12} après la seconde impulsion. Tous les dipôles dont la phase n'a pas été brouillée vont donc

se remettre en phase en $t = 2t_{12}$. Le signal résultant des interférences constructives entre tous les dipôles est l'*écho de photon* (figure 3.2).

Cet écho a lieu même lorsque la transition est élargie de manière inhomogène. Dans ce cas, chaque dipôle individuel rayonne un champ à sa fréquence propre ω_{21} dans la bande spectrale d'excitation. Cela entraîne le brouillage de la polarisation macroscopique après la première impulsion. La seconde impulsion permet cependant de retrouver une phase nulle exactement en $t = 2t_{12}$ quelle que soit de la fréquence de résonance propre de chaque ion.

Dans le cas d'un système élargi de manière inhomogène, excité avec une impulsion dont le spectre reste moins large que la largeur inhomogène, l'amplitude de l'écho en fonction du temps t_{12} entre les impulsions décroît selon une loi exponentielle :

$$I_{echo} = I_0 e^{-4t_{12}/T_2}. \quad (3.4)$$

Une expérience d'écho de photon spontané permet donc d'accéder au temps de déphasage ou temps de vie des cohérences T_2 et de connaître la largeur homogène de la transition optique :

$$\Gamma_h = \frac{1}{\pi T_2}$$

Remarque Les expériences d'écho de photon stimulé permettent d'étudier plus en détail les processus déphasants contribuant à T_2 et également de mesurer le temps de vie des populations T_1 [41]. Une expérience d'écho de photon consiste en 3 impulsions $\pi/2$ consécutives. Elle peut être vue comme une expérience d'écho spontané dans laquelle la seconde impulsion π a été coupée en deux impulsions $\pi/2$. Dans les deux cas la première impulsion $\pi/2$ crée une superposition cohérente de l'état excité et fondamental. Le dipôle rayonné évolue librement à la fréquence ω_{12} pendant un temps t_{12} . Au lieu de renverser la phase des dipôles comme une impulsion π la seconde impulsion $\pi/2$ appliquée en t_{12} enregistre la phase dans la différence de population n_{12} . Le réseau de population ainsi créé a une période en fréquence de $1/t_{12}$ et s'atténue avec la constante de temps T_1 . Après un temps T , la dernière impulsion $\pi/2$ restaure la cohérence stockée et induit un écho qui apparaît après un temps t_{12} .

3.1.2 Creusement spectral

La spectroscopie dite de creusement spectral, ou hole-burning spectral est apparue dans les années soixantes grâce à l'utilisation des lasers [57]. Elle met à profit la finesse spectrale de certains lasers pour explorer l'intérieur de l'élargissement inhomogène Γ_{inh} , avec une résolution proche de la largeur homogène de la transition optique Γ_h ou de celle du laser. Dans le cas des transitions $4f$ des lanthanides dopés en matrice cristalline Γ_{inh} peut aller de quelques centaines de MHz à plusieurs centaines de GHz, pour des largeurs homogènes Γ_h de l'ordre de la centaine de Hz jusqu'à la centaine de kHz [28, 33].

L'idée commune de toutes les expériences de creusement spectral est d'exciter sélectivement une partie des systèmes composant la largeur inhomogène en utilisation un laser,

appelé *pompe*, de largeur spectrale nettement inférieure à Γ_{inh} . Cette excitation sélective induit un changement des propriétés optiques du système, changement qui est ensuite détecté à l'aide d'un second laser, appelé *sonde*.

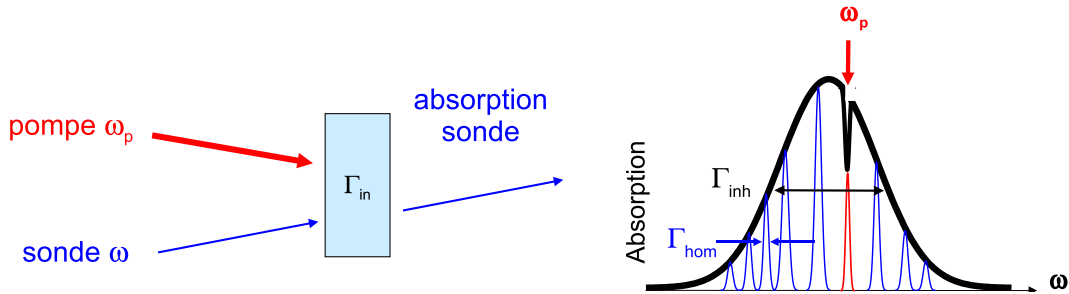


FIG. 3.3 – Schéma de principe de la spectroscopie de creusement spectral. Deux faisceaux sont utilisés, la pompe de fréquence ω_P fixe et la sonde de fréquence ω variable sur toute la largeur inhomogène. La pompe induit une redistribution de la population des systèmes qu'elle excite parmi l'élargissement inhomogène. Cette redistribution correspond ici à un trou dans l'absorption de la sonde.

Comme illustré sur la figure 3.3 dans le cas d'un système à deux niveaux, le laser pompe de fréquence fixe est en résonance avec une partie des systèmes composant la largeur inhomogène. Les systèmes excités forment une *classe d'ions*. La pompe induit une redistribution de la population de cette classe, c'est-à-dire modifie la différence de population n_{12} entre états fondamental et excité¹. L'absorption de la sonde, proportionnelle à n_{12} présente ainsi un *trou* à la fréquence de la pompe correspondant à la saturation de la classe excitée. Selon la nature des systèmes excités, le changement spectral induit par la pompe peut prendre différentes formes, être permanent (phénomènes photochimiques) ou transitoire (populations).

Aperçu théorique - Résolution

On considère toujours un ensemble de systèmes à deux niveaux caractérisés par les temps de vie des populations T_1 et des cohérences T_2 (figure 3.1). Ces temps sont associés aux taux $\gamma_{nat} = 1/T_1$ et $\gamma_h = 1/T_2$ (en rad/s). Ces systèmes sont excités par un champ monochromatique de pulsation ω équation (3.1). L'ensemble de systèmes est décrit par sa matrice densité ρ , et son évolution temporelle sous l'excitation lumineuse par l'équation de Liouville [58]. La fréquence de résonance ω_{21} est distribuée autour de ω_0 selon une loi gaussienne de largeur γ_{inh} (rad/s) et de densité de probabilité

$$g(\omega_{12}) = \frac{1}{\gamma_{inh}\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{(\omega_{21} - \omega_0)^2}{2\gamma_{inh}^2}\right).$$

¹La différence de population n_{12} est définie comme la différence des coefficients diagonaux de la matrice densité associée au système à 2 niveaux $n_{12} = \rho_{11} - \rho_{22}$

Le traitement théorique du creusement spectral peut être fait au moyen des équations de taux (rate equations). Le temps de relaxation des cohérences T_2 doit être nettement plus court que toutes les autres constantes de temps intervenant dans l'équation des cohérences optiques. T_2 est négligeable devant la durée de l'excitation optique, le temps de vie des populations T_1 et l'inverse du taux de pompage optique $1/\sigma I$. Sous cette approximation, les cohérences sont stationnaires et le dipole rayonné suit adiabatiquement la différence de population n_{12} . L'absorption de l'échantillon α (en cm^{-1}) est proportionnelle à la différence de population n_{12} , le coefficient de proportionnalité étant la section efficace d'absorption σ en cm^2 :

$$\alpha(\omega) = \sigma(\omega, \omega_{21}) n_{12}. \quad (3.5)$$

La section efficace $\sigma(\omega, \omega_{21})$ dépend de la fréquence d'excitation et de la fréquence de résonance :

$$\sigma(\omega, \omega_{21}) = \sigma_0 \frac{(\gamma_h/2)^2}{(\omega - \omega_{21})^2 + (\gamma_h/2)^2} \quad (3.6)$$

avec σ_0 section efficace au maximum de l'absorption.

Absorption d'un système élargi de manière homogène Lorsque l'excitation optique est faible, elle ne modifie pas les densités de population et on a $n_{12} = n_t$ densité volumique totale (en cm^{-3}). L'absorption non saturée du système homogène vaut ainsi

$$\alpha(\omega, \omega_{21}) = \alpha_0 \frac{(\gamma_h/2)^2}{(\omega - \omega_{21})^2 + (\gamma_h/2)^2} \quad (3.7)$$

Son profil est une lorentzienne de largeur γ_h , la largeur homogène. α_0 est le coefficient d'absorption non saturée au centre la raie d'absorption, $\alpha_0 = \sigma_0 n_t$ en cm^{-1} .

Lorsque l'excitation optique est plus intense, le champ dépeuple le niveaux fondamental et il y a saturation de l'absorption [59, 56] :

$$\alpha(\omega, \omega_{21}) = \alpha_0 \frac{(\gamma_h/2)^2}{(\omega - \omega_{21})^2 + (1 + S_0)(\gamma_h/2)^2} \quad (3.8)$$

où $S_0 = I/I_{sat} = \Omega^2 T_1 T_2$ est le paramètre de saturation (Ω pulsation de Rabi définie par l'équation 3.2). Le profil de l'absorption est saturé dans son ensemble, le maximum de l'absorption est réduit à $\alpha_0/(1 + S_0)$ et la largeur de la raie saturée est $\gamma_S = \gamma_h \sqrt{1 + S_0}$.

Elargissement inhomogène Si on considère l'élargissement inhomogène, la contribution à l'absorption des systèmes résonants à ω_{21} à $d\omega_{21}$ près est

$$d\alpha = g(\omega_{21}) \sigma(\omega, \omega_{21}) n_{12}(\omega_{21}) d\omega_{21}.$$

En régime non saturé, l'intégration sur ω_{21} donne à l'absorption un profil de Voigt (convolution lorentzienne - gaussienne) centré sur ω_0 et de largeur $\gamma_{inh} + \gamma_h \approx \gamma_{inh}$.

$$\alpha_0(\omega) = \int g(\omega_{21}) \sigma(\omega, \omega_{21}) n_{12}(\omega_{21}) d\omega_{21} \propto \int \frac{e^{-\frac{(\omega_{21}-\omega_0)^2}{2\gamma_{inh}^2}}}{(\omega - \omega_{21})^2 + (\gamma_h/2)^2} d\omega_{21} \quad (3.9)$$

Lorsque l'intensité du laser augmente, elle modifie la différence de population en créant un trou de population de largeur γ_S centré sur la fréquence du laser :

$$n_{12}(\omega_{21}) = n_{12}^0 \left(1 - \frac{S_0(\gamma_h/2)^2}{(\omega - \omega_{21})^2 + (\gamma_s/2)^2} \right).$$

L'absorption est de la forme

$$\alpha(\omega) \propto \int \frac{e^{-\frac{(\omega_{21}-\omega_0)^2}{2\gamma_{inh}^2}}}{(\omega - \omega_{21})^2 + (\gamma_h/2)^2} \left(1 - \frac{S_0(\gamma_h/2)^2}{(\omega - \omega_{21})^2 + (\gamma_s/2)^2} \right) d\omega_{21} \quad (3.10)$$

En utilisant un seul laser, l'absorption présente toujours un profil de Voigt car le laser pour chaque fréquence ω , lit la saturation de la population qu'il vient de créer.

La spectroscopie de creusement spectral consiste à détecter avec le laser sonde à ω la saturation de population induite par le laser pompe à ω_P

$$\alpha(\omega_P, \omega) \propto \int \frac{e^{-\frac{(\omega_{21}-\omega_0)^2}{2\gamma_{inh}^2}}}{(\omega - \omega_{21})^2 + (\gamma_h/2)^2} \left(1 - \frac{S_0(\gamma_h/2)^2}{(\omega_P - \omega_{21})^2 + (\gamma_s/2)^2} \right) d\omega_{21} \quad (3.11)$$

$$\alpha(\omega_P, \omega) = \alpha_0(\omega) \left(1 - \frac{S_0}{\sqrt{1 + S_0}} \frac{(\gamma_h/2)^2}{(\omega - \omega_P) + (\gamma_{hb}/2)^2} \right).$$

Ce profil est celui de l'absorption non saturée, présentant un trou -second terme entre parenthèse- de profil lorentzien et de largeur $\gamma_{hb} = \gamma_h(1 + \sqrt{1 + S_0})$ [59]. Si elle n'est pas limitée expérimentalement par la largeur spectrale des lasers ou leur gigue, la largeur du trou est limitée théoriquement à γ_{hb} . A la limite d'une saturation faible ($S_0 \rightarrow 0$), la largeur du trou est limitée par $2\gamma_h$.

Structure d'un spectre de creusement spectral

Voyons maintenant comment la spectroscopie de creusement spectral permet de remonter à la structure spectrale complexe, masquée dans la largeur inhomogène, la structure hyperfine de $^{167}\text{Er}^{3+} : \text{Y}_2\text{SiO}_5$.

Afin de comprendre les spectres de creusement spectral, nous considérons un système plus simple que $^{167}\text{Er}^{3+} : \text{Y}_2\text{SiO}_5$ ayant quatre niveaux, deux fondamentaux et deux excités, pour lequel toutes les transitions sont permises. On peut également faire l'hypothèse que la relaxation par émission spontanée de photon entre niveaux excités et fondamentaux est plus efficace que la relaxation entre niveaux hyperfins. Le *réservoir de population* est alors le niveau fondamental.

Comme illustré sur la figure 3.4, la pompe à ω_P sélectionne une classe d'ions composée de quatre types d'ions (a,b,c,d) qui n'ont pas exactement les mêmes niveaux d'énergie du fait de l'élargissement inhomogène de la transition optique, mais qui présentent tous une résonance à la fréquence ω_P .

Pour chacun de ces types d'ions, la population du niveau fondamental pompé est diminuée au profit de l'autre niveau fondamental. Le pompage optique, sans stockage dans l'état excité ici, change l'absorption de la sonde selon le schéma de la figure 3.4.e. Celle-ci est proportionnelle à $n_{fe}(\omega) = n_f(\omega) - n_e(\omega)$ où ω est la pulsation de la sonde. Sur le fond de l'absorption inhomogène (obtenu sans pompe), des structures spectrales plus fines apparaissent :

- un *trou principal*, correspondant à une fréquence de sonde égale à la fréquence de la pompe et auquel tous les sous-systèmes contribuent,
- des *trous latéraux* (absorption réduite) lorsque la fréquence de la sonde correspond à une transition partant d'un niveau qui a été dépeuplé par la pompe, l'absorption est réduite (b) (c).
- des *anti-trous* (absorption augmentée) lorsque la fréquence de la sonde correspond à une transition partant d'un niveau qui a une population augmentée par le pompage (d).

Pour une largeur inhomogène plus grande que la structure spectrale recherchée, **les trous et anti-trous latéraux sont répartis de manière symétrique par rapport au pic principal**. En effet pour chaque couple de fréquence pompe-sonde ($\omega_P = \omega_{P0}; \omega = \omega_0$) correspondant à un trou (respectivement un anti-trou), le couple ($\omega_P = \omega_0; \omega = \omega_{P0}$) présentera la même structure de trou (respectivement anti-trou).

La position en fréquence des trous par rapport au pic principal est déterminée par les éclatements en énergie entre niveaux de l'état excité : $|E_i^e - E_j^e| = |\delta_{ij}^e|$. La position en fréquence des anti-trous correspond quant-à elle à une combinaison entre les éclatements en énergie des niveaux de l'état fondamental et de l'état excité $|(E_i^e - E_k^f) - (E_j^e - E_l^f)| = |\delta_{ij}^e - \delta_{kl}^f|$. Une étude attentive des trous et des anti-trous permet donc de retrouver les éclatements du fondamental et de l'excité δ_{kl}^f et δ_{ij}^e et le diagramme d'énergie du système.

Dans le cas d'un système plus complexe avec N_e états excités et N_f états fondamentaux, en supposant

- que tous les éclatements sont contenus dans la largeur inhomogène,
- qu'aucune transition n'est interdite,
- et que le niveau réservoir est le niveau fondamental,

on pourra observer :

- $N_e \times (N_e - 1)$ trous en tout de part et d'autre du trou principal pour lesquels pompe et sonde partagent le même état fondamental (système en V).
- $N_f \times (N_f - 1)$ anti-trous correspondent à la situation pour lesquels la pompe et la sonde partagent le même état excité (système en Λ). Pour chacune de ces combinaisons Λ , $N_e \times (N_e - 1)$ combinaisons avec les éclatements excités sont possibles $|\delta_{ij}^f - \delta_{kl}^e|$ et $|\delta_{ij}^f + \delta_{kl}^e|$. Au final $N_f(N_f - 1) \times (1 + N_e \times (N_e - 1))$ anti-trous sont observables sur tout le spectre de part et d'autre de la pompe.

Notons que la dégénérescence de ces structures varie. En effet un trou ou un anti-trou peut être dû à plusieurs sous-systèmes à la fois. Par exemple sur la figure 3.4 le trou à $+\delta_{34}$ de la pompe est présent pour les systèmes (b) et (d), l'anti-trou à $+\delta_{12} - \delta_{34}$ de la pompe

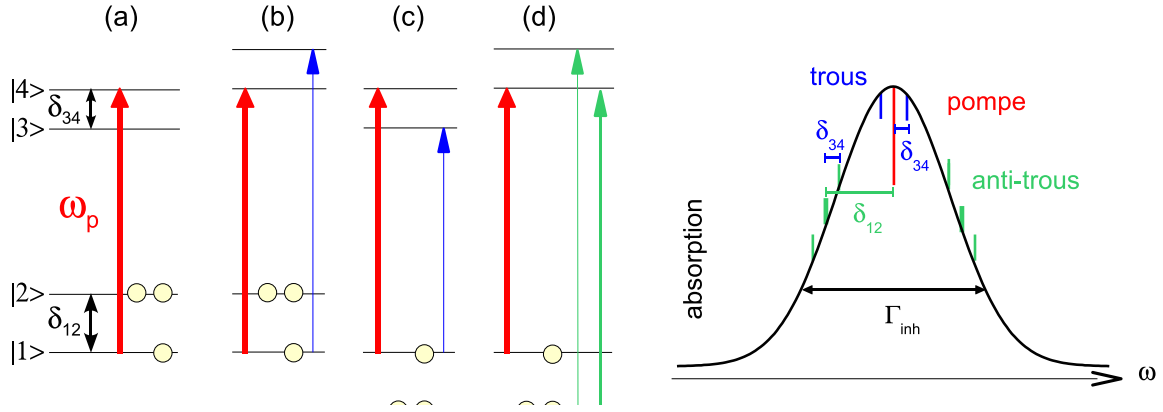


FIG. 3.4 – Exemple de spectroscopie de holeburning d'un système à 4 niveaux : 2 excités et 2 fondamentaux. La pompe, trait gras, est résonante avec chacun des 4 sous-systèmes (a), (b), (c) et (d) et induit une redistribution de la population du niveau fondamental (cercles). Des *trous* sont observés dans le profil d'absorption d'un faisceau sonde (trait fin) lorsque celui-ci est résonant avec une transition partant d'un niveau dépeuplé (b). Des *anti-trous* sont observés lorsque le faisceau sonde est résonant avec une transition partant d'un niveau fondamental surpeuplé (c), (d). (e) Le spectre d'absorption de la sonde présente des pics dont la position par rapport à la fréquence de la sonde est déterminée par les écarts en fréquence des niveaux fondamental et excité.

est présent pour le système (c) seulement. De façon générale, les trous sont dégénérés N_f fois, les anti-trous correspondant à des systèmes en Λ sont dégénérés N_e fois et les autres anti-trous ne sont pas a priori dégénérés...

Dans le cas des ions $^{167}\text{Er}^{3+}$ dopés dans Y_2SiO_5 un maximum de $N_f = N_e = (2S_{eff} + 1)(2I + 1) = 16$ niveaux dans l'état fondamental et dans l'état excité est attendu. Pour les spectres de creusement spectral sous les conditions précisées plus haut, on devrait donc mesurer jusqu'à 2×120 trous et 2×28920 anti-trous. Parmi cette foule d'anti-trous, les 2×120 anti-trous en Λ qui nous intéressent particulièrement sont a priori plus dégénérés et ont donc plus de chance d'être observés.

Diagramme d'énergie

Pour aller plus loin et reconstituer le diagramme d'énergie des niveaux hyperfins, il faut s'intéresser tout d'abord aux trous pour déterminer le diagramme d'énergie du niveau excité, puis aux anti-trous pour déterminer celui du niveau fondamental. Le travail sur les trous consiste à repérer les trous qui apparaissent à des fréquences correspondant à la somme des fréquences trouvées pour d'autres trous. En effet, les trous vont apparaître aux fréquences :

- $\delta_{i,i+1}$: trous entre deux niveaux hyperfins "consécutifs", il y en a $N_e - 1$,
- $\delta_{i,i+2} = \delta_{i,i+1} + \delta_{i+1,i+2}$, ($N_e - 2$ trous),

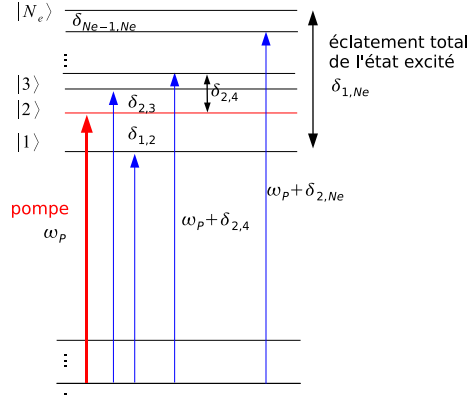


FIG. 3.5 – Schéma de transitions correspondant à des trous dans le cas d'un état excité formé de N_e niveaux.

- $\delta_{i,i+3} = \delta_{i,i+1} + \delta_{i+1,i+2} + \delta_{i+2,i+3}$, ($N_e - 3$ trous),
- ...
- δ_{1,N_e} .

Ces écarts en énergie sont illustrés sur la figure 3.5 pour un faisceau de pompe résonant avec le niveau $|2\rangle$ de l'état excité. Déterminer le diagramme d'énergie consiste à rechercher les combinaisons de fréquences de trous δ_{ti} pour lesquelles on mesure effectivement un trou δ_{tj} tel que $\delta_{tj} = \sum_i \delta_{ti}$. Identifier ces combinaisons permet de simuler un diagramme d'énergie, lequel donne un spectre de trou à comparer au spectre réel.

Un travail similaire peut être fait avec les anti-trous pour déterminer celui du niveau fondamental. En connaissant la position de tous les anti-trous, et le diagramme d'énergie du niveau excité, il est possible d'isoler les anti-trous en Λ qui correspondent à des transitions hyperfines du fondamental seulement et de recommencer le travail fait avec les trous.

Dynamique

L'évolution temporelle de l'amplitude d'un trou ou d'un anti-trou après une excitation permet d'étudier le retour à l'équilibre des populations. Dans le cadre des équations de taux, on s'intéresse à l'évolution temporelle des densités de population n_i des niveaux $|i\rangle$:

$$\dot{n}_i = - \sum_j w_{ij} n_i + \sum_j w_{ji} n_j. \quad (3.12)$$

Cette équation (3.12) prend en compte de manière globale les processus radiatifs (émission induite, émission spontanée) et les processus non-radiatifs (phonon, Orbach..) qui viennent dépeupler (premier terme de l'équation) ou peupler (second terme) le i ème niveau. Les coefficients w_{ij} représentent la probabilité totale de transition du niveau i vers le niveau j . (Le système d'équation obtenu est un système conservatif : la somme des n_i vaut toujours n_t puisqu'elle représente la densité de population totale.)

La solution générale de ce système d'équation est de la forme :

$$n_i - n_i^{eq} = \sum_l a_{il} \exp(-t/T_l), \quad (3.13)$$

où a_{il} et T_l dépendent des probabilités w_{ij} et de l'état initial du système à travers les densités de population initiales $n_i(t=0)$. La forme générale de la solution (3.13) fait apparaître des décroissances exponentielles dont les temps caractéristiques T_l sont accessibles expérimentalement et qui permettent ainsi de retrouver les temps relaxations des populations entre niveaux excité et fondamental et à l'intérieur des niveaux hyperfins [60, 61].

A retenir

Dans le cas de $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$, la spectroscopie de creusement spectral devrait permettre de remonter à la structure hyperfine plus ou moins masquée par l'élargissement inhomogène. La caractérisation des temps de relaxation des populations dans les niveaux hyperfins du fondamental et de l'excité a été faite en étudiant la dynamique de relaxation de ces spectres.

3.1.3 Résonance paramagnétique électronique

La spectroscopie de résonance paramagnétique électronique (RPE) étudie l'absorption du rayonnement électromagnétique par des systèmes paramagnétiques dans la gamme de fréquence radiofréquence 10^9 à 10^{11} Hz. Les systèmes paramagnétiques possèdent un électron à spin non apparié et peuvent être des atomes, des ions ou des molécules. Les ions de terre rare Kramers triplement ionisés, dont l'erbium, sont des ions paramagnétiques.

Spin 1/2 dans un champ magnétique

Pour introduire le principe de la spectroscopie de RPE, nous allons d'abord considérer un électron seul, système décrit par son spin électronique $S = 1/2$. Au repos les deux états $|S = 1/2, m_S = \pm 1/2\rangle$ sont dégénérés en énergie. Sous un champ magnétique statique $\mathbf{B} = B\mathbf{e}_z$, cette dégénérescence est levée par l'interaction Zeeman électronique dont l'hamiltonien est

$$H_{Ze} = \beta_e g_e \mathbf{B} \cdot \mathbf{S}, \quad (3.14)$$

où β_e est le magnéton de Bohr de l'électron $\beta_e = q\hbar/2m_e = -9.2741 \times 10^{-24}$ J/T et g_e le facteur g de l'électron ($g_e = 2.0023$ pour un électron libre).

La différence d'énergie entre les deux niveaux d'énergie vaut (figure 3.6) :

$$\Delta E = \beta_e g_e B_0$$

Pour détecter ces niveaux, on utilise une onde radio-fréquence dont le champ magnétique est perpendiculaire au champ statique appliqué. L'interaction Zeeman électronique pour le champ magnétique oscillant $\mathbf{B}_1 = B_1 \cos(2\pi\nu_{RF}t)\mathbf{e}_x$ s'écrit

$$V = g_e \beta_e B_1 \cos(2\pi\nu_{RF}t) \hat{S}_x. \quad (3.15)$$

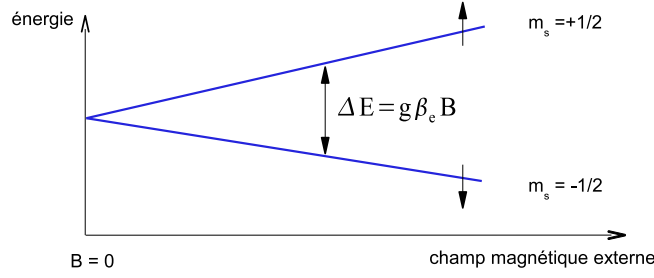


FIG. 3.6 – Diagramme d'énergie d'un spin 1/2 en fonction du champ magnétique $\mathbf{B}$ statique appliqué. La différence d'énergie entre les deux niveaux $|m_s\rangle$ est proportionnelle au champ (interaction Zeeman électronique).

Pour que la probabilité de transition $|\frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\rangle \rightarrow |\frac{1}{2}, \frac{1}{2}\rangle$, $P_{12} = |\langle \frac{1}{2}, -\frac{1}{2} | V | \frac{1}{2}, \frac{1}{2} \rangle|^2$ soit non nulle et qu'une transition RPE soit mesurée, il faut :

1. respecter la règle de sélection entre les niveaux : $\Delta m_s = \pm 1$.
2. respecter la condition de résonance entre les niveaux d'énergie et l'énergie apportée par l'onde RF :

$$h\nu_{RF} = \Delta E = g_e \beta_e B_0. \quad (3.16)$$

Lorsque l'électron n'est pas dans un environnement isotrope, l'interaction Zeeman électronique dépend de l'orientation du champ. Pour en rendre compte, son hamiltonien s'écrit sous forme tensorielle, dans la base (x, y, z) :

$$H_{Ze} = \beta_e \begin{bmatrix} B_x & B_y & B_z \end{bmatrix} \begin{bmatrix} g_{xx} & g_{xy} & g_{xz} \\ g_{yx} & g_{yy} & g_{yz} \\ g_{zx} & g_{zy} & g_{zz} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \hat{S}_x \\ \hat{S}_y \\ \hat{S}_z \end{bmatrix} = \beta_e {}^t \mathbf{B} \cdot \mathbf{g} \cdot \mathbf{S}. \quad (3.17)$$

Supposons que le tenseur $\mathbf{g}$ soit diagonal dans la base (x, y, z) et que le champ magnétique $\mathbf{B}$ ait une direction quelconque repérée par ses coordonnées polaires (θ, ϕ) . On a alors :

$$H_{Ze} = \beta_e \left(B \cos \theta g_{zz} \hat{S}_z + B \sin \theta \cos \phi g_{xx} \hat{S}_x + B \sin \theta \sin \phi g_{yy} \hat{S}_y \right).$$

Les niveaux d'énergie des deux fonctions d'onde $|\frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\rangle$ et $|\frac{1}{2}, \frac{1}{2}\rangle$ sont modifiés selon une quantité qui dépend de l'orientation du champ. La condition de résonance s'écrit sous la forme

$$h\nu_{RF} = g(\theta, \phi) \beta_e B_0, \quad (3.18)$$

avec $g^2(\theta, \phi) = g_{zz}^2 \cos^2 \theta + g_{xx}^2 \sin^2 \theta \cos^2 \phi + g_{yy}^2 \sin^2 \theta \sin^2 \phi$.

En faisant varier l'orientation du champ magnétique $\mathbf{B}$ par rapport aux axes cristallographiques de manière systématique, la spectroscopie de RPE permet de reconstruire le tenseur $\mathbf{g}$ et retrouver ses valeurs propres et ses axes propres. Nous allons voir maintenant que la RPE permet également d'accéder à la structure hyperfine.

Interaction hyperfine

L'interaction hyperfine est issue du couplage magnétique entre les moments magnétiques de l'électron (S) et du noyau (I) et s'écrit dans le cas le plus général :

$$H_{hf} = \mathbf{I} \cdot \mathbf{A} \cdot \mathbf{S} = \begin{bmatrix} \hat{I}_x & \hat{I}_y & \hat{I}_z \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A_{xx} & A_{xy} & A_{xz} \\ A_{yx} & A_{yy} & A_{yz} \\ A_{zx} & A_{zy} & A_{zz} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \hat{S}_x \\ \hat{S}_y \\ \hat{S}_z \end{bmatrix} \quad (3.19)$$

où $\mathbf{A}$ est le tenseur hyperfin dans la base (x, y, z) .

Pour aborder la RPE d'un système présentant une structure hyperfine, on considère le système décrit par un spin électronique $S = 1/2$ et un spin nucléaire $I = 1/2$. L'interaction hyperfine est supposée isotrope, et d'axes propres (x, y, z) . On définit la constante de couplage hyperfin $A = \frac{1}{3}(A_{xx} + A_{yy} + A_{zz})$. Les états du système sont les fonctions d'onde $|S, m_S, I, m_I\rangle$, notées $|m_S, m_I\rangle$.

Sans champ magnétique appliqué, il est usuel d'introduire le moment total [62], $\mathbf{F} = \mathbf{I} + \mathbf{S}$. Dans la base $|S, I, F, m_F\rangle$, H_{hf} est diagonal

$$\begin{aligned} H_{hf}|F, m_F\rangle &= \frac{A}{2}(\mathbf{F}^2 - \mathbf{I}^2 - \mathbf{S}^2)|F, m_F\rangle \\ &= \frac{\hbar^2 A}{2}[F(F+1) - I(I+1) - S(S+1)]|F, m_F\rangle \end{aligned}$$

Les niveaux d'énergies ne dépendent que de F , pas de m_F . On a une dégénérescence triple pour $F = 1$. La différence d'énergie entre les niveaux $F = 0$ et $F = 1$ est de $A\hbar^2$ (figure 3.7).

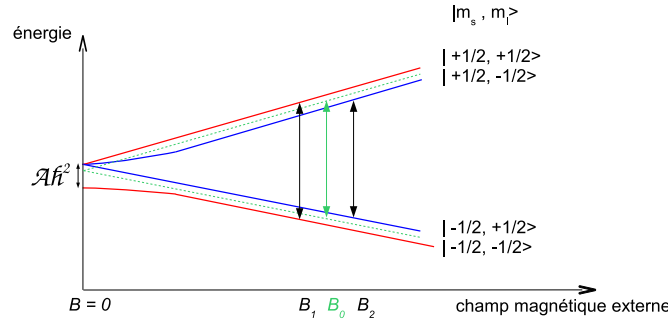


FIG. 3.7 – Diagramme d'énergie d'un système $S = 1/2$ $I = 1/2$ ayant une structure hyperfine en fonction du champ magnétique $\mathbf{B}$ statique appliqué. Les flèches matérialisent les transitions RPE, détectées pour les champs B_1 et B_2 . En pointillé le cas d'un spin $S = 1/2$ seul, présentant une transition en B_0 vérifiant la condition (3.18).

Sous champ magnétique, au premier ordre du développement perturbatif, les moments S et I sont découplées lorsque $g\beta_e B \gg A\hbar^2$, les états propres du système sont les $|m_S, m_I\rangle$:

Etats propres		Valeurs propres
$ +\frac{1}{2}, +\frac{1}{2}\rangle$	$\longleftrightarrow$	$\frac{g\beta_e B}{2} + \frac{A\hbar^2}{4}$
$ +\frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\rangle$	$\longleftrightarrow$	$\frac{g\beta_e B}{2} - \frac{A\hbar^2}{4}$
$ -\frac{1}{2}, +\frac{1}{2}\rangle$	$\longleftrightarrow$	$-\frac{g\beta_e B}{2} - \frac{A\hbar^2}{4}$
$ -\frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\rangle$	$\longleftrightarrow$	$-\frac{g\beta_e B}{2} + \frac{A\hbar^2}{4}$

Les transitions RPE obtenues avec un champ magnétique oscillant à ν_{RF} (éq.(3.15)) suivent les règles de sélection

$$\Delta m_S = \pm 1, \Delta m_I = 0. \quad (3.20)$$

Ces deux transitions RPE sont obtenues pour les champs magnétiques B_1 et B_2 tels que

$$\begin{aligned} |-\frac{1}{2}, +\frac{1}{2}\rangle &\rightarrow |+\frac{1}{2}, +\frac{1}{2}\rangle \quad \text{pour} \quad h\nu_{RF} = g\beta_e B_1 + \frac{A\hbar^2}{2} \\ |-\frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\rangle &\rightarrow |+\frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\rangle \quad \text{pour} \quad h\nu_{RF} = g\beta_e B_2 - \frac{A\hbar^2}{2} \end{aligned}$$

Les résonances sont déplacées de manière symétrique de part et d'autre de la résonance en B_0 correspondant à l'interaction Zeeman électronique comme on peut le voir sur la figure 3.7. La séparation en champ entre ces résonances est de $B_2 - B_1 = \frac{A\hbar^2}{g\beta_e}$. On accède ainsi à la constante de couplage hyperfin A et à l'éclatement en énergie des niveaux dégénérés sans champ magnétique $A\hbar^2$.

Pour une interaction hyperfine anisotrope, le traitement est formellement plus compliqué mais la structure des spectres est la même. Comme pour l'interaction Zeeman électronique seule, la position des résonances RPE va dépendre de l'orientation du champ magnétique. L'étude des spectres selon l'orientation de $\mathbf{B}$ permet de reconstituer le tenseur hyperfin $\mathbf{A}$ [63].

Dans le cas d'un spin nucléaire I supérieur à $1/2$, on observera $2I + 1$ transitions RPE entre les niveaux hyperfins. Lorsque l'interaction hyperfine est faible, les $2I + 1$ transitions sont également espacées et on n'observe pas d'autres transitions. Lorsque l'interaction hyperfine augmente, l'écart entre deux transitions hyperfines consécutives n'est plus constant et des transitions dites "interdites" apparaissent au milieu de deux transitions permises (transitions $\Delta m_I = \pm 1$) [63].

Une transition est dite interdite lorsqu'elle apparaît à une fréquence inattendue compte tenu des règles de sélection de l'équation (3.20). Si cette transition a lieu, c'est qu'elle correspond néanmoins à un couplage via le champ radiofréquence entre deux états $|\psi_1\rangle$ et $|\psi_2\rangle$. Ces états $|\psi_i\rangle$ ne sont pas des états purs, mais des combinaisons linéaires d'états purs, ce qui donne une probabilité de transition $|\langle\psi_2|V|\psi_1\rangle|^2$ non nulle. Les mélanges d'états purs ont lieu parce que les interactions sont importantes (le deuxième ordre du développement perturbatif doit être pris en compte) et qu'elles présentent des termes de

couplages (non diagonaux) dans la base des états purs. Les transitions interdites peuvent ainsi être associées à un effet physique particulier.

Autres interactions

Pour l'étude des ions erbium dans Y_2SiO_5 les interactions quadrupolaire et Zeeman nucléaire doivent également être prises en compte dans l'interprétation des spectres. L'hamiltonien à considérer est [63, 64]

$$H = \beta_e \mathbf{B} \cdot \mathbf{g} \cdot \mathbf{S} + \mathbf{I} \cdot \mathbf{A} \cdot \mathbf{S} + \mathbf{I} \cdot \mathbf{Q} \cdot \mathbf{I} - \beta_n g_n \mathbf{B} \cdot \mathbf{I} \quad (3.21)$$

où β_e est le magnéton de Bohr de l'électron, β_n le magnéton nucléaire $\beta_n = -q\hbar/2M_P = 5.051 \times 10^{-27}$ J/T, g_n le facteur g nucléaire $g_n = -0.1618$ pour les ions Er^{3+} , et $\mathbf{Q}$ est le tenseur de l'interaction quadrupolaire de trace nulle.

Les effets des interactions quadrupolaire et Zeeman nucléaire, deux dernier termes de l'hamiltonien (3.21) sont en général beaucoup plus petits que ceux des interactions Zeeman électronique et hyperfine [63, 65].

L'interaction Zeeman nucléaire n'a aucune influence sur la position des transitions hyperfines permises car le magnéton de Bohr nucléaire est trois ordres de grandeur plus petit que le magnéton de Bohr électronique. Cependant, cette interaction va influencer grandement l'intensité des transitions interdites en s'ajoutant à l'interaction quadrupolaire. L'interaction Zeeman nucléaire introduit un terme sur l'intensité des raies interdites qui dépend de la fréquence micro-onde.

L'interaction quadrupolaire est présente pour des noyaux à spin nucléaire $I > 1$. Ce terme résulte de l'interaction entre le gradient de champ électrique au noyau et le moment quadrupolaire du noyau. Le gradient de champ électrique sera d'autant plus fort que la symétrie du site cristallographique est basse, ceci implique que cette interaction n'est visible qu'en basse symétrie. L'interaction quadrupolaire est responsable de plusieurs effets sur les spectres :

- elle influence la position des transitions permises,
- elle fait éclater les transitions interdites en deux transitions,
- elle fait apparaître d'autres transitions "interdites", autour des transitions permises, à $\Delta m_I = \pm 2$.

A retenir

L'étude des spectres de résonance paramagnétique électronique en fonction de l'orientation du champ magnétique externe $\mathbf{B}$ permet de reconstituer les 3 tenseurs $\mathbf{g}$, $\mathbf{A}$ et $\mathbf{Q}$ des interactions Zeeman, hyperfine et quadrupolaire de l'équation (3.21). Ces tenseurs donnent des informations sur l'environnement immédiat de l'élément paramagnétique étudié. Connaissant $\mathbf{A}$ et $\mathbf{Q}$ nous allons extrapoler les niveaux d'énergie de l'état sondé en champ magnétique nul.

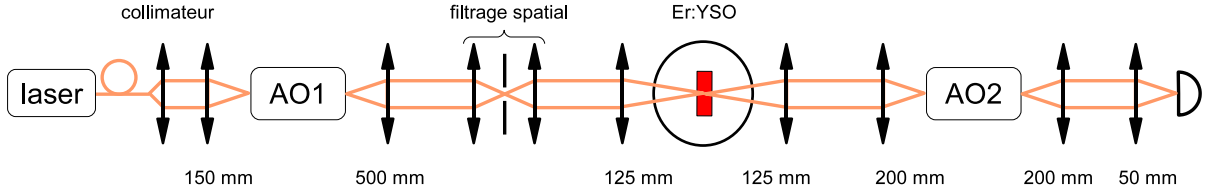


FIG. 3.8 – Dispositif expérimental utilisé pour les expériences d'écho de photon au LAC. Le premier modulateur acousto-optique (AO1) permet de façonner la séquence d'impulsion de la figure 3.9. Le second modulateur (AO2) ouvre une fenêtre de détection après que la seconde impulsion laser est passée.

3.2 Mesure des temps de vie des cohérences et des populations

3.2.1 Echo de photon et mesure de T_2

Les premières mesures d'écho de photon spontané et stimulé dans $\text{Er}^{3+} : \text{Y}_2\text{SiO}_5$ à $1.5 \mu\text{m}$ ont été réalisées par MacFarlane *et al.* en 1997 sous champ magnétique [47]. Pour le site 1, sans champ magnétique et à la température de l'hélium liquide, des temps de cohérences T_2 de $3.7 \mu\text{s}$ et $3.3 \mu\text{s}$ ont été reportés pour des dopages de 32 ppm [46] et 10 ppm [66] respectivement.

Ces mesures d'écho ont été reprises et approfondies dans les travaux de Thomas Böttger [36, 41] et Vincent Crozatier [48] avec différents dopages et sous champ magnétique. Sans champ magnétique $T_2 = 1.5 \mu\text{s}$ a été mesuré [48] à 1.7 K dans un cristal dopé à 0.005%. Toutes les mesures de la littérature ont été faites dans des cristaux dopés à l'erbium naturel composé de 77 % d'ions non paramagnétiques (isotopes pairs de $I = 0$) et 23 % d'ions paramagnétiques (isotope ^{167}Er $I = 7/2$).

Dispositif expérimental

Les expériences ont été réalisées au Laboratoire Aimé Cotton, en collaboration avec Ivan Lorgeré et Vincent Crozatier, avec le dispositif expérimental représenté sur la figure 3.8.

Le faisceau laser est envoyé dans un premier modulateur acousto-optique (AO1) qui permet de façonner la séquence d'impulsions ($\pi/2$, π) comme présenté sur la figure 3.2. La puissance RF envoyée sur l'AO est pilotée par un générateur de fonction arbitraire *WG* avec lequel des impulsions de 300 ns sont programmées. La séquence d'impulsion est construite par juxtaposition de ces impulsions et de temps d'attente.

Les impulsions excitatrices présentent un profil temporel en intensité quasi-rectangulaire (figure 3.9). La première a une durée 300 ns, ce qui correspond à une extension dans le domaine spectral de l'ordre de 3.3 MHz. Cette bande d'excitation est inférieure à la largeur inhomogène, supérieure à la largeur homogène. La seconde impulsion, de même intensité,

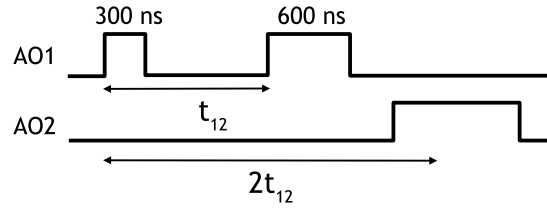


FIG. 3.9 – Séquence des impulsions appliquées aux modulateurs acousto-optiques du dispositif expérimental de la figure 3.8.

deux fois plus longtemps que la première, i.e. 600 ns.

Le signal d'écho de photon se propage dans la même direction que le laser (configuration colinéaire). L'amplitude de l'écho est très faible, fait déjà remarqué dans $\text{Er}^{3+} : \text{Y}_2\text{SiO}_5$, pour des expériences sans champ magnétique [46]. Le faisceau est ensuite focalisé sur un détecteur *Newfocus 1811* comprenant un étage d'amplification. Afin de ne pas éblouir le détecteur par les impulsions lasers excitatrices qui sont transmises par le cristal, un second modulateur (AO2) ouvre une fenêtre de détection après que la dernière impulsion laser (π) est passée.

Le cristal est maintenu dans un cryostat à bain d'hélium à une température de 1.7 K. Le laser est accordé au maximum de l'absorption de la transition à 1536 nm correspondant au site 1 (voir spectre de la figure 2.6).

Résultat expérimental

La figure 3.10 représente l'amplitude du signal d'écho de photon en fonction du retard t_{12} . La décroissance de l'amplitude de l'écho suit une loi exponentielle du type de l'équation (3.4)

$$I_{echo} = I_0 e^{-4t_{12}/T_2}$$

faisant apparaître le temps de cohérence T_2 de la transition :

Nous mesurons

$$T_2 = 3.5 \mu\text{s} \pm 0.3 \mu\text{s}.$$

On en déduit une largeur homogène de

$$\Gamma_h = 1/\pi T_2 = 91 \text{ kHz} \pm 8 \text{ kHz}.$$

Ces résultats sont du même ordre de grandeur que les résultats obtenus dans Y_2SiO_5 dopé à l'erbium naturel : $3.7 \mu\text{s}$ dans un cristal dopé à 32 ppm [46] et $3.3 \mu\text{s}$ dans un cristal dopé à 10 ppm [66]. La présence de la structure hyperfine semble donc ne pas changer notablement les interactions responsables de la décohérence du sipole rayonné par les ions lorsqu'il n'y a pas de champ magnétique. Le fait que le temps de cohérence ne varie pas avec la concentration en erbium suggère que les processus déphasants ne sont pas liés aux interactions entre ions erbium mais plutôt entre les ions erbium et les autres ions de la matrice.

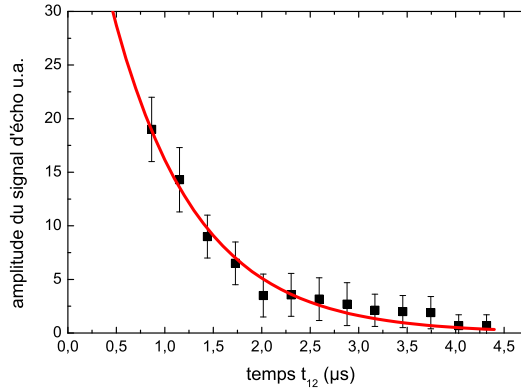


FIG. 3.10 – Décroissance de l'amplitude de l'écho de photo en fonction du retard T_{12} , point expérimentaux et ajustement selon l'équation (3.4).

3.2.2 Dynamique de creusement spectral et mesure de T_1

Dispositif expérimental

Les expériences de creusement spectral réalisée au LPN ont utilisé deux dispositifs différents :

- un dispositif à un seul laser comme celui de la figure 3.11.a,
- un dispositif à deux lasers comme celui de la figure 3.11.b, lorsque nous disposons de la seconde source *Koheras* prêtée par Ivan Lorgeré du Laboratoire Aimé Cotton.

Montage optique Les deux lasers utilisés sont des lasers fibrés *Koheras* asservis en température et présentant une largeur de raie de l'ordre de 2 kHz (et une gigue estimée à 10 kHz). L'asservissement en température permet une accordabilité de 0.3 nm (38 GHz) pour se positionner précisément à la transition de l'erbium dans Y_2SiO_5 à 1536.1 nm. Le balayage rapide de la fréquence est obtenu en modifiant finement la longueur de la cavité laser *Koheras 'Adjustik'* du LPN à l'aide d'une cale piézo-électrique située sur la fibre.

Après collimation, une densité optique variable constituée d'une lame demi-onde suivie d'un cube séparateur de polarisation est utilisée pour varier l'intensité laser transmise par le cube. La polarisation est ensuite contrôlée au moyen d'une lame demi-onde, comme précisé au chapitre 2. Nous travaillons en polarisation rectiligne parallèle à l'axe D_2 du cristal présentant l'absorption la plus forte pour le site 1.

Pour étalonner les spectres en fréquence un étalon Fabry Perot est placé sur une fuite du laser sonde. C'est un Fabry Pérot confocal (CVI) d'intervalle spectral libre 300 MHz et de finesse $\mathcal{F} = 100$. Le signal de transmission du Fabry Pérot est enregistré pendant le balayage en fréquence du laser.

Les deux dispositifs comprennent sur chaque faisceau un modulateur acousto-optique

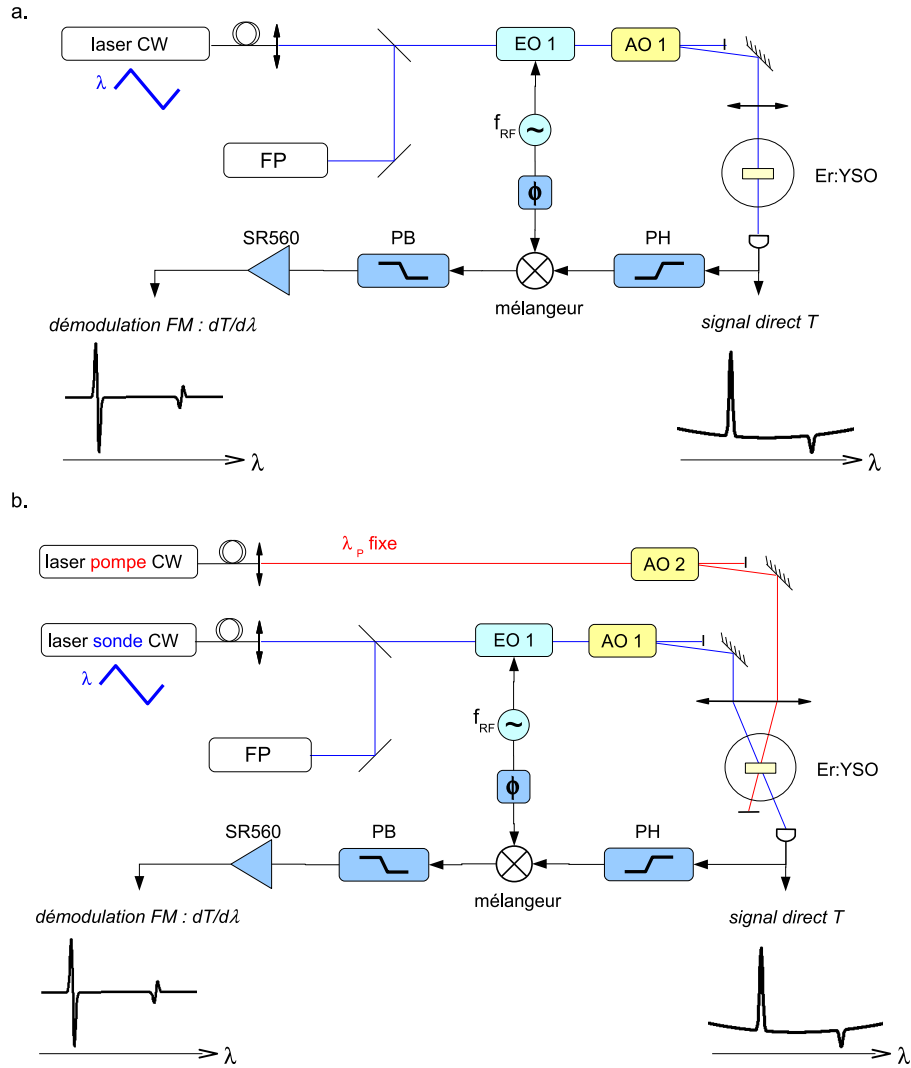


FIG. 3.11 – Dispositif expérimentaux utilisés pour les expériences de creusement spectral (a) avec un seul laser, (b) avec deux lasers. Dans les deux cas la modulation d’amplitude est réalisée au moyen d’un cristal acousto-optique (AO 1). La modulation de phase du faisceau est réalisée dans un cristal électro-optique (EO 1) excité par une haute tension sinusoïdale de fréquence f_{RF} . La démodulation du signal à f_{RF} est effectuée analogiquement grâce à un mélangeur (*Minicircuit ZAD-6*) précédé d’un filtre coupant le continu (PH) et suivi d’un filtre passe bas (PB) et d’un amplificateur (*SR560*). Une cavité Fabry Perrot (FP) de 300 MHz d’intervalle spectral libre permet d’étalonner le laser en fréquence. Dans le dispositif à deux lasers (b), le laser de pompe est maintenu à fréquence fixe. Son amplitude est modulée dans le temps avec un modulateur acousto optique (AO 2).

(*ACM-802AA1*) alimenté par une puissance RF à 80 MHz de l'ordre du Watt (*contrôleur DE-801M*). Ils sont destinés à moduler l'intensité des lasers et à créer des impulsions d'amplitude ajustable. Ces impulsions sont faites par un générateur d'impulsions *SRS-DG535* qui module la puissance RF appliquée à l'acousto-optique.

Les deux faisceaux sont ensuite focalisés dans le cristal situé dans le cryostat *Janis SVT 400* au moyen de lentilles dont les focales vont de 100 mm à 250 mm selon les expériences. Les faisceaux se croisent à leurs points focaux qui sont situés dans le cristal.

Système de détection FM Afin d'augmenter le rapport signal sur bruit et détecter ainsi un maximum de structures (trous et anti-trous), un dispositif de modulation de fréquence est mis en place sur le faisceau sonde. La phase du faisceau est modulée en passant au travers d'un cristal électro-optique (*Newfocus 4004* en $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$) auquel on applique une haute tension sinusoïdale de fréquence f_{RF} . La fréquence de modulation doit être proche de la largeur spectrale de la structure dont on cherche à observer la dérivée afin d'obtenir un signal dispersif ayant la plus grande pente à résonance. La largeur des trous et des anti-trous étant de l'ordre du MHz, la fréquence f_{RF} utilisée est de ~ 1 MHz. Le cristal électro-optique est alimenté par un générateur de signaux basse tension *SRS-DS345*, suivi d'un circuit RLC artisanal résonant à f_{RF} représenté sur la figure 3.12.

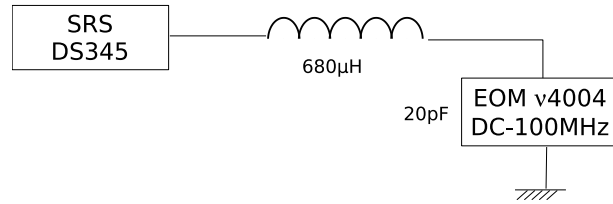


FIG. 3.12 – Circuit électrique RLC résonant à $f_{RF} = 1$ MHz utilisé pour la modulation de fréquence.

La chaîne de démodulation est la suivante :

- après le détecteur bas bruit amplifié *Newfocus 1811*, un premier filtre passe haut coupe la composante continue du signal détecté, la sortie est ensuite amplifiée (PH)
- un mélangeur (*Minicircuit ZAD 6 0.003–100 MHz*) réalise la multiplication $\text{signal} \times \text{référence}$. Les entrées sont le signal détecté (filtré et amplifié) et le signal de référence obtenu avec un second générateur *SRS-DS345*, asservi au générateur d'alimentation de l'électro-optique. La démodulation est optimisée en jouant sur la phase entre la référence et le signal à la fréquence f_{RF} .
- enfin le signal issu du mélangeur, dont le spectre présente des harmoniques à f_{RF} qui ne nous intéressent pas, est à nouveau filtré et amplifié dans le préamplificateur bas bruit *SRS-SR560*.

Cette démodulation et notamment les différents filtrages ont été optimisés pour pouvoir être efficaces alors que la fréquence du laser est balayée lentement.

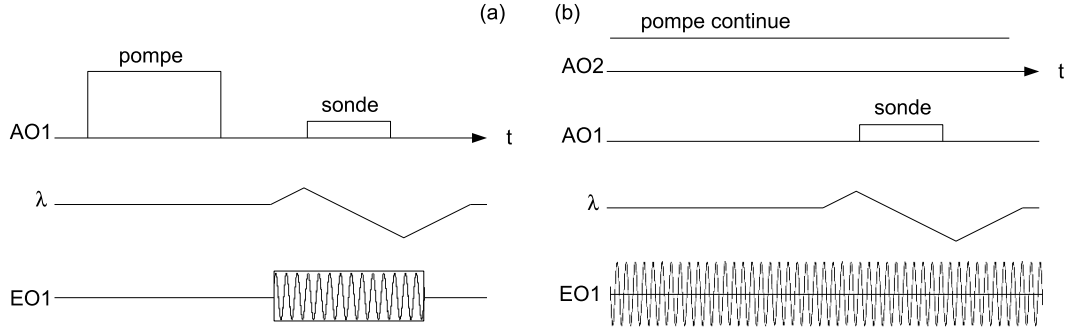


FIG. 3.13 – Séquence des différentes modulations appliquées pour les expériences de hole-burning en impulsionnel avec un laser (a) (dispositif 3.11.a) et deux lasers (b) (dispositif 3.11.b), taux de répétition 10 Hz. AO1 et AO2 signaux appliqués aux acousto-optiques, EO1 signal appliqué au modulateur électro-optique, et λ balayage en fréquence du laser. Le délai pompe-sonde τ est mesuré depuis la fin du pompage.

Le signal démodulé est proportionnel au signal dérivé de la transmission ce qui permet de s'affranchir du fond de l'absorption linéaire et de gagner en dynamique de détection. Sur la ligne de fond, les trous se distinguent des anti-trous par le signe de la pente de la structure dispersive (figures 3.11.a et 3.11.b). Un gain de 10 est obtenu sur le rapport signal sur bruit ce qui permet de faire apparaître de nombreuses structures spectrales noyées dans le bruit lors de la mesure directe du signal de transmission. Par ailleurs la démodulation autour de 1 MHz est moins sensible au bruit basse fréquence qui décroît en $1/f$.

Ces montages permettent différentes utilisations, en continu ou en impulsionnel selon les modulations appliquées (figures 3.13,3.15). Pour l'étude de l'évolution temporelle de l'amplitude des trous et des anti-trous, les séquences des figures 3.13 ont été utilisées. Que ce soit avec un ou deux lasers, le délai pompe sonde est mesuré depuis la fin du pompage jusqu'au moment du balayage du trou ou de l'anti-trou par la sonde.

Avant de présenter les résultats expérimentaux sur la dynamique de creusement spectral nous présentons un modèle qui permet de les interpréter simplement.

Modèle simplifié

Pour interpréter les expériences de creusement spectral et la dynamique des différentes structures observées à l'aide du modèle simple exposé en introduction, il convient de faire quelques hypothèses simplificatrices supplémentaires sur les temps de vie des niveaux fondamental et excité :

1. La relaxation entre niveaux hyperfins de l'état excité est très lente devant la relaxation vers le fondamental, ce qui revient à prendre des taux w_{ij} entre niveaux hyperfins excités nuls. Cette hypothèse est justifiée à très basse température $T < 2.5$ K. Pour

des températures supérieures, les processus de relaxations assistés peuvent être très efficaces et il devient impossible d'observer des anti-trous (voir [67] pour les détails)

2. Les relaxations entre sous-niveau hyperfins de l'excité vers n'importe quel sous niveau fondamental sont équiprobables, et sont caractérisées par un taux w_{ef} . Cette hypothèse est très forte, et vraisemblablement n'est pas vérifiée. Malgré des probabilités de transition différentes pour chaque transition entre niveaux hyperfins de l'excité vers le fondamental, on peut cependant considérer que la désexcitation d'un sous-niveau hyperfin de l'état excité se fait *en moyenne* avec le même taux quelque soit le niveaux fondamental ceci compte tenu du grand nombre de niveaux et de transitions possibles.
3. De la même manière, les relaxations entre sous niveaux hyperfins du fondamental sont équiprobables et sont caractérisées par un taux w_{ff} .

Ces hypothèses grossières sont nécessaires pour extraire une information de l'évolution temporelle de l'amplitude des trous et des anti-trous. Les équations d'évolution des populations du niveau excité n_i^e et fondamental n_i^f s'écrivent

$$\begin{aligned}\dot{n}_i^e &= -N_f w_{ef} n_i^e \\ \dot{n}_i^f &= -(N_f - 1) w_{ff} n_i^f + \sum_j^{N_e} w_{ef} n_j^e + \sum_{j \neq i}^{N_f} w_{ff} n_j^f\end{aligned}\quad (3.22)$$

où N_f est le nombre de sous niveaux hyperfins du fondamental, N_e est le nombre de sous niveaux hyperfins de l'excité. La décroissance des niveaux excités provient simplement de leur désexcitation vers un niveau fondamental. Les 3 termes de l'équation d'évolution des populations du fondamental correspondent à la désexcitation du niveau $|i\rangle$ vers les $N_f - 1$ autres sous niveaux et au peuplement du niveau $|i\rangle$ par les niveaux excités et les autres niveaux hyperfins.

La solution générale de ce système d'équation différentielle linéaire est une somme d'exponentielles décroissantes faisant apparaître les temps caractéristiques suivants :

$$\begin{aligned}T_1^e &= N_f w_{ef} \\ T_1^f &= N_f w_{ff}.\end{aligned}\quad (3.23)$$

T_1^e est relié à la largeur naturelle de la transition, alors que T_1^f reflète les processus de relaxation assisté par phonon entre les niveaux hyperfins [37, 67]. Sous l'hypothèse 1, se cache le fait que les processus de relaxation entre niveaux hyperfins sont plus lents au la désexcitation radiation : $T_1^f \gg T_1^e$.

L'amplitude des trous et des anti-trous est proportionnelle à la différence de population entre excité et fondamental (transition $|i\rangle \rightarrow |j\rangle$) aura donc la forme générale suivante :

$$\begin{aligned}n_{ij}^{fe}(t) &= n_i^f(t) - n_j^e(t) \\ &= a_0 + a_1 \exp(-t/T_1^e) + a_2 \exp(+t/T_1^e) + a_3 \exp(-t/T_1^f) + a_4 \exp(+t/T_1^f)\end{aligned}\quad (3.24)$$

où a_0 , a_1 , a_2 , a_3 et a_4 sont des constantes dépendant des conditions initiales $n_i(t_0)$. Ces conditions initiales correspondent à la redistribution de population induite par le pompage,

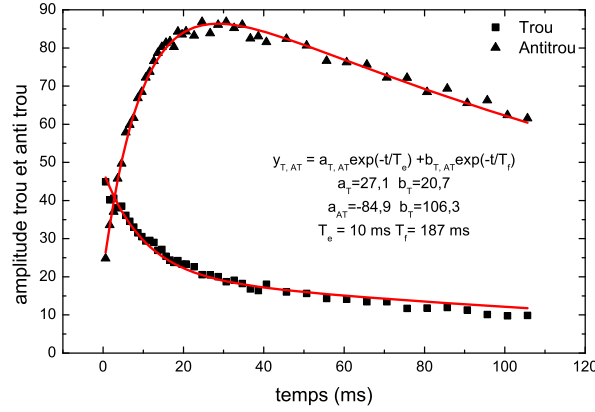


FIG. 3.14 – Décroissance du trou à 890 MHz et de l’anti-trou à 740 MHz de la pompe située en A dans le spectre.

qui est coupé en $t = 0$. Pour éviter que l’amplitude ne diverge on a $a_2 = a_4 = 0$ et pour respecter la condition de retour à l’équilibre $n_{ij}^{fe}(t \rightarrow \infty) = 0$, $a_0 = 0$.

Etude conjointe d’un trou et d’un anti-trou

Nous étudions ici un anti-trou spécifique, qui a été identifié comme un anti-trou en Λ (étude détaillée au paragraphe 3.3.3). L’amplitude de cet anti-trou est étudiée en même temps que l’amplitude d’un trou. La figure 3.14 représente l’évolution de l’amplitude de ce trou à 890 MHz et de l’anti-trou à 740 MHz de la pompe, lorsque celle ci est placée en A (pour le label A voir la figure 2.7). L’amplitude de l’anti-trou suit deux phases : croissance puis décroissance.

La première phase, de croissance, vient du retour vers une population nulle de l’état excité : la différence fondamental - excité $n_{fe} = n_f - n_e$ croît parce que n_e décroît. Cette phase de croissance de l’anti-trou se retrouve sur l’amplitude du trou, qui décroît rapidement. Elle est associée à la constante de temps T_1^e . La deuxième phase correspond au retour à l’équilibre des populations à l’intérieur des niveaux hyperfins du fondamental et est associée à T_1^f . Elle est visible sur le trou comme sur l’anti-trou.

L’ajustement des résultats expérimentaux a été fait selon l’équation (3.24) simplifiée, conjointement sur le trou et l’anti-trou. L’amplitude du trou et de l’anti-trou est réduite à 6 paramètres selon l’équation (3.24) :

$$y_{T,AT}(t) = a_{T,AT} \exp(-t/T_1^e) + b_{T,AT} \exp(-t/T_1^f), \quad (3.25)$$

Les temps de vie déduits de cet ajustement sont

$$\begin{aligned} T_1^e &= 10\text{ms} \pm 2\text{ms} \\ T_1^f &= 187\text{ms} \pm 30\text{ms} \end{aligned}$$

Le résultat de $T_1^e = 10 \text{ ms} \pm 2 \text{ ms}$ est en accord avec les mesures de la littérature pour Er : Y_2SiO_5 dopé avec de l'erbium naturel. Les expériences d'écho de photon stimulé réalisées par T. Böttger [36] donnent $T_1^e = 11.4 \text{ ms}$ pour le site 1. Le temps de vie relativement long $T_1^f = 187 \text{ ms}$ associé à la dynamique de la population entre niveaux hyperfin du fondamental valide l'hypothèse n°1 supposant que les relaxations entre niveaux hyperfins sont plus lentes que la désexcitation optique. Ce résultat est intéressant car il démontre que, pour le système en Λ étudié ici, le temps de stockage d'une information codée sur la population de deux niveaux hyperfins peut être vraiment long.

Il faut noter que, si nous n'avons pas fait de mesure explicite pour les autres anti-trous, notamment ceux que nous avons identifiés comme étant des système en Λ , nous avons observé un temps de retour à l'équilibre du même ordre de grandeur. En coupant le faisceau de pompe, on voit sur l'oscilloscope l'amplitude des anti-trous décroître et s'annuler sur une échelle de temps de l'ordre de la seconde. Ce résultat, obtenu à 2 K, n'est plus vrai à 4 K, température à laquelle les processus de relaxations entre sous niveaux hyperfins, sont beaucoup plus efficaces, et où il est impossible d'observer des anti-trous [67].

Remarque Suivant les conditions de pompage, la différence de population correspondant à un anti-trou peut être positive du fait d'une surpopulation du niveau excité (particulièrement juste après le pompage, tant que la population du niveau excité n'a pas relaxée). On observerait dans un cas un trou à la position spectrale de l'anti-trou. Il faut donc bien faire attention. Compte tenu des constantes de temps mesurées, l'idéal dans notre cas pour observer le "bon" spectre de creusement spectral est d'attendre $3T_1^e$ après le pompage que le niveau excité soit bien vide. Cependant, l'amplitude des trous sera alors faible et difficile à mesurer. Par ailleurs, étant donné le nombre de structures à observer une forte saturation est nécessaire. Cette saturation est plus difficile à obtenir expérimentalement avec des impulsions. Nous avons travaillé en régime continu en faisant attention aux conditions de saturation afin d'éviter ce stockage temporaire dans l'état excité.

3.3 Eclatements hyperfins

3.3.1 Creusement spectral

Les expériences de creusement spectral destinées à déterminer les niveaux hyperfins ont été faites généralement en continu. Le laser de pompe crée une redistribution de la population stationnaire qui est lue périodiquement par le laser de sonde. La structure du spectre obtenue dépend évidemment des conditions de pompage, mais on peut espérer mieux discerner les trous et anti-trous de faible amplitude. Quelques spectres ont été également fait en impulsionnel, ce qui a permis de repérer les trous et les anti-trous de plus grande amplitude.

Avec un dispositif du type de celui de la figure 3.11.b, deux lasers sont utilisés : un dont la fréquence est maintenue fixe dans le temps, la pompe, et un autre dont la fréquence sera balayée sur toute la largeur inhomogène, la sonde. Les modulations d'amplitude et de

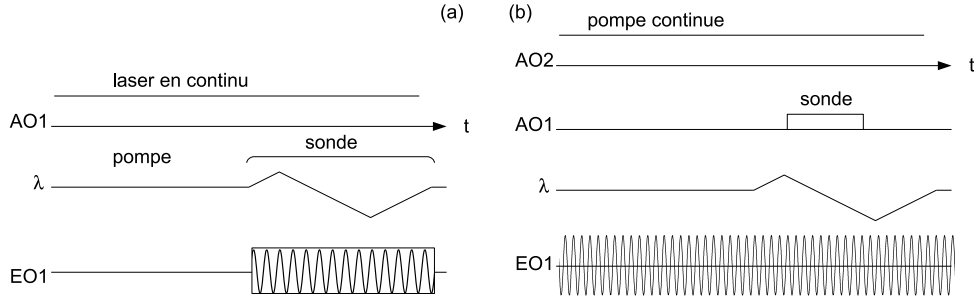


FIG. 3.15 – Séquence des différentes modulations appliquées pour les expériences de creusement spectral en continu avec un laser (a) (dispositif 3.11.a) et deux lasers (b) (dispositif 3.11.b), taux de répétition 10 Hz, AO1 et AO2 signaux appliqués aux acousto-optiques, EO1 signal appliqué au modulateur électro-optique, et λ signal de balayage en fréquence du laser.

fréquence sont détaillées sur la figure 3.15.b.

Nous avons également réalisé ce type d'expérience avec un seul laser selon la figure 3.11.a. Dans ce cas, le laser n'est pas modulé en amplitude. Sa fréquence est fixe la majorité du temps, induisant un pompage quasi-continu. Périodiquement sa fréquence est balayée, ce qui correspond à la phase temporelle de sonde selon la figure 3.15.a. Parallèlement la modulation de fréquence n'est appliquée que pendant la phase "sonde" de balayage.

Exemple de spectre et précision

La figure 3.16 (resp. 3.17) présente un exemple de spectre de creusement spectral tel que nous les avons mesurés avec le laser de pompe placé en G (resp.A) (voir figure 2.7 pour la définition des lettres A à G dans le spectre d'absorption).

En pratique, les spectres sont réalisés en plusieurs balayages de la sonde de quelques centaines de MHz, tracés de différentes couleurs sur le spectre. Ce travail de recollage induit une erreur dans le positionnement en fréquence des trous et des anti-trous.

Sur un spectre donné avec l'étalonnage en fréquence du Fabry Péro, la précision sur les écarts en fréquence est de ± 1 MHz. Mais du fait du recollage, des erreurs plus importantes peuvent apparaître pour les structures éloignées du pic principal. L'erreur relative sur la position en fréquence des trous et des anti-trous est de l'ordre de 5%.

Un nouveau dispositif expérimental, mis en place pour la démonstration de la transparence induite permet une meilleure précision sur le désaccord en fréquence entre pompe et sonde. Dans ce dispositif la sonde est obtenue par modulation d'amplitude du faisceau laser. Une bande latérale est alors filtrée. La différence de fréquence pompe-sonde est alors donnée par la fréquence de la modulation appliquée, qui est contrôlée par un générateur radiofréquence et connue à mieux que 1 Hz (voir chapitre 5.3). Les expériences n'ont pas encore été faites, nous avons juste vérifié la position des structures qui ont attiré notre

intérêt et ainsi pu juger de la qualité de l'étalonnage Fabry Péro. t.

Résultats expérimentaux

Les graphes 3.18 et 3.19 représentent respectivement les trous et les anti-trous dans le spectre d'absorption d' $^{167}\text{Er}^{3+} : \text{Y}_2\text{SiO}_5$ en fonction de la fréquence dont l'origine est prise à la fréquence de la pompe. Chaque ligne représente une position de la pompe différente dans le spectre d'absorption.

Les trous Comme on peut le voir sur la figure 3.18, la densité des trous que nous avons mesurés est assez impressionnante. Nous avons observé beaucoup plus de trous que les 2×120 escomptés. Il faut noter cependant qu'entre les différents spectres nous ne sommes pas à l'abri d'une accumulation d'erreur qui fait qu'on identifie à deux fréquences différentes le même trou. Inversement deux trous différents peuvent également être confondus. Par ailleurs les spectres ayant été pris en continu, nous ne sommes pas à l'abri d'une erreur de pompage, et certaines structures identifiées comme des trous pourraient bien être des anti-trous.

Il n'est pas possible de reconstituer le diagramme d'énergie du niveau excité à partir de ces données, car plusieurs points sont défavorables :

- Tout d'abord le grand nombre de niveaux hyperfin rend la procédure complexe.
- Ensuite nous avons un spectre large d'éclatements hyperfins : ils ne sont pas réguliers comme dans les cas d'interactions au second ordre comme pour $\text{Pr}^{3+} : \text{Y}_2\text{SiO}_5$ par exemple. Des écarts hyperfins à la fois petits et grands se mélangent, il est donc difficile d'attribuer les $\delta_{i,i+1}$.
- Certains éclatements hyperfins (de l'excité comme du fondamental) sont de l'ordre de l'élargissement inhomogène. Cette observation, confirmée par l'étude des anti-trous, rend les spectres de creusement spectral dépendant de la position de la pompe dans le profil d'absorption et non symétriques par rapport à cette pompe.
- Enfin (et surtout) l'incertitude sur la position en fréquence des structures observées est trop grande. Dans la procédure de recherche, il est nécessaire de faire la somme les positions en fréquence des trous et de chercher si un trou a été observé à la fréquence somme. Les erreurs expérimentales s'accumulant, elles rendent impossible l'identification du trou à la fréquence somme. De plus il n'est pas impossible d'avoir des écarts hyperfins égaux à l'incertitude de mesure près, ce qui vient encore compliquer le problème.

Les anti-trous La figure 3.19 présente les anti-trous en fonction de leur écart en fréquence par rapport à la pompe. Ils sont beaucoup moins nombreux que les trous. Lorsque la pompe est en F nous n'avons pu mesurer aucun anti-trou. La première colonne des tableaux A.1 à A.8 regroupe les positions en fréquence des anti-trous pour différentes position de la pompe dans la largeur inhomogène. Dans ces tableaux l'abréviation (Imp) après la fréquence d'un anti-trou signale que cet anti-trou a été observé lors des expériences

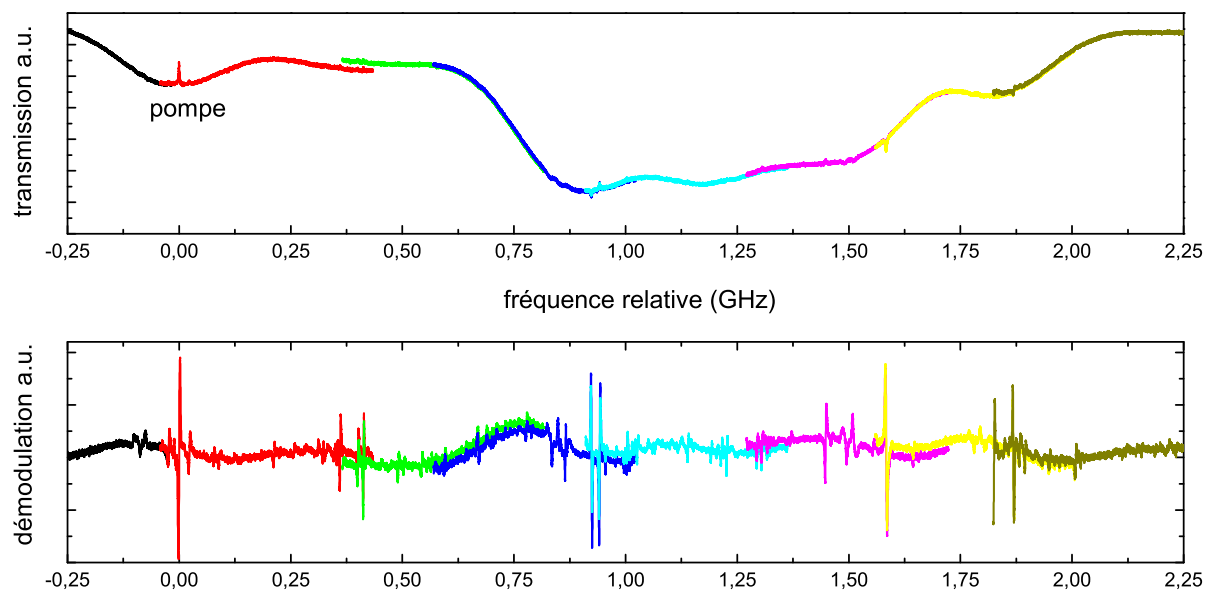


FIG. 3.16 – Spectre de creusement spectral obtenu avec la pompe en G.

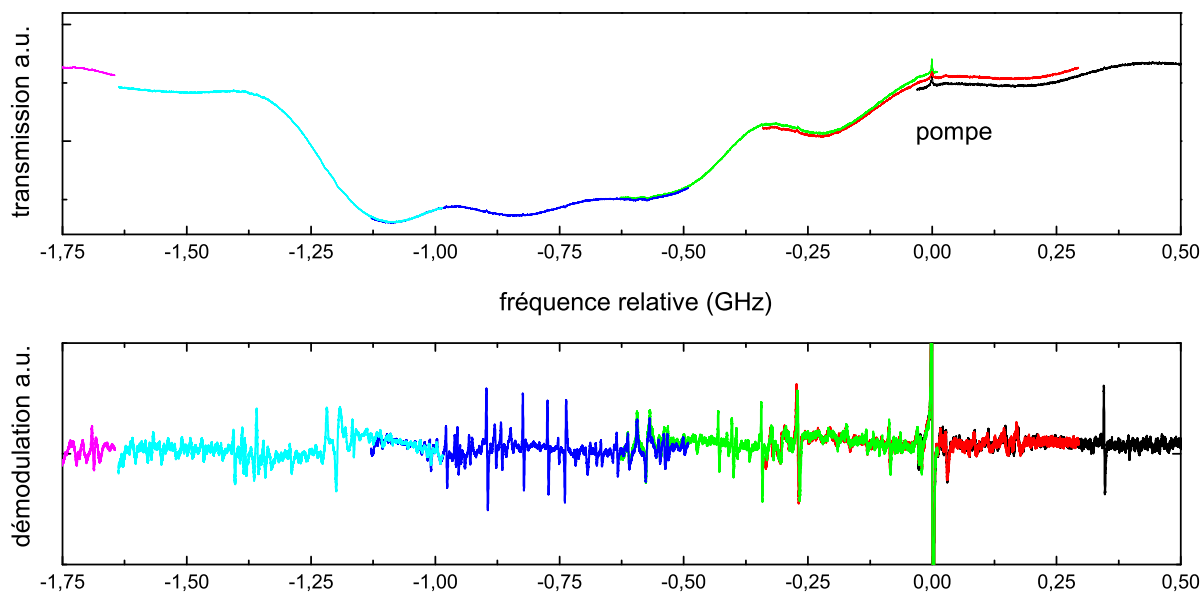


FIG. 3.17 – Spectre de creusement spectral obtenu avec la pompe en A.

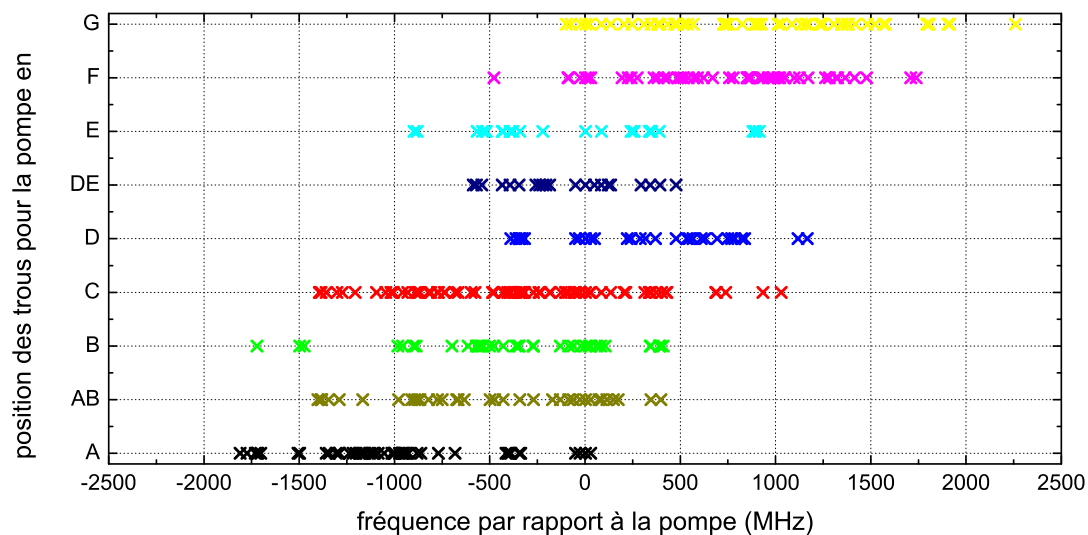


FIG. 3.18 – Graphe de tous les trous en fonction de leur écart en fréquence par rapport à la pompe et pour différentes positions de la pompe dans le spectre d'absorption (A à G).

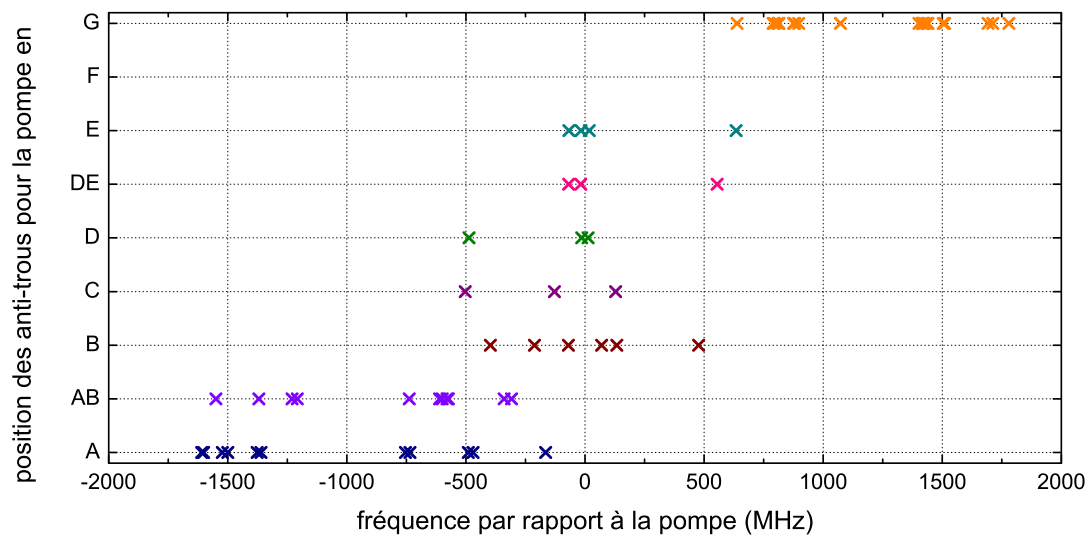


FIG. 3.19 – Graphe de tous les anti-trous en fonction de leur écart en fréquence par rapport à la pompe et pour différentes positions de la pompe dans le spectre d'absorption (A à G).

en impulsionnel ².

Nous avons pu mesurer une cinquantaine d'anti-trous, c'est-à-dire beaucoup moins que prévu par l'analyse simple développée en introduction. C'est peut être mieux ainsi, mais pourquoi n'observons nous pas assez d'anti-trous ?

Plusieurs raisons doivent être invoquées. Contrairement au cas présenté en introduction, la largeur inhomogène Γ_{inh} n'est pas nettement supérieure à l'éclatement hyperfin. Notre cristal d' $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ est dans un cas intermédiaire où Γ_{inh} est de l'ordre de grandeur d'un éclatement hyperfin. Dans ce cas toutes les configurations d'une classe d'ions ne sont pas excitées en même temps. Par ailleurs la différence d'amplitude entre les anti-trous et le fait que certains seulement sont visibles indique que les probabilités de transitions entre les différents niveaux hyperfins ne sont pas toutes du même ordre de grandeur. Si nous n'avons vu dans $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ aucune règle de sélection dépendant de la polarisation des faisceaux à proprement parler, toutes les transitions ne sont pas également permises. Ceci peut permettre d'expliquer le fait qu'il y ait moins d'anti-trous que de trous, puisqu'ils font intervenir deux transitions.

Une des conséquences du fait que la largeur inhomogène Γ_{inh} est du même ordre de grandeur que l'éclatement hyperfin est que les anti-trous mesurés en continu ne sont en général pas placés de manière symétrique par rapport à la pompe. Les paires d'anti-trous symétriques se retrouvent seulement aux basses fréquences ± 13 MHz, ± 18 MHz, ± 66 MHz et ± 127 MHz. Cela confirme que l'élargissement inhomogène est de l'ordre de 250 MHz. Les expériences de résonance paramagnétique électronique confirment que cette largeur est effectivement inférieure à l'éclatement hyperfin total de $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$.

Enfin, les anti-trous vus en régime impulsionnel sont peu nombreux. En effet le système est moins saturé lors de ces expériences. Ces anti-trous visibles même avec une faible saturation correspondent aux transitions bénéficiant de fortes forces d'oscillateur et grande dégénérescence, ce qui va dans le sens de pseudo règles de transition. Ce sont ces systèmes qui vont nous intéresser particulièrement pour réaliser la transparence induite.

Conclusions

La complexité de la structure hyperfine de $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ est bien confirmée par les spectres de creusement spectral et les difficultés d'interprétation que nous avons rencontrées. Il paraît impossible de reconstituer le diagramme d'énergie à partir des expériences d'optique seule. Mais, comme nous le verrons au paragraphe 3.3.3, associées aux expériences de résonance paramagnétique électronique ces expériences de creusement spectral permettent d'avancer vers l'identification de système en Λ .

Pour résumer, nous avons pu observer une cinquantaine d'anti-trous et plus de 200 trous. Un élargissement inhomogène de l'ordre de 250 MHz a pu être estimé en analysant les spectres. Un cristal d' Y_2SiO_5 dopé au même taux à l'erbium naturel (figure 2.7.b) présente un élargissement inhomogène de 500 MHz. Je ne connais pas de raison physique

²Nous n'avons pas refait tous les spectres en impulsionnel, l'absence de l'abréviation Imp ne signifie donc pas que l'anti-trou est invisible en impulsionnel

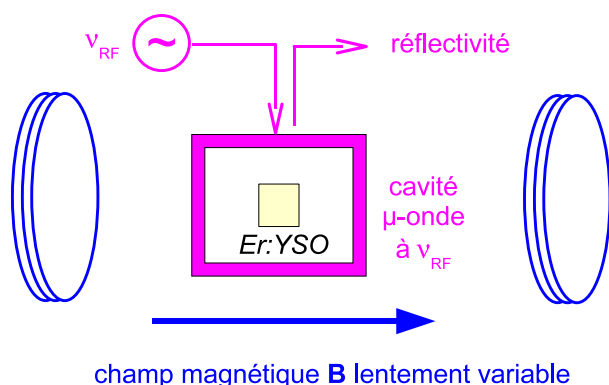


FIG. 3.20 – Schéma de principe du dispositif expérimental utilisé en résonance paramagnétique électronique.

pouvant expliquer cette différence, on peut simplement évoquer la qualité de la croissance cristalline.

3.3.2 Résonance paramagnétique électronique

Les expériences ont été menées au Laboratoire de Chimie Appliquée à l'Etat Solide sous la direction d'Olivier Guillot-Noël. L'échantillon utilisé est un cristal d'un millimètre cube d' Y_2SiO_5 dopé à l'erbium naturel. Le dopage naturel permet d'avoir à la fois :

- un signal issu des isotopes pairs de nombre de masse 162, 164, 166, 168 et 170 (abondance naturelle 77.05 %) de moment nucléaire nul $I = 0$,
- et un signal issu de l'isotope impair de nombre de masse 167 (abondance naturelle 22.95 %) de moment nucléaire $I = 7/2$, qui nous intéresse plus particulièrement.

Les spectres de RPE sont donc la superposition :

- du spectre dû aux isotopes pairs composé d'une seule raie intense et correspondant à l'interaction Zeeman électronique
- et du spectre dû à l'isotope 167 sur lequel apparaît la structure hyperfine de cet isotope de part et d'autre de la raie précédente.

Ce dernier spectre, que nous appellerons spectre hyperfin, est composé de $2I + 1 = 8$ raies correspondant à des transitions "permises" selon la règle de sélection $\Delta m_I = 0$, $\Delta m_S = \pm 1$ (éq. (3.20)). Cependant, du fait de la basse symétrie ($C1$) des sites cristallographiques dans lequel les ions erbium sont substitués, l'interaction quadrupolaire est à prendre en compte également. On verra également apparaître sur ce spectre hyperfin des transitions interdites telles que $\Delta m_I = \pm 1, \pm 2$.

Dispositif expérimental

Le spectromètre utilisé au LCAES est un spectromètre Bruker Elexsys E 500 qui travaille en bande X, avec une onde radio fréquence de $\nu_{RF}=9.3$ GHz. Le schéma de principe du spectromètre est représenté sur la figure 3.20. L'échantillon est un cube de 1 mm de coté dont les faces sont orientées selon les axes optiques D_1 , D_2 et b . Il est placé dans une cavité micro-onde résonante à ν_{RF} . Le tout est placé dans un champ magnétique externe statique $\mathbf{B}$ lentement variable (par rapport à ν_{RF}) et créé par un électro-aimant. (Le champ maximal accessible est de l'ordre de 1 Tesla.)

L'échantillon est maintenu dans un porte échantillon Perspex qui permet de faire des rotations par pas de $10^\circ \pm 1^\circ$. Il est placé dans un cryostat Oxford à flux d'hélium. La température du cristal est maintenue autour de 6 K, température à laquelle seul le doublet de Kramers fondamental $^4I_{15/2}(0)$ est peuplé. Pour ce niveau de Kramers, M_J vaut $\pm 15/2$ ce qui justifie qu'on puisse traiter le problème à l'aide d'un spin fictif $S = 1/2$.

Ce spectromètre commercial comprend un système de détection sophistiqué qui permet d'enregistrer la réflectivité de la puissance RF par la cavité micro-onde en fonction du champ externe $\mathbf{B}$ appliqué. Cette réflectivité est nulle lorsque l'échantillon n'est pas absorbant, c'est à dire hors résonance. Lorsque la condition de résonance (équation (3.16)) est remplie, le matériaux est absorbant, la réflectivité de la cavité augmente, un signal RF est détecté. Pour augmenter la détectivité, le champ magnétique externe est modulé à la fréquence de 100 kHz. Le signal RPE est le signal démodulé et correspond à la dérivée du spectre d'absorption en fonction du champ magnétique (voir par exemple figure 3.21).

Exemple de spectres de résonance paramagnétique électronique dans $^{nat}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$

Pour la majorité des orientations du champ magnétique les spectres obtenus ont des caractéristiques clairement identifiables. Un spectre typique obtenu pour une orientation quelconque du champ $\mathbf{B}$ dans le plan (b, D_1) est reproduit sur la figure 3.21. On y voit :

- 4 raies principales pour les isotopes pairs à spin nucléaire nuls.
- à chacune de ces raies correspond un spectre hyperfin pour l'isotope 167, composé de 8 raies hyperfines et d'un certain nombre de raies interdites.

Ces 4 signaux caractéristiques correspondent aux deux sites cristallographiques dans lesquels l'ion erbium se substitue. Dans les plans (b, D_1) et (b, D_2) , les deux sites cristallographiques présentent une inéquivalence magnétique qui se traduit par l'apparition de deux signaux pour chaque site. Cette inéquivalence magnétique provient de la symétrie du cristal qui présente pour un site donné un axe C_2 de rotation. Dans la maille unitaire, les sites de substitution de l'ion Er^{3+} présentent donc différentes orientations qui apparaissent lorsque l'on applique un champ magnétique suivant une direction particulière. Ces sites magnétiquement inéquivalents deviennent magnétiquement équivalents lorsque le champ magnétique est parallèle à D_1 , D_2 et b ainsi que dans le plan $(D_1 D_2)$: chaque site cristallographique ne donne alors qu'un seul signal.

Sur la figure 3.22, le spectre correspondant au site 2 pour une orientation du champ $\mathbf{B}$ parallèle à l'axe D_2 est représenté. On peut y voir :

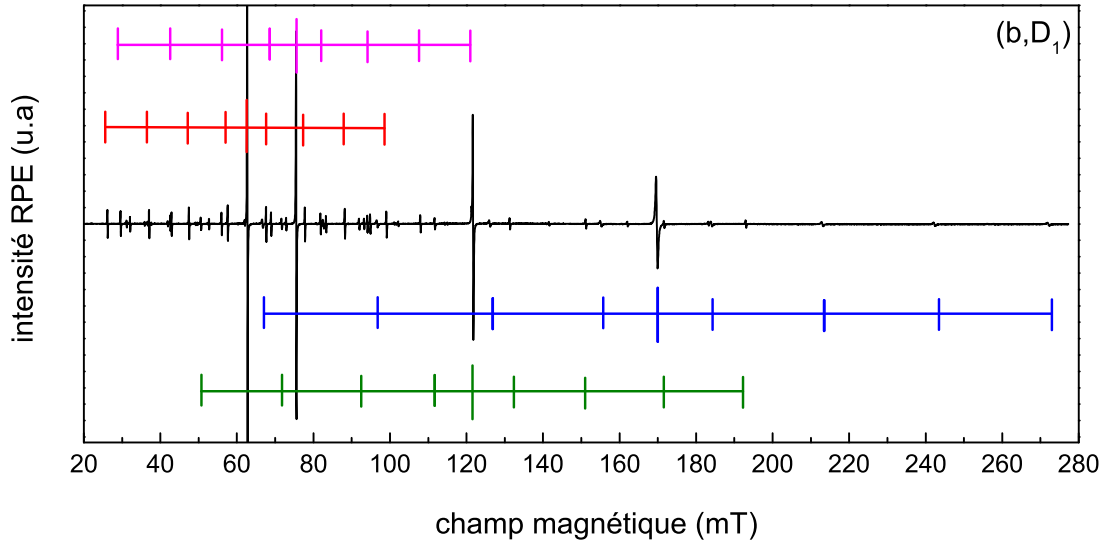


FIG. 3.21 – Exemple de spectre de RPE d' $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ pour un champ magnétique $\mathbf{B}$ dans le plan (b, D_1) . Les 4 raies principales correspondent au signal RPE des isotopes pairs de l'erbium pour chacun des sites cristallographiques magnétiquement inéquivalents. À chacune de ses raies est associée un spectre hyperfin appartenant à l'isotope 167 placé dans le même site.

- 8 raies permises $\Delta m_I = 0$ marquées par un trait continu,
- des raies interdites $\Delta m_I = \pm 1$ marquées par un trait discontinu apparaissant au milieu des raies permises. Ces raies sont dédoublées, ce qui est caractéristique de l'interaction quadrupolaire. C'est la première fois à notre connaissance que le dédoublement des raies interdites, due à l'interaction quadrupolaire, est observé dans un cristal dopé aux ions de terre rare. Ceci est principalement dû au faible dopage du cristal qui limite d'élargissement inhomogène des niveaux hyperfins.
- des raies interdites $\Delta m_I = \pm 2$ très proches de la raie permise (agrandissements).

Ces transitions permises et interdites sont détaillées sur diagramme d'énergie de la figure 3.23.

Pour certaines orientations du champ magnétique les spectres RPE sont plus compliqués (figure 3.24). Une partie du spectre a migré vers les forts champ magnétique, ce qui correspond à des orientations pour lesquelles le facteur g est très faible. On remarque que ces spectres à forts champ ne présentent plus la structure typique des spectres hyperfins. Dans ces orientations pour le site concerné, l'interaction quadrupolaire n'est plus négligeable par rapport à l'interaction hyperfine et influence fortement la position des transitions permises.

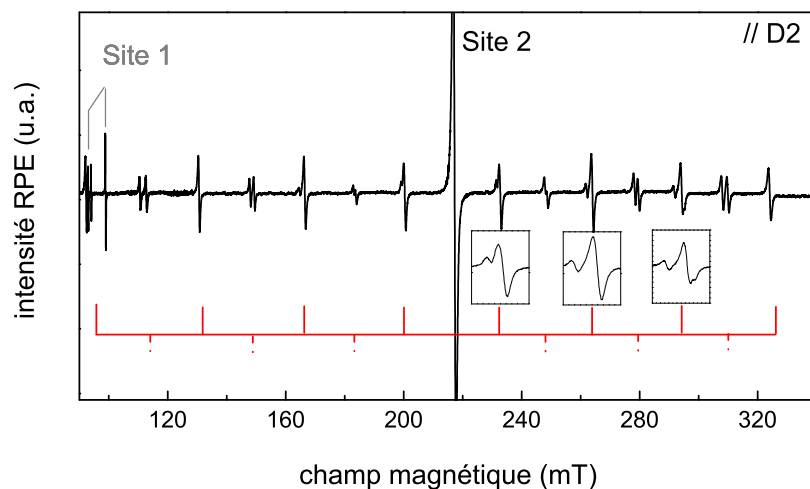


FIG. 3.22 – Spectre de RPE du site 2 pour un champ magnétique $\mathbf{B}$ parallèle à D_2 . Les transitions hyperfines permises sont matérialisée par un trait continu, les transitions interdites $\Delta M_I = \pm 1$ par un trait discontinu. Les insertions sont des agrandissement des transitions permises à coté desquelles on voit les transitions interdites $\Delta M_I = \pm 2$.

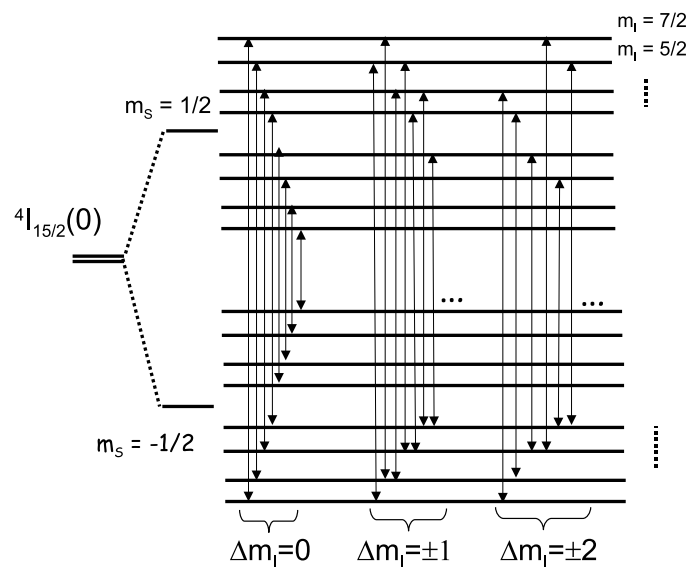


FIG. 3.23 – Diagramme de niveaux d'énergie de l'ion Er^{3+} sondé par RPE. Les transitions permises $\Delta m_I = 0$ et les transitions interdites à $\Delta m_I = \pm 1$ et $\Delta m_I = \pm 2$ sont indiquées. Toutes les transitions interdites ne sont pas représentées.

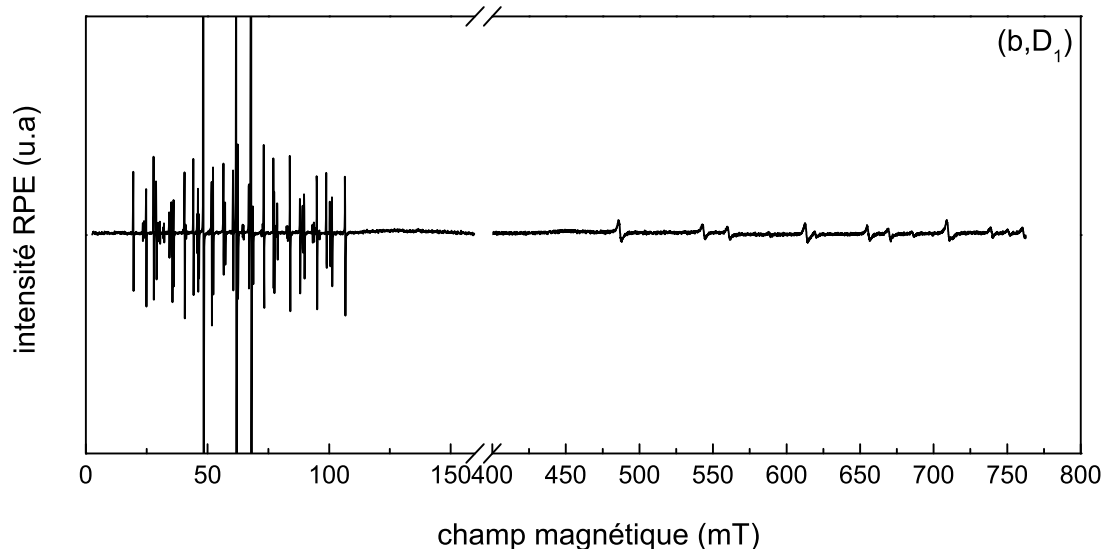


FIG. 3.24 – Exemple de spectre de RPE d’Er³⁺:Y₂SiO₅ pour un champ magnétique **B** dans le plan (b, D_1) . Trois spectres hyperfins typiques associés à une raie centrale sont reconnaissables à bas champ magnétique, le reste du spectre a migré vers les forts champs magnétiques.

Analyse des spectres

Le traitement des spectres de RPE est le travail d’Olivier Guillot–Noël et de Philippe Goldner du LCAES. Les détails de ce travail ont été publiés dans la référence [64]. L’analyse est compliquée par la basse symétrie des sites de substitution des ions erbium, puisque les différents tenseurs n’ont à priori pas les même axes propres (ce qui a été vérifié expérimentalement).

Principe du traitement des données L’idée est de déterminer les 3 tenseurs **g**, **A** et **Q** de l’interaction Zeeman et hyperfine et quadrupolaire de l’équation (3.21) :

$$H = \beta_e \mathbf{B} \cdot \mathbf{g} \cdot \mathbf{S} + \mathbf{I} \cdot \mathbf{A} \cdot \mathbf{S} + \mathbf{I} \cdot \mathbf{Q} \cdot \mathbf{I} - \beta_n g_n \mathbf{B} \cdot \mathbf{I}.$$

L’interaction Zeeman nucléaire est connue et prise en compte. Cela correspond à 6 paramètres pour **g**, 6 paramètres pour **A** qui sont supposés symétriques et 5 paramètres pour **Q** (symétrique et de trace nulle). Pour retrouver ces paramètres, on utilise les spectres du type de ceux présentés précédemment qui ont été pris tous les 10° dans trois plans orthogonaux, les plans cristallographiques (b, D_1) , (b, D_2) et (D_1, D_2) . Pour chaque angle, on dispose de la position en champ magnétique de la raie centrale ($I = 0$), des transitions hyperfines permises $\Delta m_I = 0$ et des transitions interdites $\Delta m_I = \pm 1, \pm 2$. En utilisant la forme de l’hamiltonien, équation (3.21), on peut simuler la position de toutes ces transi-

tions. La comparaison entre mesure et simulation permet de générer une fonction d'erreur à optimiser pour trouver les paramètres recherchés.

Dans un premier temps, la raie centrale des spectres correspondant aux isotopes pairs ($I = 0$) est utilisée pour déterminer le tenseur $\mathbf{g}$. La position en champ B_0 de cette résonance vérifie la condition (3.18),

$$h\nu_{RF} = g(\theta, \phi)\beta_e B_0.$$

L'analyse de $g^2(\theta, \phi)$ dans les trois plans cristallographiques permet de reconstituer le tenseur $\mathbf{g}$ qui est ensuite introduit comme une constante dans l'hamiltonien de l'isotope 167.

La deuxième étape consiste à déterminer $\mathbf{A}$ et $\mathbf{Q}$, soit 11 paramètres. Compte tenu de la présence d'orientations critiques pour lesquelles les spectres ne sont pas interprétables en considérant l'interaction quadrupolaire comme une perturbation de l'interaction hyperfine (spectre 3.24), la simulation utilise l'hamiltonien de l'équation (3.21). La quantité à optimiser est

$$\text{rms}_{\text{norm}} = \left[\frac{1}{N-11} \sum_{i=1}^N \left(\frac{B_i^{\text{exp}} - B_i^{\text{calc}}}{\epsilon_i} \right)^2 \right]^{1/2} \quad (3.26)$$

où les B_i^{exp} sont les positions expérimentales des transitions pour les différentes orientations du champ, données avec la précision ϵ_i (qui peut être mauvaise pour certaines orientations). Les B_i^{calc} sont les positions calculées à partir de l'hamiltonien (3.21) en supposant un jeu de 11 paramètres. 1109 positions ont été utilisées pour le site 1, 1059 pour le site 2. Pour avoir un jeu de paramètres initial permettant une bonne convergence de la simulation, une approche perturbative en deux étapes a été adoptée :

1. le tenseur $\mathbf{A}$ est simulé en réduisant l'hamiltonien aux l'interactions Zeeman électronique ($\mathbf{g}$ étant déterminé) et hyperfine et optimisé par comparaison avec les transitions hyperfines permises,
2. le tenseur $\mathbf{Q}$ est ensuite simulé, $\mathbf{g}$ et $\mathbf{A}$ étant fixés, en utilisant l'écart en fréquence des deux raies interdites $\Delta m_I = \pm 1$ (qui ne dépend que de $\mathbf{Q}$)

Enfin pour confirmer ces résultats, les spectres entiers (et pas seulement la position des résonances) ont été simulés selon l'équation (3.21) pour des directions particulières du champ et comparées avec les spectres expérimentaux. Trois exemples de ces simulations sont données sur la figure 3.28.

Interaction Zeeman électronique Les figures 3.25 représentent les variations angulaires de la position de la raie centrale des isotopes à spin nucléaire nul en fonction du champ magnétique pour les 2 sites cristallographiques. Les lignes continues représentent la position calculée de ces raies, obtenue avec l'équation (3.17) et reproduisent bien les points expérimentaux. Dans le plan (D_1, D_2) , perpendiculaire à l'axe de symétrie C_2 de la maille cristalline, chaque site cristallographique ne donne qu'un signal. Dans le plan (b, D_1) on observe deux variations angulaires semblables (mêmes extréma) pour chaque

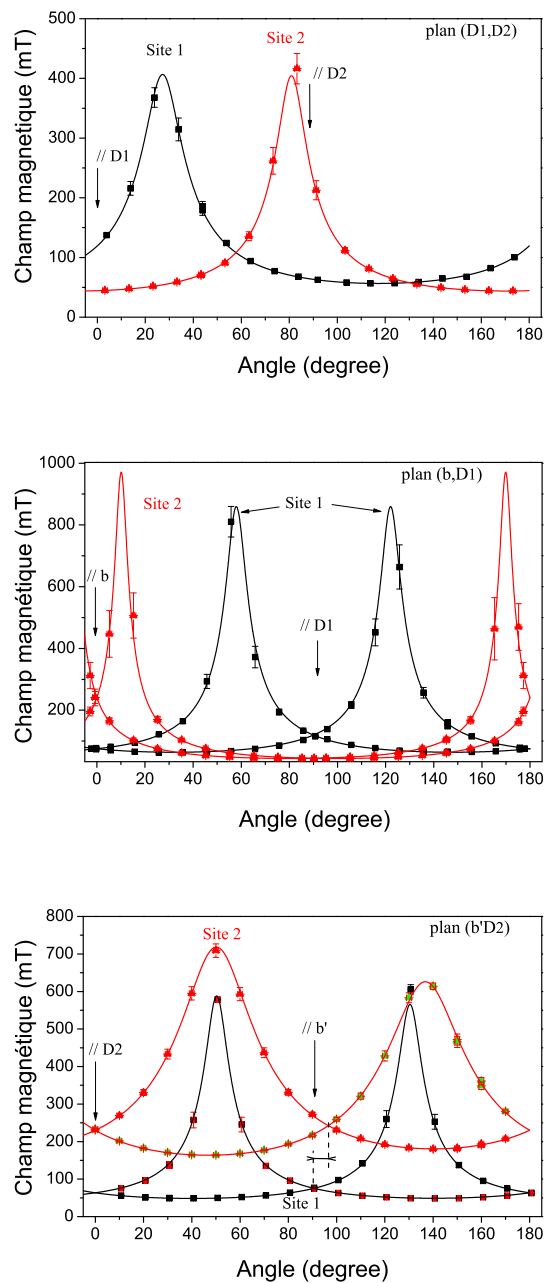


FIG. 3.25 – Transitions RPE en mT des isotopes à spin nucléaire nul en fonction de l'orientation du champ magnétique dans les plans d'étude (D_1, D_2) , (b, D_1) et (b, D_2) .

site cristallographique, qui se déduisent l'une de l'autre par une symétrie axiale, ainsi qu'une dégénérescence le long de deux orientations perpendiculaires, qui correspondent aux axes cristallographiques. Ces caractéristiques ne se retrouvent pas dans le troisième plan d'étude (b, D_2) . Cela provient d'une désorientation du cristal par rapport à l'axe du champ magnétique $\mathbf{B}$. Ces mesures correspondent à une variation angulaire dans un plan (b', D_2) , avec un axe b' écarté de 1.1° du plan (b, D_1) . Cette désorientation peut venir d'un mauvais alignement du cristal par rapport au champ, ou d'une erreur d'orientation des faces du cristal. Il est pris en compte dans le reste de la simulation.

Le travail de spectroscopie optique sous champ magnétique de Thomas Böttger est utilisé pour différencier deux sites cristallographiques 1 et 2 qui ont des résonances optiques bien différenciées [36, 68]. Seuls les résultats pour le site 1 sont présentés par la suite, car c'est celui qui nous intéresse pour les expériences d'optique. Les résultats pour le site 2 se trouvent dans la référence [64].

Le tenseur $\mathbf{g}_1$ obtenu pour le site 1 dans les axes (D_1, D_2, b) est :

$$\mathbf{g}_1 = \begin{pmatrix} 2.92 & -3.08 & -3.68 \\ -3.08 & 8.19 & 5.96 \\ -3.68 & 5.96 & 5.52 \end{pmatrix}_{(D_1, D_2, b)} \quad (3.27)$$

Interactions hyperfine et quadrupolaire La simulation donne une valeur rms_{norm} de 0.9288 pour le site 1. Cela signifie que les valeurs calculées sont dans les barres d'erreur expérimentales. Les variations angulaires des 8 transitions hyperfines sont présentées sur les figures 3.26. Les figures 3.27 représentent les variations angulaires de l'éclatement des transitions interdites dû à l'interaction quadrupolaire.

Les tenseurs $\mathbf{A}$ et $\mathbf{Q}$ issus de la simulation sont, pour le site 1 :

$$\mathbf{A}_1 = \begin{pmatrix} 69.35 & -580.73 & -248.83 \\ -580.73 & 696.30 & 682.49 \\ -248.83 & 682.49 & 495.54 \end{pmatrix}_{(D_1, D_2, b)}, \quad (3.28)$$

et

$$\mathbf{Q}_1 = \begin{pmatrix} 21.40 & -8.18 & -15.27 \\ -8.18 & 3.79 & 0.60 \\ -15.27 & 0.60 & -25.20 \end{pmatrix}_{(D_1, D_2, b)}. \quad (3.29)$$

$\mathbf{A}_1$ et $\mathbf{Q}_1$ sont exprimés en MHz.

Simulation des spectres Afin de valider la simulation, les spectres entiers ont été simulés pour des directions quelconques du champ magnétique. Les figures 3.28 présentent les résultats expérimentaux et simulés pour un champ parallèle aux axes cristallographiques pour lesquels les sites magnétiquement inéquivalents sont dégénérés. La position des transitions hyperfines ainsi que leur intensité sont bien reproduites dans leur ensemble. Des différences subtiles persistent, notamment sur l'intensité des transitions interdites $\Delta m_I = \pm 2$

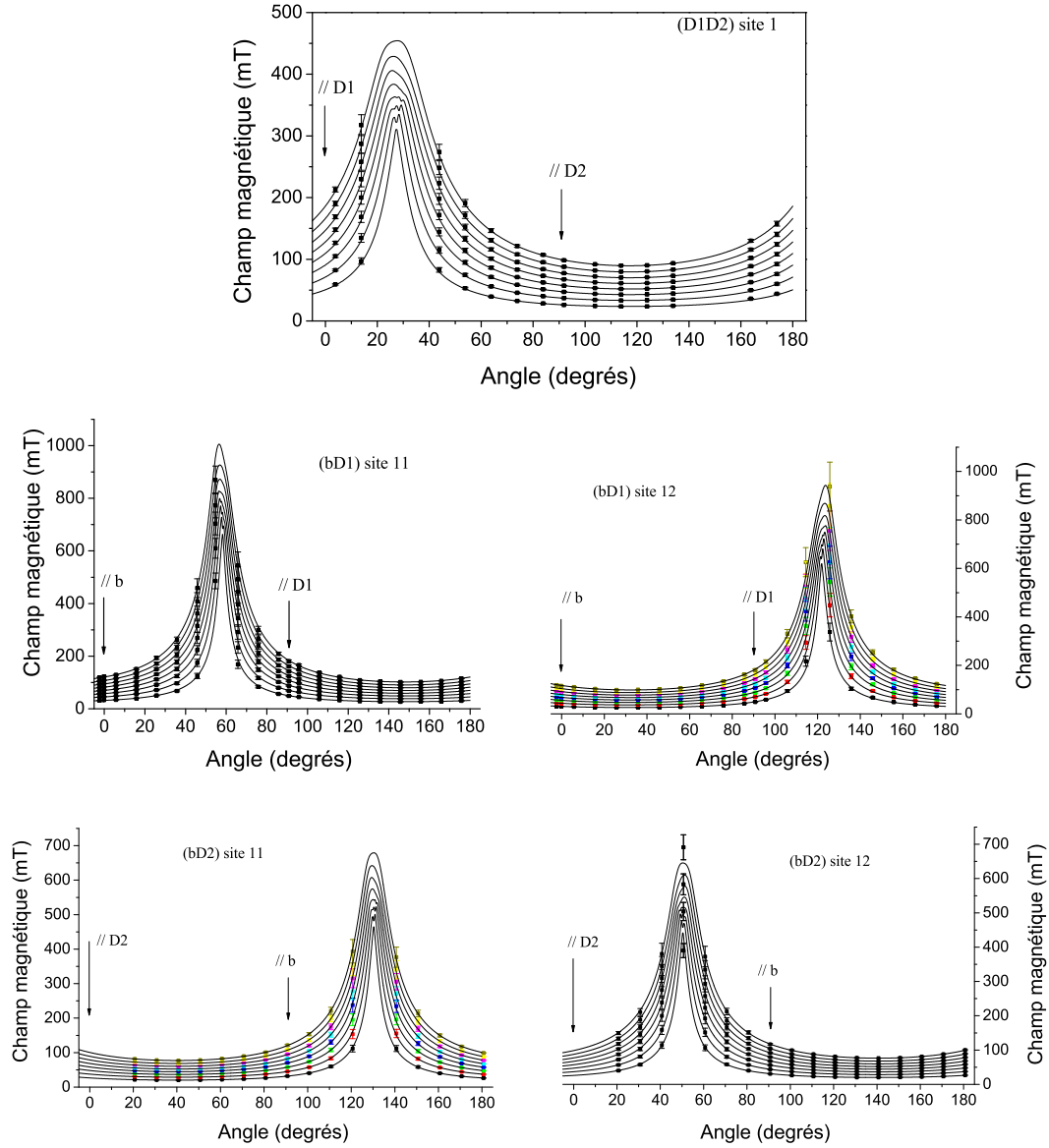


FIG. 3.26 – Transitions hyperfines à $\Delta m_I = 0$ pour le site 1 en mT en fonction de l'orientation du champ magnétique dans les plans (D_1, D_2) , (b, D_1) et (b', D_2) .

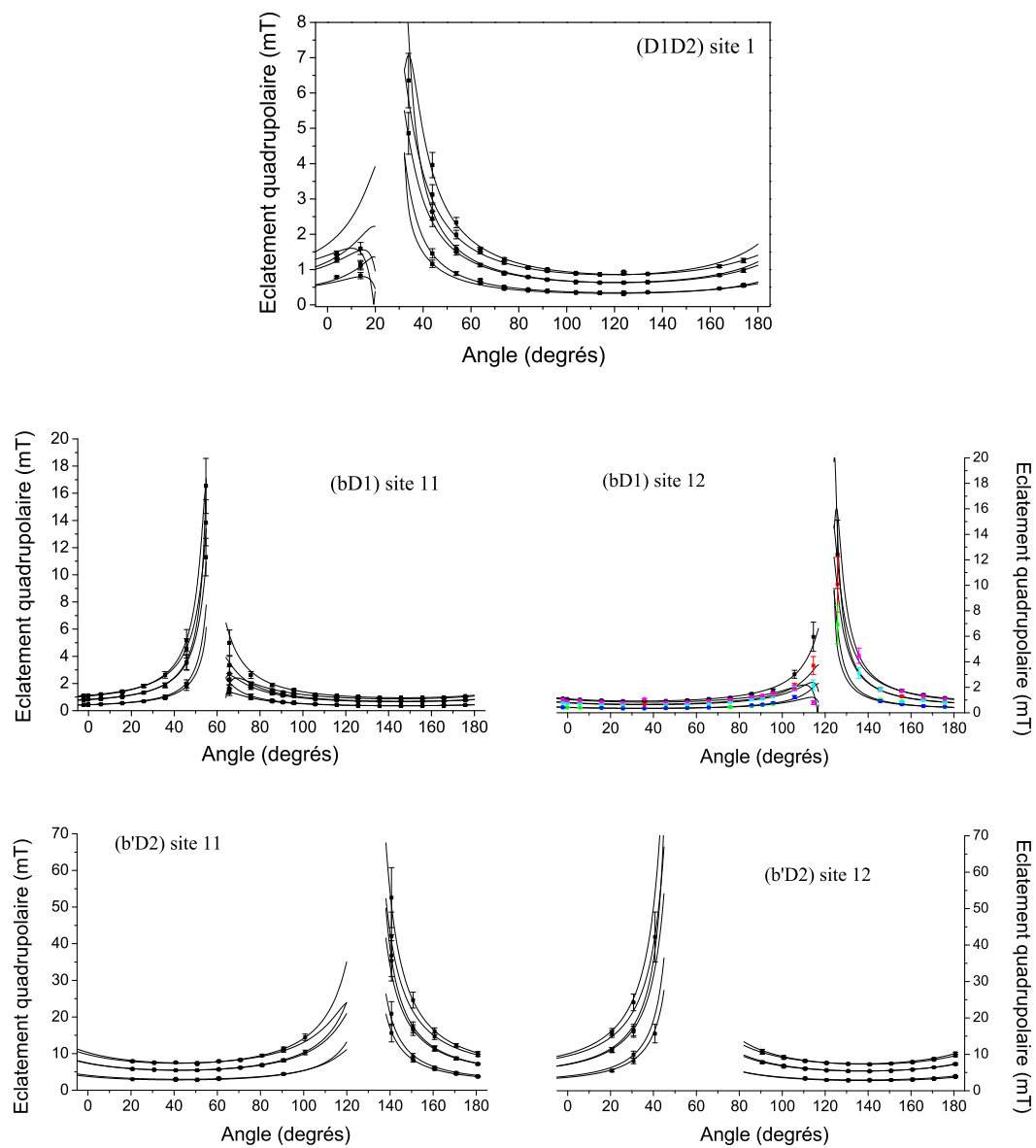


FIG. 3.27 – Éclatements quadrupolaires pour le site 1 en mT en fonction de l'orientation du champ magnétique dans les plans (D_1, D_2) , (b, D_1) et (b', D_2) .

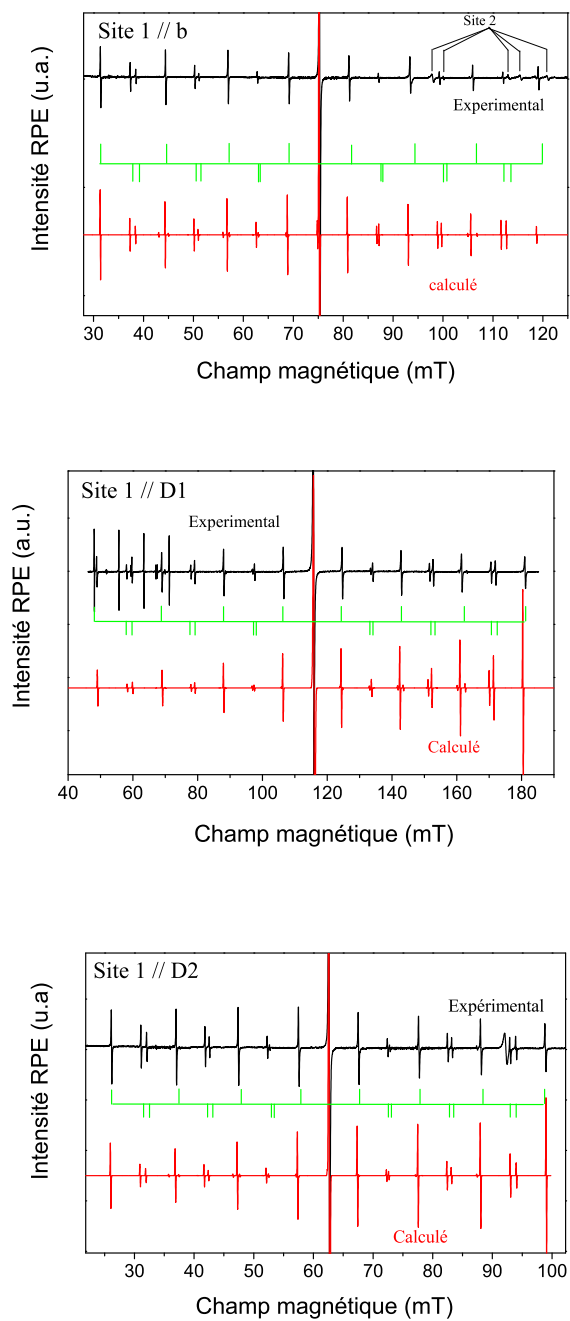


FIG. 3.28 – Spectres RPE expérimentaux et simulés pour des directions du champ magnétique parallèle aux axes cristallographiques dans le cas du site 1.

apparaissant de part et d'autre de la transition hyperfine. Ces différences sont vraisemblablement dues au fait que la largeur des transitions RPE mesurées est très fine. Elle est sujette à un élargissement selon les conditions expérimentales ; notamment sous fort champ magnétique. Ces effets combinés sont difficiles à prendre en compte dans la simulation.

Conclusion Par rapport aux résultats de la bibliographie, cette étude est intéressante sur plusieurs points.

Tout d'abord elle confirme et affine les résultats trouvés pour le facteur g de l'Erbium [37, 36, 68]. La référence [37] donne quelques valeurs de g dont les valeurs maximales $g^{max} = 15.465(1)$ et $14.804(1)$ qui correspondent bien aux résultats pour les valeurs principales de g pour les sites 2 $|g_2^{max}| = 15.54(1)$ et 1 $|g_1^{max}| = 14.83(1)$ [64]. Il y a quelques différences par rapport à la détermination optique des facteurs g de Thomas Böttger. Celui-ci a en effet travaillé dans les 3 plans cristallographiques, qui ne sont pas les axes propres, et a pu souffrir comme dans notre cas d'un léger désalignement. Ce travail donne néanmoins des indications utiles pour discriminer le site 1 du site 2 et donne des résultats pour le facteur g de l'état excité $^4I_{13/2}(0)$.

Par ailleurs l'analyse par RPE de la structure hyperfine n'a jamais été faite dans Y_2SiO_5 et pour cause, la basse symétrie des sites de substitution a nécessité de mettre au point la procédure d'analyse spécifique qui a été brièvement présentée ici. Ce travail est une première rendue possible par la qualité des spectres obtenus, donc la qualité du cristal, et la persévérance d'Olivier Guillot-Noël. Les résultats sur les tenseurs hyperfins et quadrupolaires permettent de déduire la structure hyperfine du doublet de Kramers fondamental de $^{167}Er^{3+}:Y_2SiO_5$ sans champ magnétique avec des incertitudes vraiment faibles comme nous allons le voir maintenant.

Diagramme d'énergie en champ magnétique nul

L'analyse des spectres RPE est basée sur les hamiltoniens de spin [69, 70] qui réduisent l'espace des états des ions $^{167}Er^{3+}$ au sous-espace du doublet de Kramers fondamental $^4I_{15/2}(0)$. Dans ce sous-espace, le moment total vaut $J = 15/2$ et sa projection ne prend que les deux valeurs $m_J = \pm 15/2$. On le remplace donc par un spin fictif $S = 1/2$. Pour calculer l'éclatement hyperfin du doublet de Kramers fondamental $^4I_{15/2}(0)$, on peut rester dans cette approximation et prendre $\mathbf{B} = 0$ dans l'équation (3.21). Cela permet d'accéder aux éclatements hyperfins.

Les éléments de matrices de $H'_0 = H_{hf} + H_Q$ dans la base $|m_S, m_I\rangle$ sont :

$$\langle m'_S, m'_I | H'_0 | m_S, m_I \rangle = \langle m'_S, m'_I | \sum_{i,j} A_{ij} \hat{I}_i \hat{S}_j + \sum_{i,j} Q_{ij} \hat{I}_i \hat{I}_j | m_S, m_I \rangle, \quad (3.30)$$

H_0 est une matrice carrée 16×16 . Ses valeurs propres sont les niveaux d'énergie des états hyperfins du doublet de Kramers fondamental $^4I_{15/2}(0)$. Le tableau 3.1 regroupe les valeurs propres de H_0 , qui sont les niveaux d'énergie hyperfins ainsi que les éclatements hyperfins. La figure 3.29 représente ce diagramme d'énergie. Les incertitudes sur les énergies des

Label	Niveaux d'énergie MHz	Éclatements hyperfins MHz
	0 (15)	
1	0 (15)	
2	724 (2,5)	724 (15,5)
3	728 (2,5)	4 (3,5)
4	1386 (15)	658 (15,5)
5	1446 (5)	60 (16)
6	1919 (15)	473 (16)
7	2341 (8)	422 (17)
8	2620 (8)	279 (11,5)
9	3376 (10)	756 (13)
10	3792 (6,5)	415 (12)
11	3920 (5)	128 (8,5)
12	4630 (4,5)	710 (7)
13	4639 (5)	9 (7)
14	5495 (18)	856 (19)
	5495 (18)	

TAB. 3.1 – Niveaux d'énergie et éclatement hyperfin de $^4I_{15/2}(0)$ issu de l'analyse RPE.

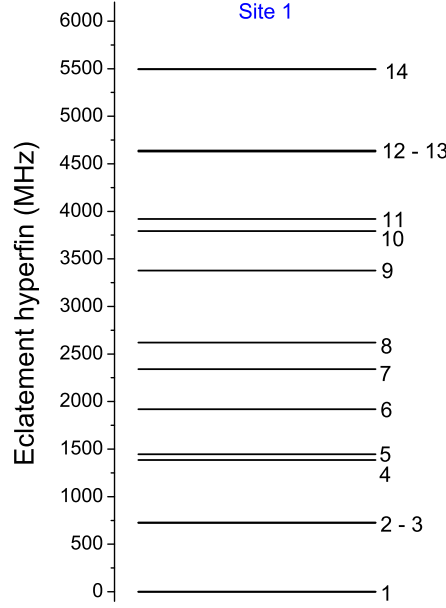


FIG. 3.29 – Diagramme d'énergie du doublet de Kramers fondamental $^4I_{15/2}(0)$ de l'ion Er^{3+} dans le site 1 de Y_2SiO_5 issu de l'analyse RPE.

niveaux hyperfins ont été calculées à partir des incertitudes sur les paramètres des tenseurs **A** et **Q** issus de la simulation. La dépendance entre les paramètres des tenseurs et les niveaux d'énergie étant fortement non linéaire, une méthode statistique a été adoptée [71, 72]. Elle consiste à tirer au hasard de manière répétée les 11 paramètres des tenseurs **A** et **Q** dans un volume de confiance centré sur les valeurs trouvées lors de la simulation. Le spectre sans champ magnétique est simulé pour chaque tirage de ces 11 paramètres. Les incertitudes données dans le tableau 3.1 correspondent à la largeur des distributions des niveaux d'énergie obtenues lors de ces tirages.

Ce diagramme d'énergie présente plusieurs caractéristiques remarquables :

- la simulation prévoit seulement 14 niveaux hyperfins, et non 16 ($= (2S_{eff} + 1)(2I + 1)$). Les niveaux extrêmes sont en effet dégénérés à l'ordre deux, à l'incertitude expérimentale près.
- l'étalement des niveaux hyperfins est très important : 5.5 GHz
- le spectre des éclatements hyperfins est très large : de 4 MHz à 856 MHz

Ces deux dernières caractéristiques viennent de l'importance de l'interaction hyperfine et quadrupolaire et vont donc a priori se retrouver sur l'état excité $^4I_{13/2}(0)$.

Comme souligné dans le chapitre d'introduction aux propriétés des terres rares (chapitre 2), le profil d'absorption linéaire de la transition optique à 1536.1 nm (figure 2.7) rend compte lui aussi de l'importance de l'éclatement hyperfin puisque le spectre s'étale sur plus de 7 GHz, avec une largeur à mi-hauteur de seulement 1 GHz. Les nombreux pics d'ab-

sorption ne correspondent cependant pas à l'éclatement hyperfin du niveaux fondamental déterminé par RPE puisque l'éclatement hyperfin de l'excité intervient également. La population au repos des niveaux hyperfin du fondamental, donnée par la loi de Boltzmann, n'est plus équivalente entre tous les niveaux hyperfins. Le rapport des populations de l'état le plus bas (1) et le plus haut en énergie (14), séparés de $\Delta = 5.5$ GHz, vaut $n_{14}/n_1 = \exp -\Delta/kT = 87\%$ à 2 K.

Par ailleurs, l'élargissement inhomogène optique $\Gamma_{inh} \approx 250$ MHz est effectivement de l'ordre de grandeur des éclatements hyperfins. On comprend dès lors un peu mieux la complexité des spectres de creusement spectral dans $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$, notamment le fait que la position des trous et des anti-trous varie selon la position du laser pompe dans le profil d'absorption.

A titre d'exemple, voici exprimé dans la base $|m_S, m_I\rangle$ les fonctions d'onde correspondant aux deux états de plus basse énergie $|1\rangle$ et $|2\rangle$ séparés de $724.0 \text{ MHz} \pm 15.5 \text{ MHz}$:

$$\begin{aligned}
 |1\rangle = & \begin{array}{llll}
 (0.16 - 0.13i) & |-1/2, -7/2\rangle & +(-0.31 - 0.14i) & |1/2, -7/2\rangle \\
 +(0.15 + 0.11i) & |-1/2, -5/2\rangle & +(0.034 - 0.38i) & |1/2, -5/2\rangle \\
 +(-0.032 + 0.17i) & |-1/2, -3/2\rangle & +(0.28 - 0.05i) & |1/2, -3/2\rangle \\
 +(-0.0079 - 0.057i) & |-1/2, -1/2\rangle & +(0.12 + 0.17i) & |1/2, -1/2\rangle \\
 +(-0.16 - 0.14i) & |-1/2, 1/2\rangle & +(-0.056 - 0.013i) & |1/2, 1/2\rangle \\
 +(-0.075 + 0.27i) & |-1/2, 3/2\rangle & +(-0.17 + 0.017i) & |1/2, 3/2\rangle \\
 +0.39i & |-1/2, 5/2\rangle & +(0.099 + 0.16i) & |1/2, 5/2\rangle \\
 +(-0.11 - 0.32i) & |-1/2, 7/2\rangle & +(0.14 - 0.14i) & |1/2, 7/2\rangle
 \end{array} \quad (3.31)
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 |2\rangle = & \begin{array}{llll}
 (0.21 + 0.089i) & |-1/2, -7/2\rangle & +(0.0068 - 0.36i) & |1/2, -7/2\rangle \\
 +(0.01 - 0.066i) & |-1/2, -5/2\rangle & +(0.079 - 0.054i) & |1/2, -5/2\rangle \\
 +(0.019 + 0.073i) & |-1/2, -3/2\rangle & +(-0.18 - 0.21i) & |1/2, -3/2\rangle \\
 +(0.28 + 0.3i) & |-1/2, -1/2\rangle & +(0.16 - 0.16i) & |1/2, -1/2\rangle \\
 +(0.0088 - 0.23i) & |-1/2, 1/2\rangle & (0.41) & |1/2, 1/2\rangle \\
 +(-0.28 + 0.0038i) & |-1/2, 3/2\rangle & +(-0.067 + 0.035i) & |1/2, 3/2\rangle \\
 +(-0.014 - 0.095i) & |-1/2, 5/2\rangle & +(-0.042 + 0.052i) & |1/2, 5/2\rangle \\
 +(-0.26 + 0.25i) & |-1/2, 7/2\rangle & +(-0.21 - 0.094i) & |1/2, 7/2\rangle
 \end{array} \quad (3.32)
 \end{aligned}$$

Comme on peut le voir les niveaux hyperfins ne sont pas dutout des états purs mais sont des états extrêmement mélangés. Il n'est pas possible de leur attribuer un label du type $|m_S, m_I\rangle$. Il est vraisemblable que les niveaux hyperfins de l'état excité $^4\text{I}_{13/2}(0)$ soient eux aussi extrêmement mélangés. Les pseudo-règles de sélection qui apparaissent plus ou moins dans les spectres de creusement spectral sont donc loin d'être prévisibles théoriquement.

Conclusions

L'étude des spectres de résonance paramagnétique électronique est complexe et a nécessité la mise en place d'un formalisme adapté à la très basse symétrie du site de substitution des ions $^{167}\text{Er}^{3+}$ dans Y_2SiO_5 . La détermination des 3 tenseurs $\mathbf{g}$, $\mathbf{A}$ et $\mathbf{Q}$ des interactions Zeeman, hyperfine et quadrupolaire a été faite pour les deux sites cristallographiques. Pour

le site 1 qui nous intéresse ces résultats ont permis d'obtenir le diagramme d'énergie du niveaux de Kramers fondamental $^4I_{15/2}(0)$ en champ magnétique nul. La structure hyperfine obtenue est extrêmement complexe et les états hyperfins sont loin d'être des états purs. L'avantage d'une configuration aussi complexe est que les règles de sélection sont relâchées. Les probabilités de transitions entre les deux bras des systèmes en Λ formés par les niveaux hyperfins devraient donc être du même ordre de grandeur et de nombreux systèmes en Λ devraient donc pouvoir être exploités dans $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$.

3.3.3 Identification de systèmes en Λ

Le recoupement des résultats des expériences de creusement spectral et des résultats de résonance paramagnétique électronique permet d'identifier les anti-trous qui correspondent aux systèmes en Λ . Le tableau 3.2 présente toutes les fréquences pour lesquelles on peut théoriquement mesurer un anti-trou en Λ d'après les niveaux hyperfins issus de l'analyse RPE.

Les deuxième et troisième colonnes des tableaux reportés dans les annexes A.1 à A.8 présentent les anti-trous mesurés pour différentes positions de la pompe, ainsi que les transitions entre niveaux hyperfins auxquelles ils peuvent correspondre dans une barre d'erreur de 10 MHz et 20 MHz respectivement. Compte tenu des incertitudes sur la position des anti-trous mesurés optiquement par creusement spectral et des incertitudes sur les niveaux hyperfins issus de l'analyse RPE, il n'est pas toujours évident d'attribuer les anti-trous à une seule transition hyperfine. C'est pourquoi deux gammes de recouvrements à ± 10 MHz et ± 20 MHz sont présentées.

Nombre d'anti-trous mesurés en creusement spectral ne sont associés à aucune transition en Λ . Ils correspondent vraisemblablement à une combinaison d'éclatements hyperfins du fondamental et de l'excité. De la même manière, il n'est pas impossible qu'un anti-trou associé à une transition en Λ , corresponde en fait à une combinaison d'éclatements hyperfins du fondamental et de l'excité (avec un δ^e petit).

On peut noter que les niveaux impliqués dans les anti-trous ne sont pas les mêmes selon la position de la pompe dans le spectre. Pour un laser pompe en A, ce sont les niveaux les plus bas en énergie qui sont majoritairement en correspondance avec les anti-trous, alors que pour un laser pompe en G ce sont les niveaux hyperfins de haute énergie. Ceci est plutôt en accord avec le fait que la partie G du spectre est mesurée à plus basse fréquence que la partie A et permet de choisir les transitions impliquées lorsque plusieurs combinaisons sont possibles.

Nous avons identifié une dizaine d'anti-trous correspondant à des systèmes en Λ dont deux anti-trous d'amplitude relativement importante. La position en fréquence de ces 2 structures a été vérifiée avec le dispositif à modulation de fréquence de la figure 5.8 présenté au chapitre 5.

- Le premier anti-trou apparaît en E lorsque la pompe est en G, l'écart pompe sonde est alors de $880 \text{ MHz} \pm 1 \text{ MHz}$ (sonde plus haute en fréquence). Il peut être associé à plusieurs transitions : entre les niveaux 4 et 6 à $895 \text{ MHz} \pm 17 \text{ MHz}$ ou

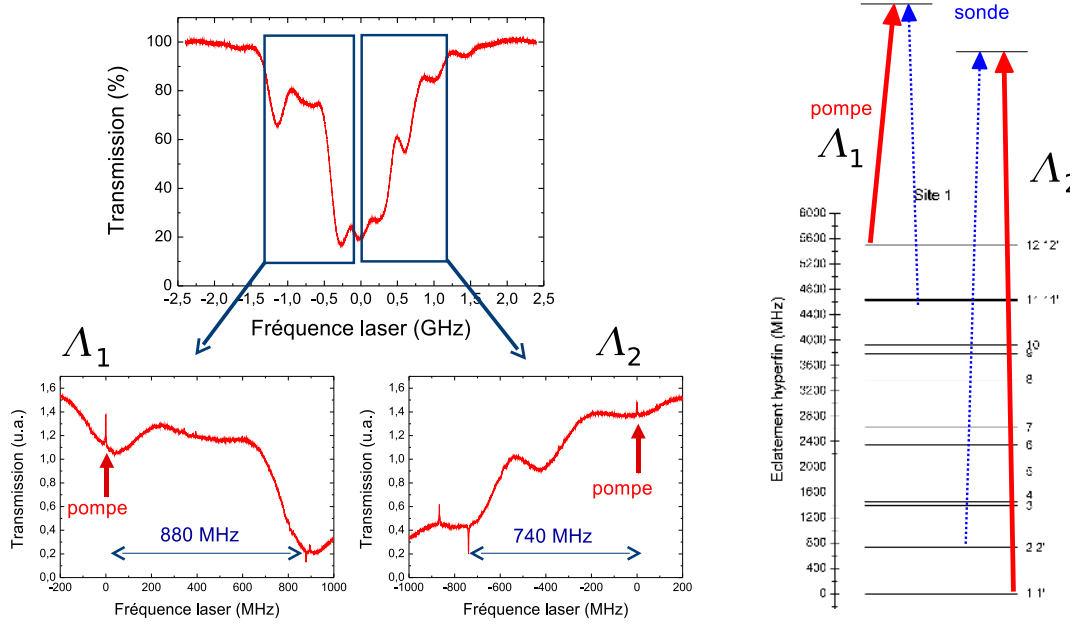


FIG. 3.30 – Deux systèmes en Λ issus du recouplement des expériences de creusement spectral et de résonance paramagnétique électronique. Les flèches en gras (pointillé) représentent la position de la pompe (sonde) lors des expériences de creusement spectral

entre les niveaux 13 et 14 à $865 \text{ MHz} \pm 19 \text{ MHz}$ (tableau A.8). Compte tenu de la position de la pompe dans le spectre vers les basses énergies, l’anti-trou est attribué préférentiellement à la transition hyperfine $13 \rightarrow 14$. Nous appellerons cette configuration Λ_1 par la suite.

- Le deuxième anti-trou apparaît en C lorsque la pompe est en A, l’écart pompe sonde est alors de $740 \text{ MHz} \pm 1 \text{ MHz}$ (sonde plus basse en fréquence). De la même manière Il peut être associé à plusieurs transitions : entre les niveaux 1 et 2 à $724 \text{ MHz} \pm 15.5 \text{ MHz}$ ou entre les niveaux 8 et 9 à $756 \text{ MHz} \pm 13 \text{ MHz}$ (tableau A.1). Compte tenu de la position de la pompe dans le spectre vers les fortes énergies cette fois, l’anti-trou est attribué préférentiellement à la transition hyperfine $1 \rightarrow 2$. Nous appellerons cette configuration Λ_2 .

Ces deux anti-trous, mis en exergue sur la figure 3.30, font intervenir vraisemblablement les niveaux dégénérés 1 et 14. C’est peut être une explication de l’importance de leur amplitude et leur robustesse : les transitions optiques partant de ces niveaux bénéficient a priori de forces d’oscillateur plus importantes que les transitions mettant en jeu des niveaux non dégénérés. La durée de vie de l’anti-trou à 740 MHz (configuration Λ_2) a été mesurée au paragraphe 3.2 de ce chapitre. Avec $T_1^f = 187 \text{ ms}$, le temps de retour à l’équilibre des populations est très lent, ce qui permet d’envisager de “stocker” de l’information sur les populations des niveaux fondamentaux de ce système en Λ .

	1-2	2-3	3-4	4-5	5-6	6-7	7-8	8-9	9-10	10-11	11-12	12-13	13-14
$\delta_{i,i+1}$	724	4	658	60	473	422	279	756	416	128	710	9	856
$\delta_{i,i+2}$	728	662	718	533	895	701	1035	1172	544	838	719	865	
$\delta_{i,i+3}$	1386	722	1191	955	1174	1457	1451	1300	1254	847	1575		
$\delta_{i,i+4}$	1446	1195	1613	1234	1930	1873	1579	2010	1263	1703			
$\delta_{i,i+5}$	1919	1617	1892	1990	2346	2001	2289	2019	2119				
$\delta_{i,i+6}$	2341	1896	2648	2406	2474	2711	2298	2895					
$\delta_{i,i+7}$	2620	2652	3064	2534	3184	2720	3154						
$\delta_{i,i+8}$	3376	3068	3192	3244	3193	3576							
$\delta_{i,i+9}$	3792	3196	3902	3253	4049								
$\delta_{i,i+10}$	3920	3906	3911	4109									
$\delta_{i,i+11}$	4630	3915	4767										
$\delta_{i,i+12}$	4639	4771											
$\delta_{i,i+13}$	5495												

TAB. 3.2 – Anti-trous en Λ en MHz prévus théoriquement d’après le diagramme d’énergie du niveau hyperfin de $^4I_{15/2}(0)$. La première ligne correspond aux éclatements hyperfins. La ligne suivante $\delta_{i,i+2}$ donne la position en fréquence des anti-trous correspondant à 2 écarts hyperfins consécutifs et ainsi de suite. La première colonne correspond aux niveaux d’énergie trouvés en RPE (tableau 3.1).

3.4 Conclusion et perspectives sur les caractérisations spectroscopiques

Caractéristiques déterminées

Quelle que soit la technique spectropique utilisée, écho de photon, creusement spectral ou résonance paramagnétique électronique la spectroscopie de $^{167}\text{Er}^{3+} : \text{Y}_2\text{SiO}_5$ s'est avérée délicate. Outre qu'il faut travailler à basse température, le recours à des techniques de modulation est fréquent, car nous avons en général peu de signal. Nous avons pu déterminer :

- le temps de vie des populations du niveau excité $T_1^e = 10$ ms, comparable aux résultats de la littérature
- le temps de vie des cohérences optiques $T_2 = 3.5 \mu\text{s}$
- la structure hyperfine du doublet de Kramers fondamental $^4I_{15/2}(0)$
- une dizaine de systèmes en Λ ont été identifiés, dont les deux systèmes Λ_1 et Λ_2 , pour lequel l'anti-trou a une amplitude importante et qui seront étudiés dans le cadre de la transparence induite électromagnétiquement dans le chapitre 5.
- le temps de vie des populations du niveau fondamental pour la configuration Λ_2 a été évaluée à $T_1^f = 187$ ms (première mesure de ce type dans $^{167}\text{Er}^{3+} : \text{Y}_2\text{SiO}_5$)
- l'élargissement inhomogène de la transition $\Gamma_{inh} \sim 250$ MHz. Ce faible élargissement pourrait être attribué à la qualité de la croissance cristalline.

Ces premières caractérisations sont encourageantes, notamment le long temps de relaxation de la population dans les niveaux hyperfins lorsque la température du cristal est de 2 K.

Quelles autres paramètres et quelles autres expériences ?

Temps de cohérences Le temps de vie des cohérences Raman T_2^f entre niveaux hyperfins du doublet de Kramers fondamental $^4I_{15/2}(0)$ est un paramètre important pour l'établissement d'une transparence induite efficace (voir chapitre 5). Il serait également intéressant de caractériser les temps de cohérence (optique et radio-fréquence) avec un champ magnétique. En effet avec un champ de 7 T Böttger a pu réduire énormément les processus déphasants dans un cristal d' Y_2SiO_5 dopé à l'erbium naturel et mesurer une largeur homogène de 73 Hz seulement pour la transition optique [36].

Des expériences de résonance paramagnétique électronique impulsionsnelles (ESEEM pour *Electron Spin Echo Envelope Modulation*) sont en cours dans le groupe d'Olivier Guillot Noël et Philippe Goldner pour identifier certaines interactions, pouvant être à l'origine de la perte de cohérence entre niveaux hyperfins. Les premiers résultats montrent l'influence des yttrium et du silicium voisins de l'ion erbium [73].

Eclatement hyperfin de l'excité L'éclatement hyperfin du doublet de Kramers excité $^4I_{13/2}(0)$ est encore mal connu, même si nous avons mesuré de nombreux trous. Les expériences de creusement spectral sont trop complexes. Nous pensons utiliser de nouveau la résonance paramagnétique électronique avec un pompage optique pour travailler avec les ions dans l'état excité. Il faut noter que le champ magnétique déplace la résonance

3.4. CONCLUSION ET PERSPECTIVES SUR LES CARACTÉRISATIONS SPECTROSCOPIQUES

optique au cours d'une expérience ³ et que la prise d'un spectre dure plus d'une minute, ce qui est bien plus long que le temps de vie des populations dans l'état excité (10 ms). Il semble plus intéressant de travailler avec une inversion de population pour avoir un signal RPE de l'état excité assez important. Un pompage continu vers les niveaux $^4I_{13/2}(1)$ ou $^4I_{11/2}$ avec une source spectralement large est envisageable.

Les résultats de résonance paramagnétique électronique dans l'état excité permettent de connaître l'éclatement hyperfin de l'état excité. Ceci devrait permettre de comprendre par exemple la structure du spectre d'absorption et d'éclaircir la valeur de l'élargissement inhomogène. Il devrait être également possible d'identifier les niveaux susceptibles d'être utilisés dans l'effet Kerr géant par exemple, qui nécessite 4 niveaux, 2 fondamentaux et 2 excités [14], en recoupant avec les spectres de creusement spectral. Les fonctions d'onde des états hyperfins obtenus avec l'hamiltonien de spin effectif dans le fondamental et dans l'excité ne peuvent à priori pas donner d'information sur les règles de sélection et les forces d'oscillateur. En effet dans cette approche, l'espace des états de l'ion erbium est réduit à un sous-espace plus petit par l'introduction du spin fictif $S = 1/2$. Entre l'état excité $^4I_{13/2}(0)$ et l'état fondamental $^4I_{15/2}(0)$, on ne travaille pas dans le même sous-espace ⁴.

Le système $^{167}\text{Er}^{3+} : \text{Y}_2\text{SiO}_5$ n'est donc pas encore totalement caractérisé. Nous avons cependant travaillé avec cette connaissance partielle pour démontrer deux effets résonants : les oscillations cohérentes de population (chapitre 4) et la transparence induite électromagnétiquement (chapitre 5).

³D'après T. Böttger [36], le niveau $^4I_{13/2}(0)$ se décale de 0.3 cm^{-1} (soit moins de 0.1 nm) pour un champ de 1 T, champ maximum utilisé en RPE

⁴Le calcul des paramètres du champ cristallin B_q^k (éq.(2.2)) permettraient d'évaluer l'hamiltonien total (éq.(2.1)) et de prédire les niveaux hyperfins de l'état excité, comme cela a été fait pour les cristaux de $\text{Tm}^{3+} : \text{YAG}$ [74]. Ce calcul s'appuie sur les spectres optiques des niveaux $^{2S+1}L_J$ mesurés expérimentalement [44] et est extrêmement ardu compte tenu de la basse symétrie du site de substitution dans Y_2SiO_5 . En considérant l'hamiltonien total, les fonctions d'onde obtenues par ce calcul permettent en principe de connaître les forces des transitions et les éventuelles règles de sélection.

Chapitre 4

Ralentissement de la lumière avec l'erbium

La réduction de la vitesse de groupe de la lumière, de plusieurs ordres de grandeur, par rapport à la célérité c de la lumière dans le vide, est un des grands enjeux de la photonique actuelle. Le contrôle actif ou passif de la vitesse de groupe permettrait de mettre en place de nouvelles fonctions optiques de traitement du signal (mémoire tampon, retard ajustable continuellement, recentrage d'impulsions dans une fenêtre temporelle...) et des interactions lumière-matière ou lumière-lumière prolongées.

Ce chapitre présente les résultats que nous avons obtenus dans $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$, dont le plus notable est le ralentissement de 8 ordres de grandeurs de la vitesse de groupe à l'aide des oscillations cohérentes de population.

Les notions de vitesse de la lumière, les relations de Kramers-Krönig et les quelques résultats marquants sur la lumière dite “lente” ou “ultra-lente” sont rappelés en introduction. Le phénomène dit d'oscillations cohérentes de population est ensuite expliqué et l'influence des élargissements homogène et inhomogène est détaillée. Les différents résultats expérimentaux dans $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ sont présentés dans une troisième partie. Différents paramètres ont été explorés : intensité, fréquence du battement, la possibilité d'un pompage optique et, pour la première fois à notre connaissance l'élargissement inhomogène. La conclusion ouvre sur les expériences à température ambiante dans les fibres dopées erbium.

4.1 De la vitesse de la lumière au ralentissement

La vitesse de propagation de la lumière dans le vide comme nous la connaissons actuellement est une constante universelle, fixée depuis 1983 à $c = 299\,792\,458$ m/s [75]. Elle fût mesurée pour la première fois sur terre par Fizeau en 1848 à l'aide d'un dispositif ressemblant à celui de la figure 4.1. Le principe de l'expérience était de mesurer le temps d'aller-retour d'une impulsion créée par une roue dentée. Ce temps d'aller-retour entre la maison de Fizeau à Suresnes et Montmartre 8.6 km de là, est de $58\,\mu\text{s}$. Au fur et a mesure que la vitesse de rotation de la roue augmente, l'impulsion de retour de Montmartre passe dans la même dent puis est occultée puis passe dans la dent suivante etc. Cette technique de stroboscopie permet de remonter au temps de propagation de l'impulsion, et la vitesse de la lumière [76].

Depuis les expériences de Fizeau le concept même de vitesse de la lumière a été largement approfondi, et on compte jusqu'à 8 définitions différentes attachées à la vitesse de la lumière [77, 78]. On dirait aujourd'hui que Fizeau n'a pas mesuré la vitesse de la lumière, mais plutôt la vitesse de groupe d'impulsions se propageant dans l'air, un milieu linéaire et quasi homogène. Avant de revenir sur la vitesse de phase v_p , la vitesse de groupe v_g , et la vitesse du barycentre de l'impulsion temporelle appelée centro-vélocité v_c , précisons d'abord ce qu'est une impulsion lumineuse.

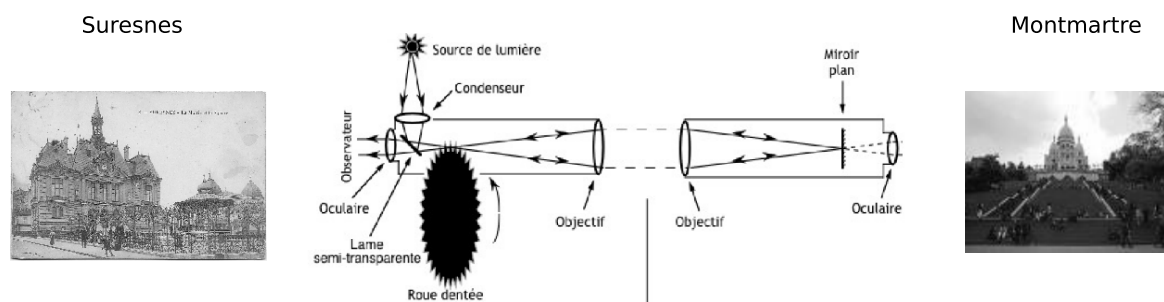


FIG. 4.1 – Dispositif expérimental utilisé par Fizeau pour mesurer la vitesse de la lumière dans l'air en 1848. Des impulsions lumineuses sont créées par une roue dentée et envoyées vers un miroir situé à 8.6 km pour être renvoyées vers la source. Elles sont visibles en retour lorsque la roue dentée a tourné d'une dent. Note : le Sacré Coeur n'était pas encore sur la butte Montmartre lors des expériences de Fizeau.

4.1.1 Impulsion lumineuse

La figure 4.2 représente la somme de deux champs monochromatiques de fréquence légèrement décalées. Le profil de l'intensité (somme au carré) fait apparaître le début d'une impulsion. Une véritable impulsion contient beaucoup plus de composantes fréquentielles et est le résultat des interférences temporelles constructives entre ces différents champs

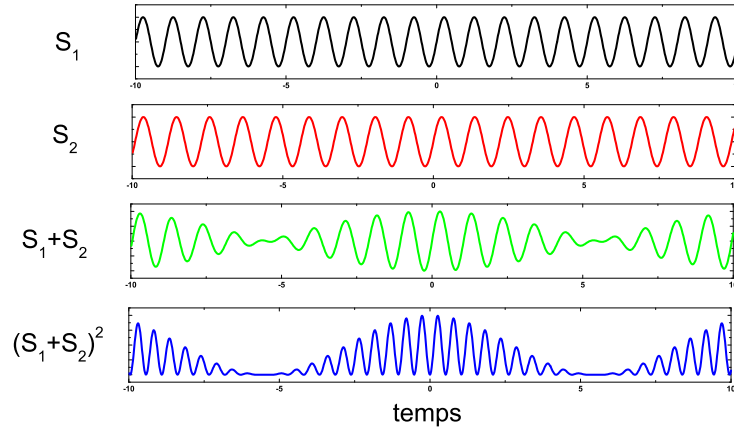


FIG. 4.2 – Illustration du concept d'impulsion : S_1 et S_2 sont deux ondes monochromatiques de fréquences différentes et en phase en 0, $(S_1 + S_2)$ représente le champ somme et $(S_1 + S_2)^2$ l'intensité associée à la somme des deux champs qui fait apparaître l'impulsion. Plus le nombre de composantes spectrales est important plus l'extinction entre deux maxima est grande et plus l'impulsion formée peut être de courte durée.

monochromatiques. Au maximum de l'impulsion toutes les composantes spectrales sont en phase et s'additionnent. Formellement une impulsion lumineuse est définie par son enveloppe temporelle $A(t)$, lentement variable devant la fréquence de la porteuse optique ω_0 :

$$E(z, t) = A(t) \cdot e^{-i(\omega_0 t - kz)} \quad (4.1)$$

La transformée de Fourier de $A(t)$, $\tilde{A}(\omega)$ représente le spectre de l'impulsion autour de ω_0 .

$$\tilde{E}(\omega) = \tilde{A}(\omega - \omega_0) \quad (4.2)$$

Plus la bande spectrale $\Delta\omega$ est large, plus les impulsions peuvent être temporellement courtes si les différentes composantes sont effectivement en phase. Dans ce cas on parle d'impulsions limitées par la transformée de Fourier. Dans les expériences, nous avons travaillé avec des impulsions de profil gaussien

$$A(t) = A_0 e^{-t^2/\Delta T^2}, \quad (4.3)$$

de spectre

$$\tilde{A}(\omega) = \sqrt{\pi} \Delta T A_0 e^{-\omega^2/\Delta\omega^2}. \quad (4.4)$$

Lorsque les impulsions gaussiennes sont limitées par la transformée de Fourier, la largeur temporelle ΔT et la largeur spectrale $\Delta\omega$ sont telles que $\Delta\omega \times \Delta T = 2$.

4.1.2 Vitesses

Vitesse de phase

La vitesse de phase est la vitesse des points de phase constante lors de la propagation de l'onde à travers le milieu. Cette phase vaut $\phi = kz - \omega_0 t$. Les points de phase ϕ constante avancent de Δz en un temps Δt tel que $k\Delta z = \omega_0 \Delta t$ et on a donc une vitesse de phase $v_p = \Delta z / \Delta t$ qui vaut

$$v_p = \frac{\omega_0}{k} = \frac{c}{n(\omega_0)}. \quad (4.5)$$

Cette vitesse peut être définie pour chaque onde plane de fréquence ω composant l'impulsion, $v_p = c/n(\omega)$.

Vitesse de groupe

Pour que l'impulsion se propage sans se déformer, toutes les composantes spectrales autour de la porteuse ω_0 doivent s'additionner en phase quelque soit la distance de propagation z . Cela signifie que la variation de la phase avec la fréquence est nulle quelque soit z : $\left[\frac{d\phi}{d\omega} \right]_{\omega_0} = 0$ avec $\phi = \frac{n(\omega)\omega z}{c} - \omega t$, ce qui donne la relation $\frac{dn}{d\omega} \frac{\omega_0 z}{c} + \frac{nz}{c} - t = 0$ et conduit à la définition de la vitesse de groupe $v_g = z/t$:

$$v_g = \frac{c}{n(\omega_0) + \omega_0 (dn/d\omega)_{\omega_0}}. \quad (4.6)$$

La vitesse de groupe correspond généralement à la vitesse de propagation du maximum du profil en intensité de l'impulsion à travers un milieu dispersif. On définit l'indice de groupe n_g comme :

$$n_g(\omega_0) = n(\omega_0) + \omega_0 \left[\frac{dn}{d\omega} \right]_{\omega_0}. \quad (4.7)$$

Lumière lente

En regardant la définition de la vitesse de groupe v_g (éq.(4.6)), on voit qu'il est possible d'obtenir des vitesses de groupe très faibles lorsque la dispersion $\left[\frac{dn}{d\omega} \right]_{\omega_0}$ est forte. Lorsque ce terme est négatif, la vitesse de groupe peut même être négative [79] ou supérieure à c alors que la vitesse de phase est positive. On parle alors de *lumière superluminique* [80, 81].

Ce dernier point peut sembler contredire le fait qu'aucune information ne peut aller plus vite que la lumière. Suite aux travaux théoriques de Sommerfeld et Brillouin [82], la vitesse d'un signal a été définie comme la vitesse de propagation du front d'une impulsion rectangulaire. Les expériences faites par Stenner *et al.* dans des conditions de lumière lente [83] ou de lumière superluminique [84] ont clairement démontré qu'un tel front montant ou descendant (un saut à 1 ou un saut à 0) ne se propage pas à la vitesse de groupe v_g ,

car il est associé à une très grande bande spectrale qui ne peut pas vérifier les conditions de propagation extrême, ultra-lente ou superluminique.

Par ailleurs, on a bien défini les impulsions comme étant le résultat des interférences entre un paquet d'ondes planes monochromatiques, qui ont une étendue spatiale et temporelle infinie. Un simple changement de phase modifie ces interférences et fait apparaître le maximum de l'impulsion en avance ou en retard. Le façonnage du paquet d'onde par la dispersion, voilà le secret de ces propagations extraordinaires, ultra-lente ou superluminique.

Distorsion

Lors du traitement théorique de la propagation d'impulsions dans un milieu dispersif [85], il est utile de faire un développement limité de la constante de propagation $k(\omega)$ autour de la porteuse optique ω_0 .

$$k(\omega) = k_0 + k_1(\omega - \omega_0) + \frac{k_2}{2}(\omega - \omega_0)^2 + \frac{k_3}{3!}(\omega - \omega_0)^3 + \dots, \quad (4.8)$$

où $k_i = [d^{(i)}k/d\omega^i]_{\omega_0}$.

k_0 est l'amplitude de vecteur d'onde à la fréquence de la porteuse optique et représente la valeur moyenne de k pour l'impulsion.

$k_1 = \left[\frac{dk}{d\omega} \right]_{\omega_0} = \frac{1}{v_g} = \frac{n_g}{c}$ est l'inverse de la vitesse de groupe.

Le temps de groupe T_g est le temps nécessaire à l'impulsion pour parcourir la distance z à travers le milieu dispersif :

$$T_g = \frac{z}{v_g} = zk_1. \quad (4.9)$$

Le facteur $k_2 = \left[\frac{d^2k}{d\omega^2} \right]_{\omega_0} = \frac{1/v_g}{d\omega} = \frac{1}{c} \frac{dn_g}{d\omega}$, est appelé la dispersion de temps de groupe.

Lorsque la dispersion est importante le temps de groupe varie significativement à l'intérieur de la bande spectrale $\Delta\omega$ de l'impulsion. L'impulsion n'est plus limitée par la transformée de Fourier et sa durée augmente car les différentes composantes spectrales de l'impulsion se propagent avec des vitesses différentes. Pour l'impulsion gaussienne définie par l'équation (4.3), on a alors $\Delta\omega \times \Delta T > 2$. Les différentes composantes spectrales sont alors désynchronisées et sont réparties linéairement le long de l'impulsion. On parle de glissement de fréquence, *chirp* en anglais. L'élargissement temporel induit par k_2 est de l'ordre de $\Delta T \approx zk_2\Delta\omega$.

Lorsque $k_2 \approx 0$, ou pour des bandes spectrales très larges, il faut considérer le terme supérieur du développement (4.8), $k_3 = \left[\frac{d^3k}{d\omega^3} \right]_{\omega_0}$. L'effet de ce terme va être de brouiller le glissement de fréquence. Le profil temporel de l'impulsion sera alors distordu.

Lorsque l'impulsion est totalement distordue le concept de vitesse de groupe ne recoupe plus de réalité physique. On préférera alors utiliser la vitesse du barycentre temporel de

l'impulsion (en intensité) pour définir la vitesse de l'impulsion, appelée "centro-vélocité" et définie par [77]

$$v_c = \left[\nabla \left(\frac{\int_{-\infty}^{+\infty} t E^2(\mathbf{r}, t) dt}{\int_{-\infty}^{+\infty} E^2(\mathbf{r}, t) dt} \right) \right]^{-1}. \quad (4.10)$$

Lorsqu'on détecte le profil temporel d'une impulsion, c'est à la centro-vélocité qu'on a accès expérimentalement. Pour une impulsion qui n'est pas déformée, la vitesse de groupe et la centro-vélocité de l'impulsion se confondent et on parle de vitesse de groupe.

4.1.3 Relations de Kramers-Krönig

La réponse d'un milieu excité par un champ électromagnétique est appelée sa susceptibilité χ . χ est une fonction causale et à ce titre ses parties réelles et imaginaires vérifient les relations de Kramers-Krönig.

$$\begin{aligned} \chi'(\omega) &= -\hat{H}(\chi''(\omega)) \\ \chi''(\omega) &= \hat{H}(\chi'(\omega)) \end{aligned} \quad (4.11)$$

où $\hat{H}$ représente la transformée de Hilbert [86]. En optique, cela donne deux relations liant l'indice de réfraction n et l'absorption α du milieu :

$$\begin{aligned} n(\omega) &= 1 + \frac{c}{\pi} vp \int_0^{+\infty} \frac{\alpha(s)}{s^2 - \omega^2} ds \\ \alpha(\omega) &= -\frac{4\omega^2}{\pi c} vp \int_0^{+\infty} \frac{n(s) - 1}{s^2 - \omega^2} ds \end{aligned} \quad (4.12)$$

où vp désigne la valeur principale de Cauchy.

Selon ces relations, la présence d'une fenêtre de transparence, ou trou, dans le profil d'absorption s'accompagne d'une forte variation de l'indice de réfraction avec une pente positive. Ceci est illustré sur les figures 4.3.a et 4.3.b. L'indice de groupe n_g est quant à lui représenté sur la figure 4.3.c. Supposons que l'absorption d'un système s'écrive

$$\alpha(\delta) = \alpha_0 \left(1 - \frac{a}{1 + (\delta T)^2} \right) \quad (4.13)$$

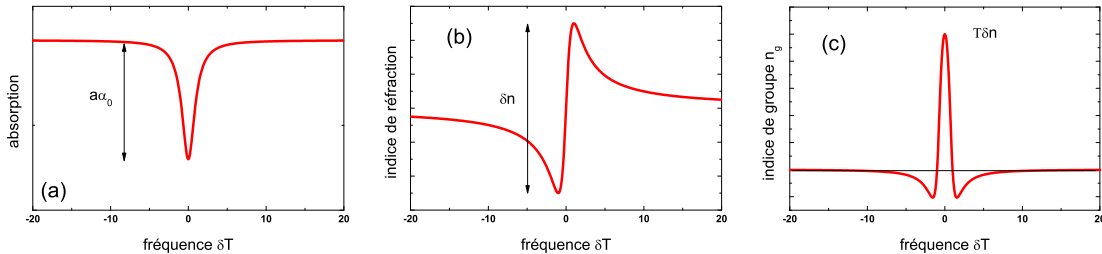


FIG. 4.3 – Illustration des relations de Kramers Krönig : une fenêtre de transparence dans le profil d'absorption (un 'trou') se traduit par une forte variation de l'indice de réfraction.

où $1/T$ est la largeur de la résonance, et $\alpha_0 a$ sa profondeur. L'indice de réfraction et l'indice de groupe qui sont associé à un tel profil d'absorption s'écrivent ¹

$$\begin{aligned} n(\delta) &= n_0 + \delta n \frac{\delta T}{1 + (\delta T)^2}, \\ n_g(\delta) &= \delta n T \frac{1 - (\delta T)^2}{(1 + (\delta T)^2)^2}, \end{aligned} \quad (4.14)$$

avec $\delta n = a \frac{\alpha_0 \lambda}{4\pi}$ la variation d'indice. L'indice de groupe n_g est maximal en $\delta = 0$ et vaut $n_g = \delta n T$. Le ralentissement, mesuré par n_g , est d'autant plus fort que la variation d'indice δn est forte sur une bande spectrale $1/T$ faible.

Dans le cas présenté sur la figure 4.3, la dispersion de temps de groupe ($dn_g/d\delta$) est nulle lorsqu'on travaille à résonance. On se trouve en effet dans un maximum de n_g ($dn_g/d\delta = 0$). Ceci explique en partie pourquoi les expériences de ralentissement autour de résonances optiques déforment peu les impulsions.

Notons qu'une forte variation de l'indice n avec une pente négative peut être obtenue lorsque l'absorption présente un pic à la place d'un trou. C'est dans des systèmes présentant un pic de gain qu'on peut observer de la lumière superluminique [80, 84].

4.1.4 Lumière lente et lumière ultra-lente

L'approche utilisée dans cette thèse pour ralentir la lumière est basée sur les interactions résonantes entre la lumière et la matière². D'après les relations de Kramers-Krönig une fenêtre de transparence au milieu d'un profil d'absorption permettent d'obtenir la dispersion positive nécessaire pour le ralentissement. Il en est de même dans un milieu présentant une fenêtre de gain ($\alpha < 0$) et pour laquelle $dn/d\omega > 0$.

Pour tout lecteur attentif du chapitre 3 de cette thèse, la simple évocation d'un trou dans l'absorption doit amener au creusement spectral. Curieusement, la proposition d'utiliser les trous de creusement spectral pour le ralentissement ne date que des années 2000 [93, 94]. Comme nous l'avons vu au paragraphe 3.1.2, la largeur du trou creusé est limitée par soit par Γ_h soit par la largeur du laser de pompe. En jouant sur la saturation, ou sur la largeur spectrale de la pompe, une plus grande bande passante est ainsi accessible. La première démonstration de lumière ralentie basée sur le creusement spectral est très récente (2006) [95]. Un retard de 45 ns a été obtenu dans une vapeur de Rb pour des impulsions ayant une durée de 5.8 ns. L'élargissement temporel des impulsions ralenties est néanmoins important (facteur 5). L'indice de groupe correspondant est $n_g = 33.8$.

¹Le temps de groupe T_g qui est mesuré expérimentalement s'écrit $T_g(\delta) = \frac{\delta n T}{1 + (\delta T)^2}$. Notons que $T_g(0) = n_g(0)$

²Parmi les autres approches citons par exemple l'ingénierie du diagramme de bande des cristaux photoniques ($n_g = 13.5$ par exemple dans la référence [87]), les cavités de forts coefficient de qualité ($n_g = 5.10^4$ [88]), l'utilisation de cavités couplées [89, 90, 91]) ou encore l'utilisation du temps de réponse des cristaux photoréfractifs [92]... cette liste n'est pas exhaustive

L'utilisation de la dispersion associée au gain de diffusion Brillouin stimulée a permis de ralentir la lumière. Dans la référence [96], M. Gonzalez-Herraez *et al.* ont obtenu un indice de groupe variant de $n_g = -0.7$ à 4.26 à $1.5 \mu\text{m}$ dans une fibre optique monomode mesurant 11.8 km . Les impulsions ralenties ont une durée de 100 ns . L'avantage de ce processus est notamment son accordabilité en longueur d'onde : il suffit de décaler la longueur d'onde du faisceau de pompe pour que le faisceau associé à la diffusion Brillouin soit décalé d'autant. Un autre processus de ce type ne demandant pas a priori de système atomique dédié, et présentant une large bande passante est l'amplification Raman. Sharping *et al.* ont ainsi démontré un retard de 370 fs pour des impulsions de durée 430 fs par ce processus dans une fibre optique en silice [97].

Pour obtenir un ralentissement plus important, descendre dans le régime de propagation "ultra-lent", il faut trouver une dispersion $dn/d\omega > 0$ plus forte. Alors que le creusement spectral creuse un trou de largeur Γ_h à l'intérieur de la largeur inhomogène, la transparence induite électromagnétiquement et les oscillations cohérentes de population sont deux effets qui font apparaître un trou de transparence plus étroit dans le profil homogène d'absorption.

La première démonstration de lumière ultra-lente (17 m/s) de la littérature a été obtenue par Lene Hau *et al.* en utilisant la transparence induite électromagnétiquement dans un condensat de Bose Einstein de sodium en 1999 [9]. L'indice de groupe correspondant est de $1,7 \cdot 10^7$. On est bien dans le domaine de propagation ultra-lente puisqu'un bon cycliste atteint des vitesses supérieures. La largeur de la résonance de la transparence induite électromagnétiquement est limitée par le taux de décohérence entre les deux niveaux fondamentaux (très faible en utilisant des niveaux métastables) ou par la puissance du laser de couplage utilisé (voir paragraphe 5.1). Cet effet peut également être utilisé pour stopper la lumière [12, 98, 23].

Un autre phénomène a été exploité pour obtenir des propagations ultra-lentes, il s'agit des oscillations cohérentes de population, qui créent un trou dans la largeur homogène Γ_h . La largeur de ce trou est limitée par la largeur naturelle de la transition optique, qui peut être très faible en comparaison de Γ_h . Les premiers résultats ont été obtenus en 2003 par Bigelow *et al.* qui ont ralenti la lumière à une vitesse de 57 m/s dans le rubis [6] et 91 m/s dans l'alexandrite [5]. Le ralentissement de la lumière, à une longueur d'onde voisine de 800 nm , dans les matériaux semi-conducteurs ont suivi de près avec une première démonstration dans les puits quantiques en GaAs/AlGaAs à 10 K de propagation à $v_g = 9100 \text{ m/s}$ [19]. A température ambiante, un indice de groupe de 7.2 , soit $v_g \sim 42 \cdot 10^6 \text{ m/s}$, a été démontré par J. Mørk *et al.* dans un modulateur à électro-absorption en In-GaAsP travaillant autour de $1.5 \mu\text{m}$ [99]. Ce travail ouvre la voie au contrôle électrique du phénomène d'oscillations cohérentes de population et de nouvelles marges d'optimisation et d'intégration [100]. Enfin en 2005, l'utilisation des propriétés de photoisomérisation des protéines, dont le temps de vie équivalent est très long, a permis de descendre à 0.091 mm/s [21].

Ces quelques exemples mettent clairement en évidence deux tendances. D'un côté des vitesses de groupe extrêmement faibles sont accessibles en utilisant des fenêtres spectrales très fines (EIT, CPO). Dans ces propagations absolument extra-ordinaires, le temps d'in-

teraction est alors très long. D'un autre côté, on peut avoir des bandes passantes plus élevées en utilisant des processus moins sélectifs en fréquence et pouvant présenter du gain (creusement spectral, Brillouin, Raman par exemple). Ces processus semblent plus tournés vers les applications de mémoire tampon ou de ligne à retard ajustable continument.

4.1.5 Conclusion

Le ralentissement est une manière de re-visiter la propagation dans les milieux dispersifs. C'est néanmoins un sujet très étudié depuis les résultats de propagation ultra-lente dans une vapeur froide de sodium en 1999 [9] jusqu'au résultat récent de Camacho *et al.* sur le ralentissement d'une image en 2007 [101].

La communauté scientifique s'accorde à dire qu'on peut utiliser ce phénomène selon deux voies. La première voie est d'utiliser le ralentissement en tant que tel pour réaliser des fonction du type mémoires tampon, ou recentrage d'impulsions dans une fenêtre temporelle pour le traitement optique de l'information. La seconde voie est de mettre à profit le fait que le maximum de l'intensité reste longtemps au même endroit pour augmenter la réponse non-linéaire d'un matériau.

En ce qui concerne la première voie, plusieurs questions d'importance émergent : quel effet utiliser ? comment l'intégrer dans un système d'information ? quels sont les paramètres pertinents dans cette optique ? De nombreux systèmes sont à l'étude.

Les motivations en optique non linéaire sont basées sur l'augmentation du temps d'interaction. Si Fizeau refaisait son expérience de mesure de la vitesse de la lumière avec de la lumière ralentie à 3 m/s (comme dans $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$) il aurait à attendre plus d'1 h 36 min avant que l'impulsion ne revienne au lieu de 58 μs . D'un autre côté, en 58 μs la lumière lente a parcouru 174 μm au lieu de 2×8.63 km. C'est ce dernier point qui est particulièrement intéressant si on cherche à renforcer l'interaction lumière-matière et exacerber la réponse non linéaire d'un matériau.³

Le paragraphe qui suit présente en détails la méthode mise en oeuvre au cours de cette thèse, les oscillations cohérentes de population.

4.2 Oscillations cohérentes de population

Les oscillations cohérentes de population ont été introduites par Schwarz et Tan en 1967 [102], pour comprendre les instabilités dans les lasers déclenchés utilisant des colorants et la présence de trous de largeur spectrale inférieure à la largeur homogène. L'utilisation des oscillations cohérentes de population en spectroscopie a été proposée dans ce même article

³Il faut cependant apporter une nuance : dans les systèmes atomiques, les situations de lumière lente et d'effets non-linéaires géants sont souvent les mêmes mais le premier effet n'est pas toujours la cause du second. Ils apparaissent ensemble parce qu'ils sont liés tous les deux à des effets résonants. C'est par exemple le cas de l'effet Kerr géant apparaissant dans une situation de transparence induite électromagnétiquement [14].

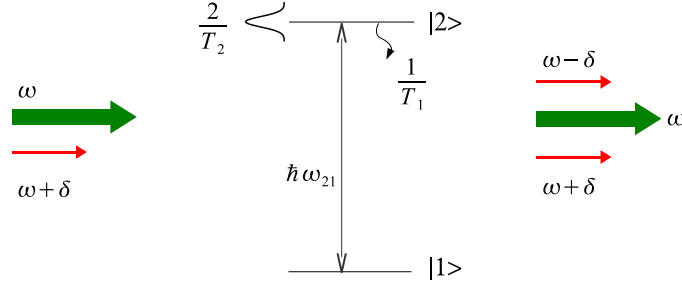


FIG. 4.4 – Système atomique à deux niveaux excité par deux champ électromagnétiques à ω (pompe) et $\omega + \delta$ (sonde), configuration pour l'observation des oscillations cohérentes de populations.

pour mesurer le temps de vie T_1 d'un niveau, lorsque celui-ci est trop court pour faire une mesure temporelle ou lorsque le système n'est pas luminescent.

Des études théoriques approfondies dans les années 1970 [103, 4], ont conduit aux premiers résultats de spectroscopie sur $\text{Sm}^{2+} : \text{CaF}_2$ [17] et $\text{Cr}^{3+} : \text{Al}_2\text{O}_3$ [18].

4.2.1 Théorie

Position du problème

Pour décrire théoriquement les oscillations de population, on considère un milieu composé d'un ensemble de systèmes à deux niveaux caractérisés par des temps de relaxation des populations T_1 et des cohérences T_2 entre les 2 niveaux $|1\rangle$ et $|2\rangle$. Comme présenté sur la figure 4.4 ce système est en interaction avec deux champs électromagnétiques, cohérents entre eux : une pompe de pulsation ω et une sonde de pulsation $\omega + \delta$, tout deux quasi en résonance avec le système à deux niveaux ($\omega, \omega + \delta \approx \omega_{21}$). Les deux faisceaux étant cohérents, des interférences temporelles se produisent et donnent lieu à un battement en intensité à la fréquence angulaire δ .

La densité de population du système à deux niveaux réagit comme un oscillateur amorti de fréquence angulaire de coupure $\gamma_{\text{nat}} = 1/T_1$. Si le battement en intensité est assez lent, la population peut en réponse osciller à la pulsation δ , en phase avec l'excitation. L'interaction du champ pompe avec une susceptibilité oscillant à $\pm\delta$ induit deux rayonnements à $\omega - \delta$ et $\omega + \delta$. Ce dernier terme apparaît exactement à la pulsation de la sonde et vient diminuer son absorption.

Le phénomène touchant les populations, un simple modèle d'équation de taux permet d'interpréter ce phénomène dans le cas d'un élargissement homogène [104, 105]. Cependant lorsque la transition est élargie de manière inhomogène, le traitement à l'aide de la matrice densité est nécessaire pour accéder au détail des résonances.

Il s'agit donc de décrire le mélange des ondes pompe et sonde assisté par un système atomique avec lequel elles sont en résonance. L'état du système est décrit par sa matrice densité. L'approximation des champs pompe et sonde quasi-résonants permet les simplifi-

cations usuelles. On se place dans le référentiel du champ pompe, tournant à la pulsation ω pour décrire le dipôle rayonné p . L'équation d'évolution de la matrice densité s'exprime à l'aide de la différence de population $w = \rho_{11} - \rho_{22}$ et de l'amplitude complexe du dipôle $p = \mu_{12}\rho_{12}e^{i\omega t}$.

$$\begin{aligned}\frac{dp}{dt} &= (i\Delta - \frac{1}{T_2})p - i|\mu_{21}|^2\mathcal{E}w \\ \frac{dw}{dt} &= -\frac{w - w_{eq}}{T_1} + \frac{4}{\hbar}\text{Im}(p\mathcal{E}^*)\end{aligned}\quad (4.15)$$

où $\mathcal{E} = \mathcal{E}_0 + \mathcal{E}_1e^{-i\delta t}$ est le champ total dans le référentiel tournant, $\Delta = \omega - \omega_{21}$ est le désaccord du champ par rapport à la résonance de la transition à ω_{21} , w_{eq} la différence de population à l'équilibre, qui vaut -1.

La méthode utilisée pour résoudre ce système d'équation est de chercher une solution exacte pour le champ pompe $\mathcal{E}_0$ et de se contenter d'un développement perturbatif au premier ordre pour le champ sonde $\mathcal{E}_1$. La solution stationnaire est supposée être de la forme

$$\begin{aligned}p &= p_0 + p_1e^{-i\delta t} + p_{-1}e^{+i\delta t} \\ w &= w_0 + w_1e^{-i\delta t} + w_{-1}e^{+i\delta t}\end{aligned}\quad (4.16)$$

p_0 et w_0 sont les solutions du système sous l'effet de la pompe seule (résultats de saturation classiques). Les autres termes $p_{\pm 1}$ et $w_{\pm 1}$ sont supposés être petits par rapport à p_0 et w_0 et tous les termes du second ordre, faisant intervenir des produits de $p_{\pm 1}$ et $w_{\pm 1}$ sont négligés. La densité de population w étant nécessairement réelle, cela impose $w_1 = w_{-1}^*$, et une évolution temporelle de la population de la forme $w(t) = w_0 + 2|w_1|\cos(\delta t + \phi)$ rendant compte des oscillations de la population dans le temps.

Solution

Les détails du calculs sont donnés dans plusieurs références [3, 4, 106, 107].

La solution du système (4.15) de la forme (4.16) à l'équilibre est donnée par :

$$\begin{aligned}w_0 &= \frac{w_{eq}(1 + \Delta^2 T_2^2)}{1 + \Delta^2 T_2^2 + \Omega^2 T_1 T_2} \\ p_0 &= \frac{1}{\hbar} \frac{|\mu_{21}|^2 \mathcal{E}_0 w_0}{\Delta + i/T_2} \\ w_1 &= -\frac{2w_0 |\mu_{21}|^2}{\hbar^2} \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_0^* \frac{(\delta - \Delta + i/T_2)(\delta + 2i/T_2)}{(\Delta - i/T_2)D(\delta)} \\ p_1 &= \frac{w_0 |\mu_{21}|^2 \mathcal{E}_1}{\hbar(\Delta + \delta + i/T_2)} \times \left[1 - \frac{|\Omega|^2 (\delta - \Delta + i/T_2)(\delta + 2i/T_2)}{2 D(\delta)(\Delta - i/T_2)} \right] \\ p_{-1} &= \frac{1}{2} \frac{w_0 |\mu_{21}|^2 \Omega^2 \mathcal{E}_1^*}{\hbar(\Delta - \delta + i/T_2)} \frac{(\delta - \Delta - i/T_2)(-\delta + 2i/T_2)}{D^*(\delta)(\Delta + i/T_2)}\end{aligned}\quad (4.17)$$

où on a posé $D(\delta) = \left(\delta + \frac{i}{T_1}\right) \left(\delta - \Delta + \frac{i}{T_2}\right) \left(\delta + \Delta + \frac{i}{T_2}\right) - \Omega^2 \left(\delta + \frac{i}{T_2}\right)$. Ω est la

pulsation de Rabi de la pompe, $\Omega = 2|\mu_{21}|\mathcal{E}_0/\hbar$, et $\Delta = \omega - \omega_{21}$ le désaccord entre la pompe et la résonance optique,

p_{-1} et le second terme de p_1 rendent compte des oscillations de population. Ils sont proportionnels à la population w_0 saturée par la pompe ; saturation qui va limiter l'effet.

La dépendance en $\mathcal{E}_0\mathcal{E}_0^*\mathcal{E}_1$ et $\mathcal{E}_0\mathcal{E}_0\mathcal{E}_1^*$ rappelle que dans le développement perturbatif réalisé les oscillations de population apparaissent comme un processus non linéaire du troisième ordre du type mélange à 4 ondes.

Lorsque le système est excité par deux fréquences sondes $\mathcal{E}_1(\omega + \delta)$ et $\mathcal{E}_{-1}(\omega - \delta)$, les deux contributions sont à prendre en compte pour chacune des deux sondes. En effet pour chacune des fréquences $(\omega + \delta)$ et $(\omega - \delta)$, on a d'une part la diffraction de la pompe $\mathcal{E}_0$ sur le battement de population à $+\delta$ créé par les interférences entre la pompe et la sonde $\mathcal{E}_1(\omega + \delta)$ et d'autre part la diffraction de la pompe $\mathcal{E}_0$ sur le battement de population à $-\delta$ créé par les interférences entre la pompe et la sonde $\mathcal{E}_{-1}(\omega - \delta)$. Il faut noter que les champs $\mathcal{E}_1$ et $\mathcal{E}_{-1}$ n'interagissent pas directement entre eux, mais sont mélangés grâce à la présence de la pompe et du réseau de population créé avec chacun de ces deux champs.

La susceptibilité du milieu à la fréquence $\omega + \delta$ peut être calculée de la manière suivante :

$$\chi(\omega + \delta) = \frac{Np_1}{\epsilon_0\mathcal{E}_1},$$

ce qui donne

$$\begin{aligned} \chi(\omega + \delta) = \frac{N}{\epsilon_0} & \left(\frac{w_0|\mu_{21}|^2}{\hbar(\Delta + \delta + i/T_2)} \right. \\ & - \frac{|\Omega|^2}{2} \frac{w_0|\mu_{21}|^2}{\hbar(\Delta + \delta + i/T_2)} \frac{(\delta - \Delta + i/T_2)(\delta + 2i/T_2)}{D(\delta)(\Delta - i/T_2)} \\ & \left. + \frac{\Omega^2\mathcal{E}_{-1}^*}{2\mathcal{E}_1} \frac{w_0|\mu_{21}|^2}{\hbar(\Delta - \delta + i/T_2)} \frac{D(\delta)(\Delta - i/T_2)}{(\delta - \Delta - i/T_2)(-\delta + 2i/T_2)} \right) \end{aligned} \quad (4.18)$$

Pour une densité N d'ions assez faible, on peut faire l'approximation $\sqrt{1 + \chi} = 1 + \chi/2$, et on obtient les expressions de l'indice de réfraction et de l'absorption vus par la sonde :

$$\alpha(\omega + \delta) = \frac{\omega}{c} \text{Im}(\chi(\omega + \delta)) \quad (4.19)$$

$$n(\omega + \delta) = 1 + 1/2 \text{Re}(\chi(\omega + \delta)) \quad (4.20)$$

L'absorption peut s'écrire comme la somme de deux contributions [4] :

$$\alpha = \alpha_{inc} + \alpha_{coh}, \quad (4.21)$$

avec α_{inc} la partie incohérente de l'absorption vue par la sonde, qui est due à la saturation due à la pompe (premier terme de $\chi(\omega + \delta)$ éq.(4.18)) et α_{coh} la partie de l'absorption sonde due aux oscillations cohérentes de population (deuxième et troisième termes de $\chi(\omega + \delta)$ éq.(4.18)).

Discussion

Les oscillations de population sont un cas limite de réseau de population, pour lequel les franges d'interférences spatiales sont infinies. Le réseau de population est dû aux interférences temporelles entre la pompe et la sonde et est donc un réseau purement temporel. La diffraction de la pompe sur ce réseau restitue un champ à la fréquence sonde et dans la direction de la sonde. On peut comprendre le retard vu par la sonde comme le temps qu'il faut au réseau de population pour s'établir et au transfert d'énergie de la pompe vers la sonde pour se faire.

Quelle différence y a-t-il entre le creusement spectral et les oscillations cohérentes de population ? Dans les deux cas, on observe un trou de transparence dans le profil d'absorption et ce sont les populations qui en sont à l'origine. Cependant dans le cas des oscillations de population le trou est creusé à l'intérieur de la largeur homogène et sa largeur est proche de la largeur naturelle. Par ailleurs contrairement au creusement spectral il faut que la pompe et la sonde soient présentes en même temps et cohérentes entre elles pour observer les oscillations de population car c'est un processus de mélange à 4 ondes. Enfin ce n'est pas une simple déplétion de la population du niveau fondamental mais son battement, cohérent avec le battement d'intensité qui permet de créer un trou. C'est en cela qu'on peut parler d'un effet cohérent, sur la population et pas sur la cohérence optique⁴ Comme nous allons le voir, en excitant une transition élargie de manière inhomogène avec deux champs cohérents, les deux phénomènes, creusement spectral et oscillations cohérentes de population, coexistent.

4.2.2 Élargissement homogène

Les figures 4.5 représentent le profil d'absorption (équ.(4.19)) et de dispersion (équ.(4.20)) pour différents paramètres de saturation S , défini par $S = \Omega^2 T_1 T_2$, et pour une pompe en résonance avec la transition $\omega = \omega_{21}$. Le trou spectral dû aux oscillations de population apparaît à l'intérieur de la largeur homogène et s'élargit avec la saturation. A l'intérieur de la courbe de dispersion de pente négative correspondant à la raie homogène, la brusque variation de l'indice n de pente positive est due aux oscillations de population. Lorsque la saturation augmente ($S > 0.5$) la pente de l'indice de réfraction en $\delta = 0$ diminue, conjointement avec l'élargissement du trou dans l'absorption. L'effet de ralentissement est d'autant atténué.

Les figures 4.6 représentent le profil d'absorption et de dispersion pour différents paramètres de saturation S et pour une pompe décalée de $2\gamma_h$ par rapport à la résonance ω_{21} . Avec une pompe non résonante, les profils d'absorption et de dispersion sont échangés : le profil d'absorption des oscillations de population a une forme dispersive et vice-versa.

⁴La cohérence optique d'un système à deux niveaux oscille à la fréquence de la transition optique ω_{21} avec une "bande passante" limitée par la largeur homogène, alors que les populations évoluent autour de la fréquence nulle avec une "bande passante" limitée par la largeur naturelle.

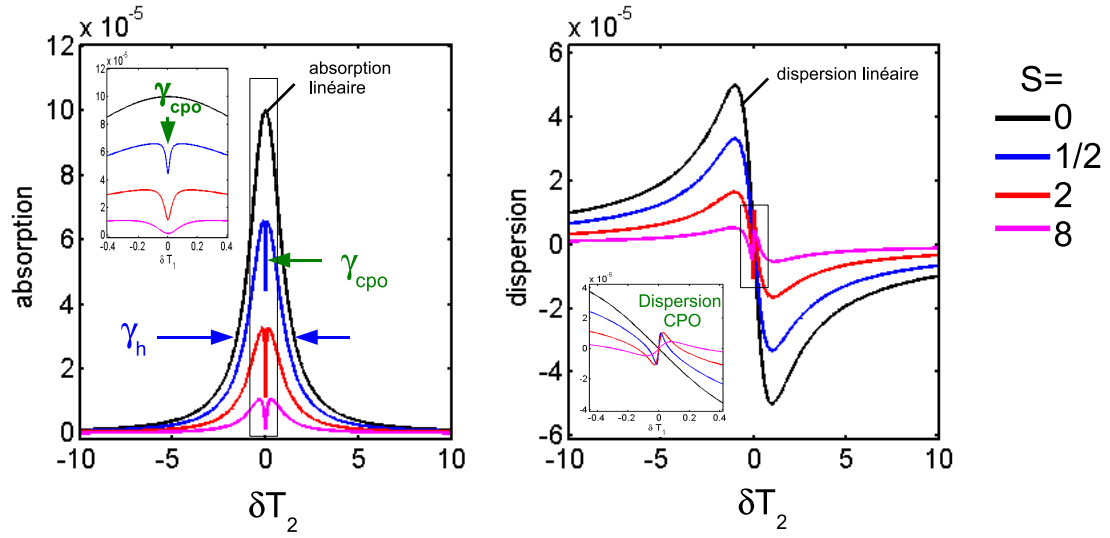


FIG. 4.5 – Profils d'absorption et de dispersion en fonction du désaccord pompe sonde δ calculés pour $\gamma_{nat} = 0.1\gamma_h$, pompe en résonance, pour différents paramètres de saturation $S=0, 0.5, 2, 8$.

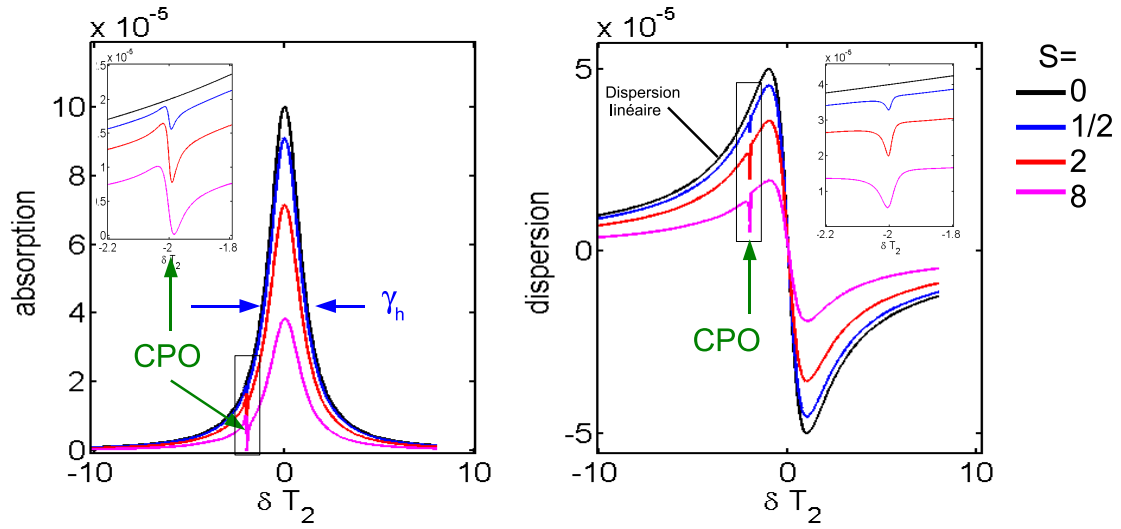


FIG. 4.6 – Profils d'absorption et de dispersion en fonction du désaccord pompe sonde δ calculés pour $\gamma_{nat} = 0.1\gamma_h$, pompe décalée de $2\gamma_h$ pour différents paramètres de saturation $S=0, 0.5, 2, 8$.

Pour un faisceau pompe en résonance ($\Delta = 0$), il est possible de faire quelques simplifications dans l'expression de la susceptibilité. En supposant par ailleurs que $T_2 \ll T_1$, c'est-à-dire que les processus déphasants sont importants, et que le désaccord pompe-sonde δ est petit devant $1/T_2$, l'expression de p_1 se simplifie, et donne les expressions de l'absorption et de la dispersion pour la sonde à $\omega + \delta$ [108, 6] :

$$\begin{aligned}\alpha(\delta) &= \frac{\alpha_0}{1+S} \left(1 - \frac{\varepsilon S(1+S)}{(\delta T_1)^2 + (1+S)^2} \right), \\ n(\delta) &= 1 + \frac{\alpha_0 T_1}{2\omega} \frac{\varepsilon S}{1+S} \frac{\delta}{(\delta T_1)^2 + (1+S)^2},\end{aligned}\tag{4.22}$$

$\varepsilon = 1$ pour une seule sonde, $\varepsilon = 2$ pour deux sondes à $\omega \pm \delta$ ⁵. Le paramètre de saturation S s'écrit également sous la forme $S = I/I_{sat}$, avec I l'intensité (en W/cm²) éclairant le cristal et

$$I_{sat} = \frac{1/2c\varepsilon_0 n}{|\mu_{21}|^2 T_1 T_2},\tag{4.23}$$

D'après l'expression de l'absorption éq. (4.22), la demi-largeur du trou spectral dû aux oscillations cohérentes de population est(en Hz)

$$\Gamma_{CPO} = \frac{1}{2\pi T_1} (1+S).\tag{4.24}$$

Le temps de groupe correspondant à la dispersion autour de $\omega = \omega_{21}$, c'est-à-dire en $\delta = 0$ est défini par $T_g = \frac{L}{c} n_g = \frac{L}{c} \left(n_0 + \omega \frac{dn}{d\omega} \right) \approx \frac{L\omega}{c} \frac{n(\delta) - n(-\delta)}{2\delta}$. Compte tenu de la forte dispersion l'indice de réfraction linéaire est négligé. L est la longueur du cristal. L'expression du temps de groupe est

$$T_g = \frac{\varepsilon \alpha_0 T_1 L}{2} \frac{S}{1+S} \frac{1}{(\delta T_1)^2 + (1+S)^2}.\tag{4.25}$$

4.2.3 Élargissement inhomogène

L'élargissement inhomogène ne brouille pas les oscillations cohérentes de population, qui se rajoutent au creusement spectral [4, 103]. Pour un élargissement inhomogène, la susceptibilité à $\omega + \delta$ est simplement donnée par l'intégration sur le profil inhomogène $g(\Delta)$ de la susceptibilité homogène :

$$\chi^{inh}(\delta, \Delta_0, S) = \int_{-\infty}^{\infty} \chi^{hom}(\delta, \Delta - \Delta_0, S) g(\Delta) d\Delta,\tag{4.26}$$

ou Δ_0 est la position de la pompe par rapport au maximum du profil inhomogène.

⁵Cette situation est celle des expériences où la sonde est obtenue en modulant sinusoïdalement l'intensité du faisceau pompe à la fréquence δ , créant ainsi deux composantes spectrales à $\omega \pm \delta$

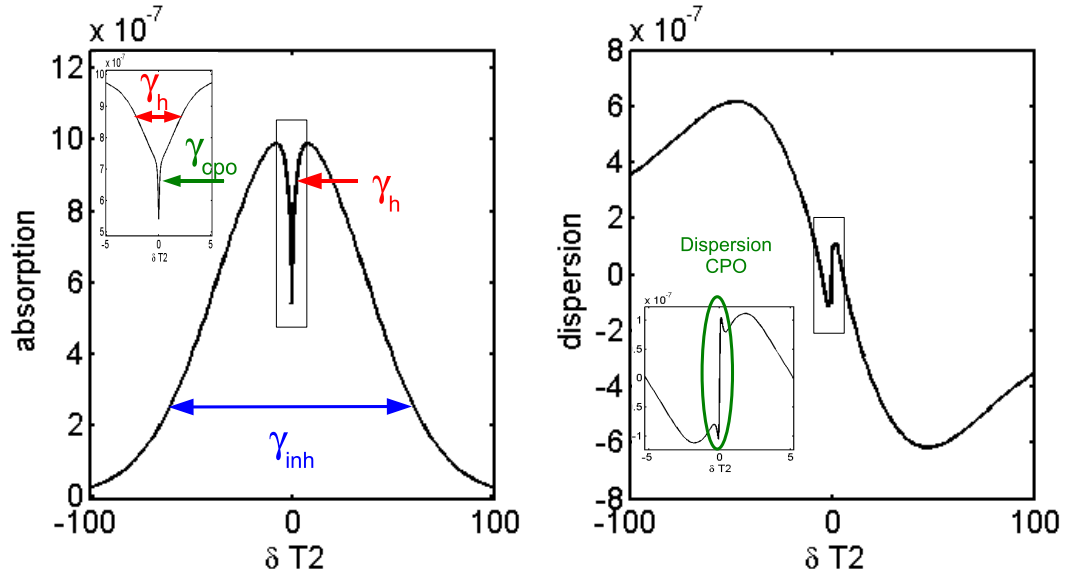


FIG. 4.7 – Profils d'absorption et de dispersion en fonction du désaccord pompe sonde δ calculés pour un élargissement inhomogène de $\gamma_{inh} = 50\gamma_h$ et une largeur naturelle $\gamma_{nat} = 0.05\gamma_h$, la pompe étant au milieu de l'élargissement inhomogène $\Delta_0 = 0$, $S = 1$.

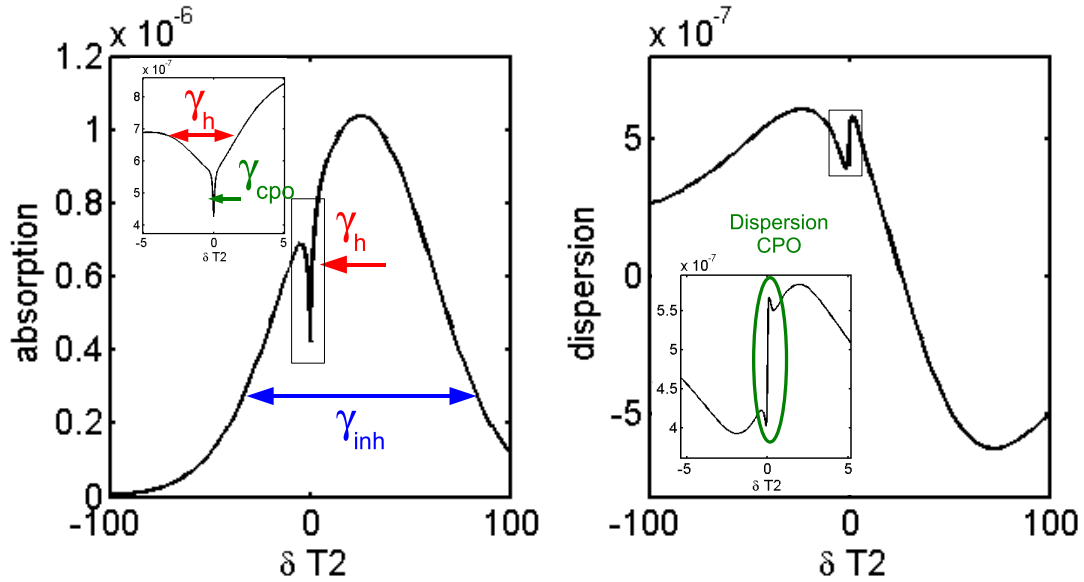


FIG. 4.8 – Profils d'absorption et de dispersion en fonction du désaccord pompe sonde δ calculés pour un élargissement inhomogène de $\gamma_{inh} = 50\gamma_h$ et une largeur naturelle $\gamma_{nat} = 0.05\gamma_h$, la pompe étant au milieu de l'élargissement inhomogène $\Delta_0 = 25\gamma_h$, $S = 1$.

Les figures 4.7 et 4.8 représentent les profils d'absorption et de dispersion obtenus selon l'équation (4.26) pour un élargissement inhomogène gaussien⁶ de largeur $\gamma_{inh}=50 \gamma_h$. La largeur naturelle de $\gamma_{nat} = 0.05\gamma_h$. La figure 4.7 est tracée pour une pompe au milieu de l'élargissement inhomogène $\Delta_0 = 0$ alors que la figure 4.8 est tracée pour un laser pompe à $\Delta_0 = 25\gamma_h$, sur le flanc du profil inhomogène.

Même en n'étant pas au maximum de l'absorption comme dans le cas de la figure 4.8, la pompe est en résonance avec une classe d'ions et induit avec la sonde un battement de la population de cette classe. D'après les figures 4.7 et 4.8, on constate que la pompe, en $\Delta_0 = 0$ ou en $\Delta_0 = 25\gamma_h$, induit un trou de creusement spectral dont la largeur est de l'ordre de $2\gamma_h$, c'est effet de creusement spectral. A l'intérieur de ce trou, un second trou de largeur γ_{CPO} est présent. Ce second trou est dû au battement de la population de la classe d'ions sélectionnée par la pompe. Les ions qui ne sont pas exactement en résonance avec la pompe contribuent également à l'effet comme on peut le voir sur le profil d'absorption dans le cas homogène non résonant de la figure 4.5.

Comme pour l'élargissement homogène, lorsque la saturation augmente, le trou des oscillations de population s'élargit, la pente de la dispersion diminue, et l'indice de groupe mesurant le ralentissement est réduit. Pour un décalage pompe-sonde δ petit l'expression analytique de l'absorption peut être obtenue [108] :

$$\alpha(\delta) = \frac{\alpha'_0}{\sqrt{1+S}} \left(1 - \frac{\varepsilon S/2}{(\delta T_1)^2 + 1 + S} \right). \quad (4.27)$$

$\alpha'_0 = \pi\alpha_0 g(\Delta_0)/T_2$, est le coefficient d'absorption de la pompe (et de la sonde) pour un élargissement inhomogène.

4.2.4 Homogène versus inhomogène

La réponse totale du système inhomogène inclut les contributions de systèmes résonants et non résonants, ce qui a pour effet de moyenner la saturation par rapport à un système homogène excité en résonance. Le tableau 4.1 résume les différents comportements du système vis-à-vis de la puissance de pompe (S), pour $\delta \rightarrow 0$.

La figure 4.9 représente les retards de groupe T_g dans les cas d'un élargissement homogène et inhomogène en fonction du paramètre de saturation S . Dans les deux cas, le retard est nul lorsque S est nul : aucune puissance n'est injectée dans le système, il n'y a donc pas d'effet. T_g croît avec S puisque de plus en plus de systèmes à deux niveaux participent aux oscillations de population. Enfin pour $S \gg 1$ le nombre d'ions dont la population oscille diminue de nouveau du fait de la saturation.

Dans le cas du système homogène, le retard T_g retombe très vite à zéro une fois passé le maximum. Dans le cas d'un élargissement inhomogène, il revient plus lentement à l'équilibre du fait de la contributions des systèmes non résonants.

⁶ $g(\Delta) = \frac{1}{\gamma_{inh}\sqrt{\pi}} \exp(-\frac{\Delta^2}{\gamma_{inh}^2})$

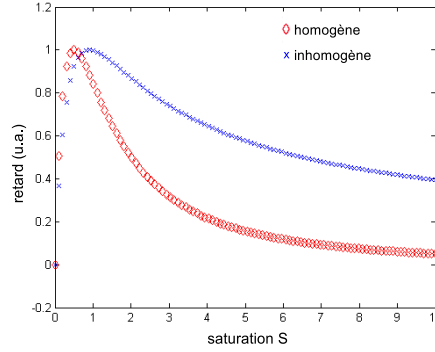


FIG. 4.9 – Profil normalisé du retard de groupe induit par les oscillations de population en fonction du paramètre de saturation S dans le cas d'un élargissement homogène et inhomogène.

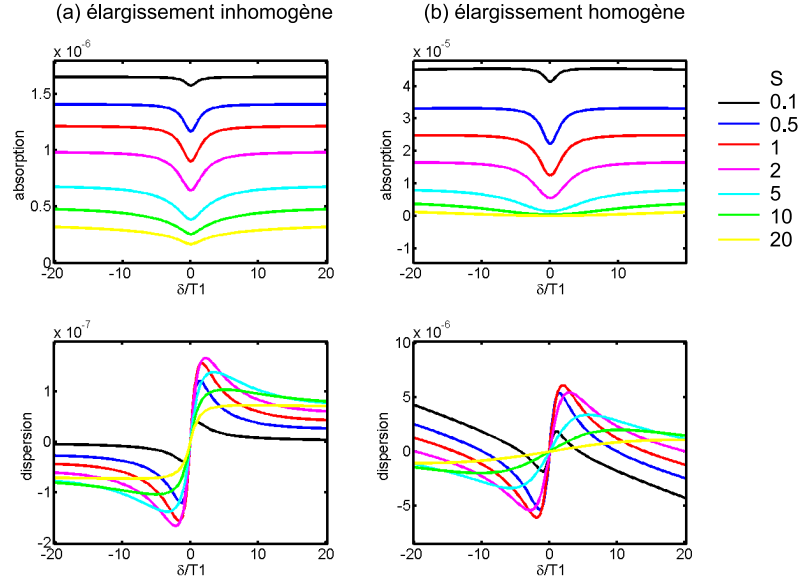


FIG. 4.10 – Profils d'absorption et de dispersion agrandis autour de $\delta = 0$) en fonction du désaccord pompe sonde δ pour différents paramètres de saturation calculés pour un élargissement homogène (b) et inhomogène (a) la pompe étant au milieu de l'élargissement inhomogène $\Delta_0 = 0$ s.

4.2.5 Conclusion

Les oscillations de population sont plutôt bien comprises dans le cas d'un système à 2 niveaux ne présentant qu'un élargissement homogène. Quelques travaux théoriques [108, 109] dont les résultats ont été présentés dans le paragraphe précédent ont également

	homogène	inhomogène
$\alpha(\delta \rightarrow 0)$	$\frac{\alpha_0}{1+S} \left(1 - \frac{\varepsilon S}{1+S}\right)$	$\frac{\alpha_0}{\sqrt{1+S}} \left(1 - \frac{\varepsilon S/2}{1+S}\right)$
$T_g(\delta \rightarrow 0)$	$\propto \frac{S}{(1+S)^3}$	$\propto \frac{S(4+S)}{(1+S)^{5/2}}$

TAB. 4.1 – Résumé des caractéristiques des oscillations cohérentes de population dans les cas d'un élargissement homogène et inhomogène [4, 109].

traité de l'élargissement inhomogène. Les oscillations de population ont également été observées et étudiées dans les cas d'un élargissement homogène [6] ou inhomogène [17]. La nouveauté de ce travail est de les considérer depuis le point de vue de la lumière ralentie et de faire des mesures du retard dans le cas d'un élargissement inhomogène dont nous tirons parti.

4.3 Ralentissement dans Er :YSO

Cette partie présente les résultats de ralentissement obtenus dans $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$. Nous commençons par le dispositif expérimental et la méthode de mesure du temps de groupe. Les expériences de mesure de la vitesse de groupe, réalisée avec une pompe et 2 sondes sont présentées, suivies des résultats originaux concernant l'élargissement inhomogène. Les expériences de propagation d'impulsion sont enfin détaillées.

4.3.1 Dispositif expérimental

Comme nous l'avons vu précédemment la largeur spectrale du trou dû aux oscillations de population (éq. (4.24)) est limitée par la largeur naturelle de la transition optique. Nous avons mesuré un temps de vie T_1 de 10 ms, correspondant à une largeur naturelle de 16 Hz. Pour pouvoir observer des oscillations cohérentes de population, il faut disposer d'une pompe et d'une ou deux sondes cohérentes entre elles décalées de quelques Hertz seulement. Utiliser deux lasers est impossible compte tenu des fluctuations relatives de leur fréquences respectives. Il est bien plus simple d'utiliser un seul faisceau laser modulé en amplitude afin de générer deux bandes latérales autour de la fréquence laser ⁷. Cette technique, que nous allons détailler ici, est introduite dès l'origine pour l'utilisation des oscillations cohérentes de population en spectroscopie [108] et a été reprise dans les expériences de lumière ralentie par M. Bigelow *et al.* [6].

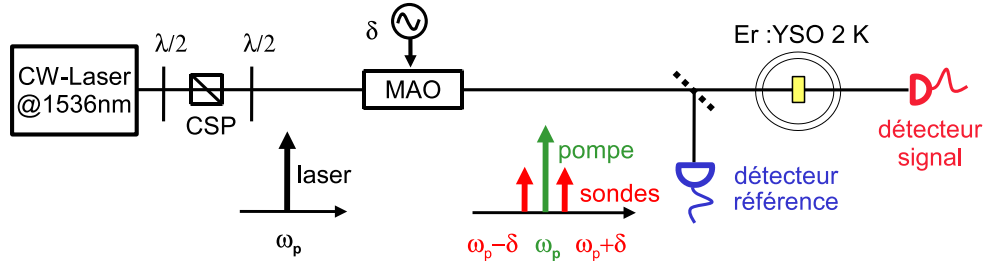


FIG. 4.11 – Dispositif expérimental utilisé pour les expériences de ralentissement. Le faisceau est modulé en amplitude dans un modulateur acousto-optique (MAO) par un sinus de pulsation δ afin de créer deux bandes latérales à $\pm\delta$ autour de la porteuse optique à ω_p . La modulation d'intensité est détectée avant et après son passage dans le cristal (référence et signal), maintenu à 2 K dans un cryostat. $\lambda/2$: lame demi-onde, CSP : cube séparateur de polarisation.

Schéma

La figure 4.11 représente le schéma du dispositif expérimental utilisé dans les expériences de ralentissement de la lumière dans $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ par oscillations cohérentes de population. Les champs pompe et sonde sont issus du laser accordable continu *Koheras Adjustik* décrit en 2.3. La première lame demi-onde ($\lambda/2$) et le cube polariseur (CSP) permettent de contrôler l'intensité du laser. La seconde lame demi-onde permet d'ajuster la polarisation linéaire du faisceau pour être parallèle à l'axe D_2 suivant lequel l'absorption dans le cristal est maximale.

Afin de générer la sonde décalée de δ par rapport à la fréquence de la pompe, l'intensité du laser est modulée à l'aide d'un acousto-optique (MAO). Les deux bandes latérales créées jouent le rôle de sonde comme il a été précisé en 4.2. La puissance RF pilotant le MAO est ainsi modulée suivant la fonction $f(t) = 1 + m \cos(\delta t)$, où m est la profondeur de modulation. Dans notre cas, la profondeur de modulation mesurée sur l'intensité du faisceau vaut 10% afin de rester dans l'approximation d'une sonde faible ($\mathcal{E}_1 \ll \mathcal{E}_0$) et du développement perturbatif éq.(4.16)⁸.

Après le MAO, le faisceau modulé est scindé en deux à l'aide d'une lame séparatrice. Un des deux faisceaux sert de *référence* tandis que l'autre faisceau est envoyé sur le cristal situé dans le cryostat, et sera appelé *signal*. Une lentille ($f = 250$ mm) permet de focaliser le faisceau au milieu du cristal sur un waist de $w = 540 \mu\text{m}$ ⁹.

Les deux faisceaux sont détectés à l'aide de photodiodes InGaAs (*Newfocus 1811*).

⁷Un dispositif à modulation de fréquence, créant également deux bandes latérales en opposition de phase ne peut pas être utilisé car les contributions de chaque bande latérale s'annulent.

⁸Les mesures expérimentales pour des profondeurs de modulation plus faibles ont permis de mesurer un ralentissement identique. Nous avons choisi 10% de modulation en intensité de manière à améliorer le rapport signal sur bruit.

⁹La taille du faisceau a toutefois été modifiée plusieurs fois lors des expériences.

Les composantes alternatives du photocourant sont démodulées à l'aide de détections synchrones (*SRS-830 DS*) dont les sorties amplitudes et phases sont échantillonnées et enregistrées sur un PC, simultanément avec les composantes continues détectées. Aux fréquences de travail, le bruit en $1/f$ est très important ce qui nous contraint à faire un moyennage sur plus de 10 000 mesures et pendant quelques secondes pour chaque point expérimental.

Nous revenons maintenant plus particulièrement sur la méthode de mesure du retard accumulé par la sonde lorsqu'il y a un effet d'oscillations de population.

Modulation et bande latérale

Après modulation dans l'acousto-optique, le faisceau laser diffracté contient 3 fréquences :

$$f(t) \times (\mathcal{E}_0(t)e^{i\omega t} + cc) = \mathcal{E}_0 \left(e^{i\omega t} + \frac{m}{2} (e^{i(\omega-\delta)t} + e^{i(\omega+\delta)t}) \right) + cc$$

Le champ à ω joue le rôle de la pompe, tandis que les deux composantes spectrales créées à $\omega \pm \delta$ jouent le rôle de sondes. Pour faire le lien avec la partie théorique, on a ici $\mathcal{E}_{-1} = \mathcal{E}_1 = \frac{m}{2}\mathcal{E}_0$.

L'effet de la propagation dans le cristal se traduit pour chaque composante spectrale par une atténuation et un déphasage qui s'écrivent :

$$\mathcal{E} = t(0)\mathcal{E}_0e^{i\omega t} + \frac{m}{2}\mathcal{E}_0t(-\delta)e^{-i\varphi(-\delta)}e^{i(\omega-\delta)t} + \frac{m}{2}\mathcal{E}_0t(\delta)e^{-i\varphi(\delta)}e^{i(\omega+\delta)t} \quad (4.28)$$

avec $t(\pm\delta)$ la transmission en amplitude et $\varphi(\pm\delta)$ la phase accumulée par les composantes à $\omega \pm \delta$ lors de la propagation dans le cristal. Les interférences temporelles entre pompe et sonde à δ qui sont à l'origine du battement de population sont en fait créées directement par la modulation d'intensité.

Le signal détecté par la photodiode est proportionnel à $\mathcal{E}\mathcal{E}^*$ et contient 3 composantes fréquentielles :

- un terme continu $s_0 = |\mathcal{E}_0|^2 \left[|t(0)|^2 + \frac{m^2}{4} (|t(\delta)|^2 + |t(-\delta)|^2) \right] \approx |t(0)\mathcal{E}_0|^2$
- un terme oscillant à δ : $s_\delta(t) = m|\mathcal{E}_0|^2 \text{Re} [(t(0)t^*(\delta) + t^*(0)t(-\delta))e^{i\delta t}]$
- un terme oscillant à 2δ : $s_{2\delta}(t) = \frac{m^2|\mathcal{E}_0|^2}{2} \text{Re} [t(\delta)t^*(-\delta)e^{i2\delta t}]$

En supposant que les deux composantes spectrales à $\pm\delta$ sont atténuées de la même manière $t(\delta) = t(-\delta)$, le signal $s_\delta(t)$ à la fréquence δ s'écrit

$$\begin{aligned} s_\delta(t) &= m t(0)t(\delta)|\mathcal{E}_0|^2 \cos\left(\frac{\varphi(\delta) + \varphi(-\delta)}{2}\right) \cos\left(\delta t - \frac{\varphi(\delta) - \varphi(-\delta)}{2}\right), \\ s_\delta(t) &\propto S_\delta \cos(\delta(t - T_g)) \end{aligned} \quad (4.29)$$

avec $S_\delta = t(0)t(\delta)$. La figure 4.12 illustre les signaux détectés avant et après propagation dans le cristal, dans le cas où la pulsation de modulation δ est supérieure ou inférieure à la largeur naturelle $\gamma_{nat} = 1/T_1$. Dans ce dernier cas, les oscillations de population induisent deux effets : l'augmentation de la transmission et un déphasage de la modulation.

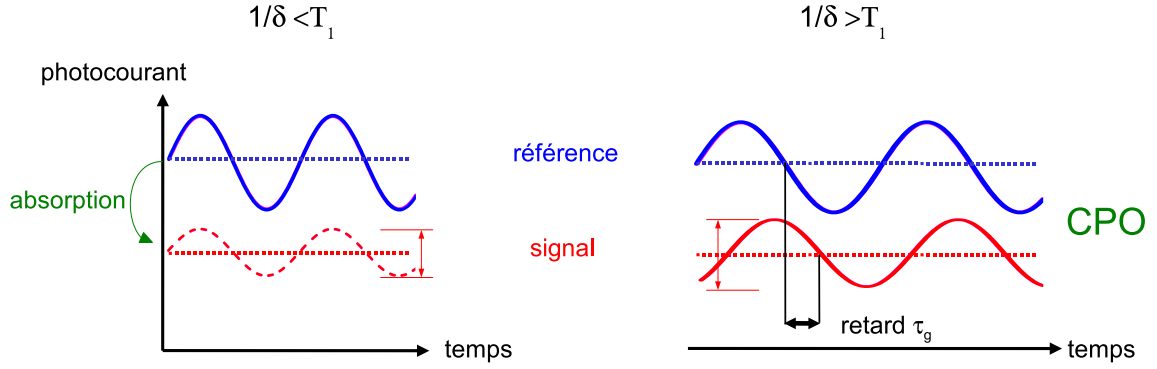


FIG. 4.12 – Détection du temps de groupe pour une modulation sinusoïdale à la pulsation δ . Lorsque la fréquence de modulation est importante par rapport à la largeur naturelle de la transition, seule l'absorption des différentes composantes spectrales est visible. A basse fréquence, l'effet des oscillations cohérentes de population est de limiter l'absorption de la modulation et d'induire un déphasage, signe du ralentissement des composantes spectrales sonde $\omega \pm \delta$.

Augmentation de la transmission

D'après le paragraphe (4.2), l'effet d'oscillations cohérentes de population se traduit par une diminution de l'absorption de la sonde. On y a accès expérimentalement via l'amplitude de la démodulation S_δ . A l'ordre 1 en m , le rapport $M = \frac{S_\delta^2}{s_0}$ est proportionnel à la transmission en intensité des sondes :

$$M = \frac{|S_\delta|^2}{s_0} \propto t^2(\delta). \quad (4.30)$$

En tenant compte de l'expression de l'absorption éq.(4.21) $\alpha = \alpha_{inc} + \alpha_{coh}$, $t_0 = e^{-\alpha_{inc}L/2}$ et $t_\delta = e^{-(\alpha_{inc} + \alpha_{coh})L/2}$, on en déduit que

$$M \propto e^{-\alpha_{coh}L}, \quad (4.31)$$

où L est la longueur de propagation. La variation de M en fonction de δ permet de faire apparaître le trou spectral dû aux oscillations de population. Même en utilisant des détections synchrones, cette mesure est plus entachée de bruit que celle du retard.

Temps de groupe

Du fait de la dispersion qu'elles induisent, les oscillations de population retardent la modulation. La phase de la démodulation à δ du *signal* détecté est $\phi_s = \frac{\varphi(\delta) - \varphi(-\delta)}{2}$. Le

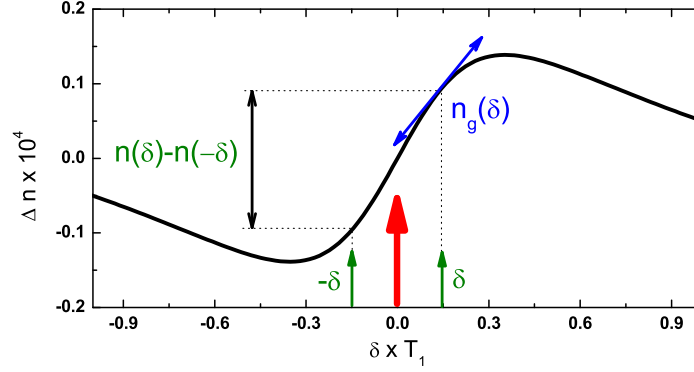


FIG. 4.13 – Principe de la mesure du retard $T_g(\delta)$, différence avec la mesure de l'indice de groupe $n_g(\delta)$.

retard T_g introduit dans l'équation 4.29 s'écrit :

$$T_g(\delta) = \frac{\varphi(\delta) - \varphi(-\delta)}{2\delta} = \left[\frac{d\varphi}{d\delta} \right]_{\delta=0}. \quad (4.32)$$

Ce retard $T_g(\delta)$ est une mesure du temps de groupe pour la fréquence centrale ω . T_g est obtenu expérimentalement en faisant la différence des phases *signal* et *référence* issue des détections synchrones, divisée par la fréquence angulaire de modulation :

$$T_g^{exp} = \frac{\phi_s - \phi_r}{\delta}, \quad (4.33)$$

exprimé en secondes. L'utilisation de détections synchrones permet de résoudre des différences de phase de l'ordre du mrad. A 10 Hz, cela correspond à un temps de propagation de l'ordre de la dizaine de μs , ce qui n'est pas très rapide. Le dispositif est donc complètement insensible à la différence de temps de propagation entre les deux chemins optiques lorsque nous travaillons en dehors de l'absorption et qu'il n'y a pas de ralentissement. On vérifie que lorsque la fréquence laser n'est pas dans l'absorption, T_g^{exp} est nul, dans la limite des barres d'erreur.

Remarque 1 La mesure de $T_g(\delta)$ éq.(4.32) n'est pas celle de l'indice de groupe $n_g(\delta)$ puisque qu'elle donne la pente de la phase, et de l'indice de réfraction, autour de la fréquence pompe, et non autour de la fréquence sonde. Cette différence est illustrée sur la figure 4.13. T_g^{exp} est la mesure exacte du temps de propagation d'une impulsion qui aurait une largeur spectrale de 2δ . Cette mesure est valide tant qu'il n'y a pas de dispersion de temps de groupe et que les impulsions ne sont pas déformées. On assimilera T_g au retard accumulé par les deux sondes à $\omega \pm \delta$ lors de la propagation dans le cristal.

Remarque 2 La largeur spectrale du laser utilisé est de 2 kHz, ce qui est nettement supérieur à la largeur du trou spectral dû aux oscillations de population. Il peut sembler dès lors improbable qu'on puisse détecter une telle structure avec notre laser. En fait la largeur spectrale du laser n'est pas limitante ici. Comme nous l'avons vu dans la partie théorique, les oscillations de population sont dues aux interférences temporelles entre les deux faisceaux pompe et sonde. Elles ne sont pas sensibles au bruit de fréquence des lasers eux même mais au bruit en fréquence et en intensité du battement entre les deux faisceaux [105]. En utilisant un modulateur acousto optique pour générer directement la modulation d'intensité, la fréquence du battement est parfaitement bien définie compte tenu de la stabilité du générateur de fonction .

4.3.2 Mesures de vitesse de groupe

Dans ce paragraphe, les résultats expérimentaux obtenus avec la technique de modulation qui vient d'être décrite sont présentés. Différents paramètres ont été étudiés : intensité laser, fréquence du battement, température, absorption et gain.

Puissance de pompe

La figure 4.14 représente les mesures expérimentales du retard T_g en fonction de la puissance du faisceau laser, assimilée à la puissance de la pompe. La modulation est en effet faible et la constante de temps du puissance-mètre est lente par rapport à la modulation d'intensité. Ces mesures sont faites pour des fréquences de modulation $\delta/2\pi$ allant de 10 Hz à 1 kHz. La longueur d'onde de la pompe est accordée au maximum du profil inhomogène de l'absorption (en E figure 2.7). La ligne continue (inhomogène) est obtenue selon la formule du tableau 4.1, avec un coefficient de proportionnalité ajusté aux résultats. La ligne discontinu (homogène) est obtenue selon la formule (4.25) avec $T_1 = 10$ ms, $L = 3$ mm, $\alpha_0 = 6.5 \text{ cm}^{-1}$. Dans les deux cas, S est ajusté de façon à faire coïncider les maxima expérimental et théorique.

On voit clairement sur la figure 4.14 que le retard T_g est nul lorsque l'intensité de la pompe est faible ($S \ll 1$) car le nombre d'ions erbium excités est trop faible pour induire un effet appréciable. De la même manière lorsque la saturation est importante, le nombre d'ions dont la population oscille effectivement est réduit et l'effet est moins important.

Comme expliqué dans le paragraphe 4.2, le comportement entre élargissement homogène (ligne discontinu) et inhomogène (ligne continue) est différent à forte saturation. Dans $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$, l'ajustement inhomogène retrace le comportement expérimental avec plus de justesse pour les fortes puissances. Pour une puissance de $500 \mu\text{W}$ par exemple, le retard obtenu avec un système élargi de manière homogène présentant les mêmes caractéristiques (absorption, temps de vie) serait nul alors qu'il est de 0.2 ms dans notre cristal. Loin de dégrader les performances des oscillations cohérentes de population en terme de ralentissement, l'utilisation de systèmes à deux niveaux dont la transition est élargie de manière inhomogène permet de bénéficier d'une saturation moins rapide.

A faible saturation les deux comportements, homogène et inhomogène sont équivalents, (figure 4.14.b.). L'effet des ions n'appartenant pas à la classe sélectionnée par la pompe est négligeable. Pour les résultats obtenus pour la puissance optimale, l'équation du retard en fonction de la fréquence du battement obtenu pour l'élargissement homogène éq.(4.25) est utilisée lors des ajustements entre théorie et expérience.

Le maximum de retard T_g apparaît pour une puissance de $P_{opt} = 12 \mu\text{W}$ soit une intensité de $I_{opt} = 2.1 \text{ mW/cm}^2$. Ce résultat est six ordres de grandeur plus faible que les intensités nécessaires dans les expériences d'oscillations de population dans le rubis [6], l'alexandrite [5] ou les puits quantiques [19], qui sont plutôt de l'ordre du kW/cm^2 . Cette intensité est du même ordre de grandeur que celles utilisées par L. Hau *et al.* dans les premières expériences de propagation ultra-lente dans un BEC de sodium [9].

Fréquence d'excitation

Les mesures expérimentales du retard T_g et transmission relative M de la sonde en fonction de la fréquence de modulation $\delta/2\pi$ sont représentées sur la figure 4.15, pour une puissance laser optimale de $P_{opt} = 12 \mu\text{W}$ (voir figure 4.14).

Comme précisé précédemment, la transmission relative de la sonde est supérieure à 1 car la référence de transmission est la pompe dont l'absorption est saturée. Le profil de M en fonction du désaccord pompe-sonde δ est représentatif de la fenêtre de transparence créée autour de la fréquence pompe par les oscillations de population. Nous mesurons une demi largeur du trou de $\Gamma_{CPO} = 30 \text{ Hz}$, qui correspond à la largeur théorique de 30.4 Hz selon la formule (4.24) pour $T_1 = 10 \text{ ms}$ et $S = 0.9$. Lorsqu'elles sont efficaces, c'est à

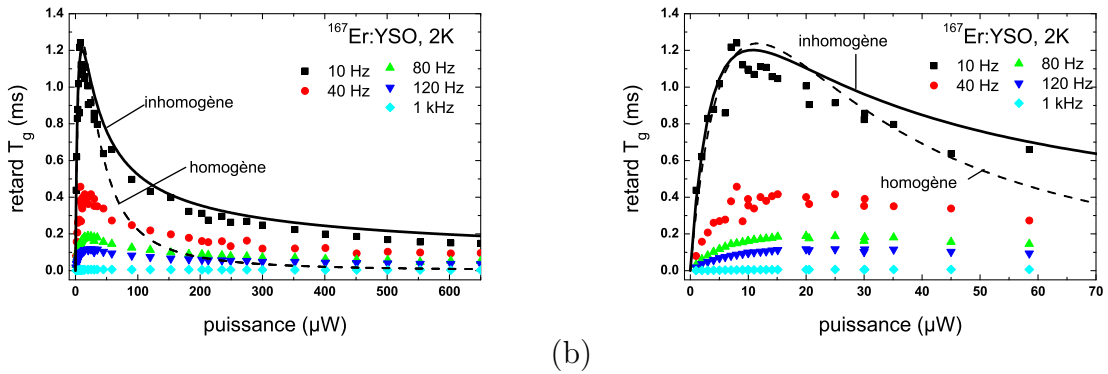


FIG. 4.14 – Retard T_g en fonction de la puissance laser (paramètre de saturation S) pour différents battements pompe-sonde δ . (b) Agrandissement à faible puissance. La ligne continue (inhomogène) est obtenue selon la formule du tableau 4.1, avec un coefficient de proportionnalité ajusté aux résultats. La ligne discontinue (homogène) est obtenue selon la formule (4.25) avec $T_1 = 10 \text{ ms}$, $L = 3 \text{ mm}$, $\alpha_0 = 6.5 \text{ cm}^{-1}$. S est ajusté pour faire coïncider les maxima expérimental et théorique dans les 2 cas.

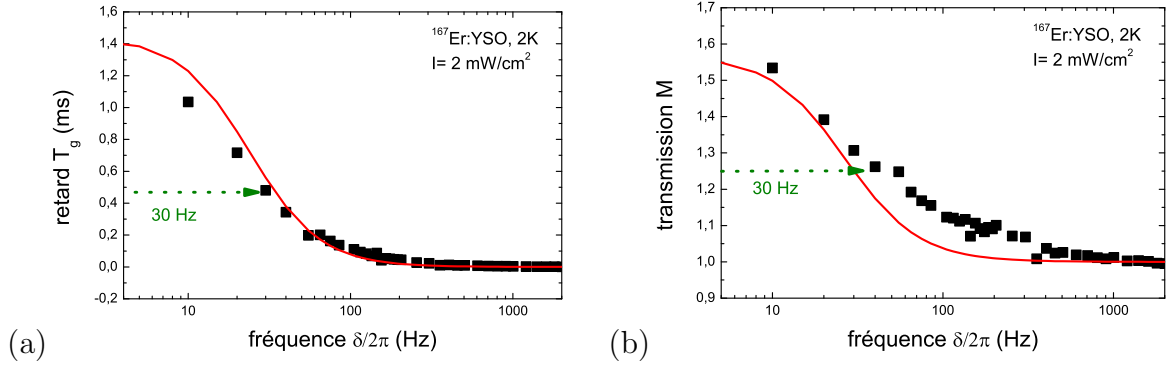


FIG. 4.15 – (a) Retard T_g et (b) transmission relative M de la sonde en fonction de la fréquence de modulation $\delta/2\pi$ pour une intensité optimale de 2.1 mW/cm^2 selon la figure 4.14. Les lignes continues sont obtenues selon les équations (4.25) pour T_g et (4.22) (4.31) pour M , avec $T_1 = 10 \text{ ms}$ et $S = 0.9$.

dire pour $\delta < \gamma_{\text{nat}} = 1/T_1$, les oscillations de population induisent une augmentation de la transmission qui s'ajoute à l'augmentation de la transmission due à la simple saturation par le champ pompe. Cette augmentation par l'effet d'oscillation cohérente est de 55% à $\delta = 10 \text{ Hz}$.

Le retard T_g mesuré (figure 4.15) décroît comme on s'y attendait avec la fréquence $\delta/2\pi$. En effet en augmentant δ les sondes s'écartent du maximum de la dispersion due aux oscillations de population. Au delà de Γ_{CPO} elles sont hors de la dispersion et ne sont donc plus retardées. Le retard mesuré dans les conditions d'excitation optimales, i.e. 2.1 mW/cm^2 , $\delta = 10 \text{ Hz}$, est de $1.1 \pm 0.1 \text{ ms}$. Ce retard correspond à une vitesse de groupe expérimentale de $2.7 \pm 0.2 \text{ m/s}$, soit une réduction de 8 ordres de grandeur de la vitesse de propagation de la lumière. Ce résultat rejoint les quelques démonstrations de propagation “ultra-lente” présentées en introduction.

Température

Nous avons fait les expériences également à 4 K dans un cryostat à flux d'hélium. La largeur naturelle Γ_{nat} n'est pas influencée par la température, alors que la largeur homogène Γ_h , elle, augmente rapidement avec la température. Les oscillations de population n'étant pas liée à la largeur homogène Γ_h , mais à la largeur naturelle Γ_{nat} , nous avons pu les observer de la même manière à 2 K et 4 K. Les figures 4.16 présentent le retard T_g et la transmission M en fonction de la fréquence du battement $\delta/2\pi$ lorsque le cristal est maintenu à 4 K. Le comportement du retard est identique pour les deux températures, alors que le comportement de la transmission relative M est un peu moins reproductible.

Comme à 2 K, nous avons mesuré un retard maximum de 1.1 ms à $\delta = 10 \text{ Hz}$ pour une puissance de $P_{\text{opt}} = 25 \text{ } \mu\text{W}$. Avec une focalisation sur un waist de $80 \text{ } \mu\text{m}$, cela fait une intensité de $I_{\text{opt}} = 200 \text{ mW/cm}^2$. Cette intensité optimale est 100 fois plus importante

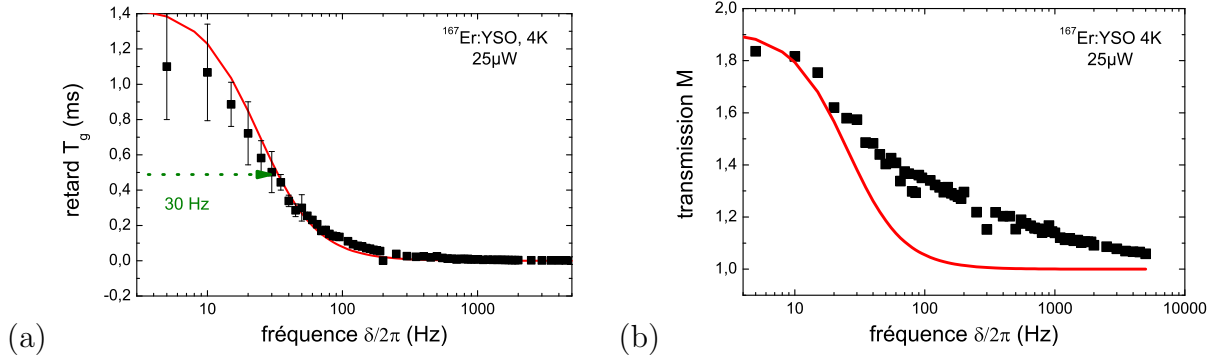


FIG. 4.16 – Retard T_g (a) et transmission relative M (b) de la sonde en fonction de la fréquence de modulation $\delta/2\pi$ pour une puissance optimale de $25 \mu\text{W}$, (waist $80 \mu\text{m}$) mesuré à 4 K. Les lignes continues sont obtenues selon les équations (4.25) pour T_g et (4.22) (4.31) pour M , avec $T_1 = 10 \text{ ms}$ et $S = 0.9$.

dans les expériences à 4 K que dans les expériences à 2 K, c'est-à-dire $I_{sat}^{4K} = 100 \times I_{sat}^{2K}$. Rappelons l'expression de I_{sat} (4.23) :

$$I_{sat} = \frac{1/2c\epsilon_0 n}{|\mu_{21}|^2 T_1 T_2}.$$

On peut supposer que la fréquence pompe est à peu près la même dans les deux expériences, puisqu'on travaille toujours au maximum de l'absorption et que donc μ_{21} est constant, de même que T_1 . Il vient que le temps de déphasage T_2 est diminué d'un facteur 100 en passant d'une température de 2 K à 4 K.

Absorption

En utilisant un cristal d' Y_2SiO_5 dopé à l'erbium naturel à 50 ppm, nous avons pu faire les expériences d'oscillations de population en changeant le maximum de l'absorption, tout en gardant les largeurs homogène et naturelle à peu près égales au cas d'un dopage exclusif à l'isotope 167. Comme on peut le voir sur le spectre d'absorption figure 2.7, l'absorption non saturée maximale vaut $\alpha_0 = 9.5 \text{ cm}^{-1}$ dans le cristal dopé à l'erbium naturel (6.5 cm^{-1} pour le cristal dopé à l'erbium 167).

Les figures 4.17 regroupent les résultats obtenus pour un cristal de $L=1 \text{ mm}$ de long à 2 K. On retrouve les variations du retard T_g fonction de la puissance laser pour $\delta/2\pi = 10 \text{ Hz}$ et $\delta/2\pi = 1 \text{ kHz}$. La puissance optimale est de $P_{opt} = 44 \mu\text{W}$, correspondant à une intensité de $I_{opt} = 27 \text{ mW/cm}^2$, avec une focalisation sur un waist de 1.3 mm^{10} . Les

¹⁰ce waist est supérieur à la taille du cristal utilisé (1 mm^3), les résultats en puissance sont à interpréter avec précaution. Ce dispositif nous a permis au corus d'une même expérience de passer du cristal dopé à l'erbium naturel au cristal dopé à l'isotope 167 (bien plus grand en taille) par une simple translation du porte échantillon, sans réaligement.

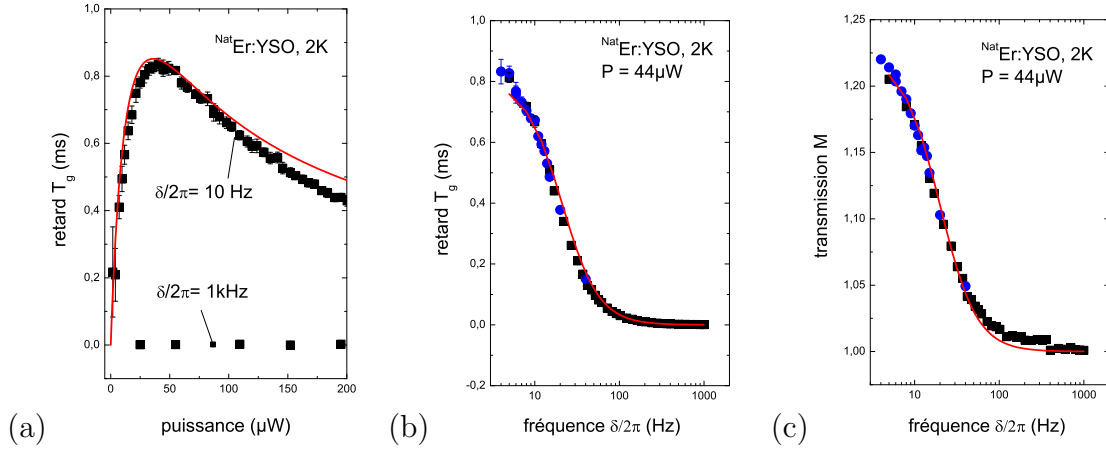


FIG. 4.17 – (a) Retard T_g en fonction de la puissance laser pour $\delta = 10 \text{ Hz}$ et $\delta = 1 \text{ kHz}$ dans un cristal dopé à l'erbium naturel (50 ppm). (b) Retard T_g et (c) transmission relative M de la sonde en fonction de la fréquence de modulation $\delta/2\pi$ pour une puissance optimale de $44 \mu\text{W}$.

figures 4.17.b et 4.17.c sont les tracés du retard et de la transmission M de la sonde en fonction de la fréquence de modulation $\delta/2\pi$ pour cette puissance optimale. La vitesse de groupe obtenue au maximum de l'absorption est de $v_g = 1.25 \pm 0.08 \text{ m/s}$ seulement, pour un retard T_g de $0.80 \pm 0.05 \text{ ms}$.

... petite remarque ... Ces résultats démontrent l'importance de l'absorption comme paramètre d'optimisation : plus le matériau est court et absorbant, plus la vitesse de groupe est faible. D'après l'équation (4.25), le retard ou la vitesse de groupe dépendent en effet directement de l'absorption α_0 . Plus précisément, l'indice de groupe n_g , qui mesure la réduction de la vitesse de groupe par rapport à la c varie comme le produit $\alpha_0 T_1$. La plus faible vitesse de groupe sera donc obtenue dans un système atomique ayant le coefficient d'absorption et la durée de vie les plus élevés. Néanmoins, afin d'avoir un coefficient de transmission $T \sim \exp -\alpha_0 L$ raisonnable, il faut compenser l'absorption en choisissant une longueur d'interaction plus faible. Il est par exemple possible d'obtenir un coefficient de transmission de l'ordre de 88 % dans $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ avec une vitesse de groupe $v_g = 2.7 \text{ m/s}$ en choisissant une longueur d'interaction de $200 \mu\text{m}$.

Par ailleurs, les phénomènes qui permettent de modifier α_0 peuvent être particulièrement intéressants pour contrôler l'effet. Qu'obtient-on en perturbant la population d'équilibre autour de laquelle le battement a lieu ? et en changeant la densité des systèmes sondés ? Le paragraphe suivant présente quelques résultats obtenus en régime de pompage optique pour répondre à la première de ces questions. Le manque d'une source laser de pompage adéquate n'a pas permis une étude très poussée. Par ailleurs de précédents résultats expérimentaux

ont déjà exploré ce principe [5]. La seconde interrogation trouvera une réponse originale dans le paragraphe 4.3.3, qui présente nos résultats concernant l'élargissement inhomogène [110].

Gain

Nous avons fait des expériences d'oscillations de population en pompant dans le niveau de Kramers $^4I_{13/2}(1)$ à 1526 nm (le schéma des niveaux est représenté sur la figure 2.5). Pour éviter la confusion entre les différents faisceaux "pompe", le faisceau accordé sur la transition $^4I_{15/2}(0) \rightarrow ^4I_{13/2}(1)$ à 1526 nm destiné à réaliser une inversion de la population entre les niveaux $^4I_{15/2}(0)$ et $^4I_{13/2}(0)$ est appelé faisceau de *repompage*. La figure 4.18.a représente le spectre d'absorption d' $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ sur cette transition. Sa voisine, la figure 4.18.a représente l'absorption et le gain à 1536 nm, lorsque la puissance de repompage vaut 10 mW.

L'effet d'un pompage continu est de modifier la différence de population stationnaire w_0 (voir éq.(4.16)) autour de laquelle le battement se produit. w_0 devient négative lorsqu'on passe en régime de gain. En reprenant la solution générale (4.17), on voit que dans ce cas, les oscillations de population sont à l'origine d'un trou dans le profil de gain (à la place du profil d'absorption) et que la pente de la dispersion due aux oscillations de population est inversée. On peut ainsi observer des vitesses de groupe telles que $v_g > c$ ou $v_g < 0$ [5].

Le schéma expérimental est le même que celui des expériences de ralentissement (figure 4.11) pour la partie concernant les faisceaux pompe et sonde et leur génération par modulation dans un cristal acousto-optique. Le faisceau de repompage est issu d'une source laser fibrée accordable *Tunics*, délivrant jusqu'à 10 mW à 1526 nm. Les figures 4.18 représentent le spectre d'absorption à 1526 nm et le spectre du gain à 1536 nm obtenu pour une puissance de pompe de 10 mW. Dans ces expériences, le cristal d' $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ est maintenu à 2 K.

La figure 4.19 représente la mesure du retard T_g en fonction de la puissance du laser de repompage à 1527 nm. Lorsque la puissance atteint une valeur seuil permettant de réaliser une inversion de population ($P_{\text{repomp}} > 3$ mW), un retard négatif est mesuré signifiant une avance de la modulation. Cette avance est limitée ici par les conditions expérimentales, notamment la puissance de repompage. L'avance la plus grande mesurée ici est de -0.20 ms, correspondant à une vitesse de groupe de $v_g = -15$ m/s dans le cristal de 3 mm de longueur. Le fait d'avoir une vitesse de groupe négative alors que la vitesse de phase est positive peut sembler très étrange. Comme l'ont observé Gerhing *et al.* [79], le maximum de l'impulsion semble sortir du matériaux alors qu'il n'y est pas encore rentré, c'est pourquoi on parle de *lumière accélérée*.

Notons qu'autour de $P_{\text{repomp}} = 3$ mW, le retard mesuré passe par 0. Une bande de retard de 1 ps de large autour de ce retard nul correspond au régime de propagation $v_g > c$. Notre précision expérimentale de l'ordre de la μs est bien en deçà de la précision requise pour observer cette propagation dans notre cristal de 3 mm de long.

Cette étude montre que l'ajout d'un faisceau de repompage est un paramètre extérieur d'optimisation intéressant, notamment lorsqu'on souhaite contrôler le temps d'arrivée et

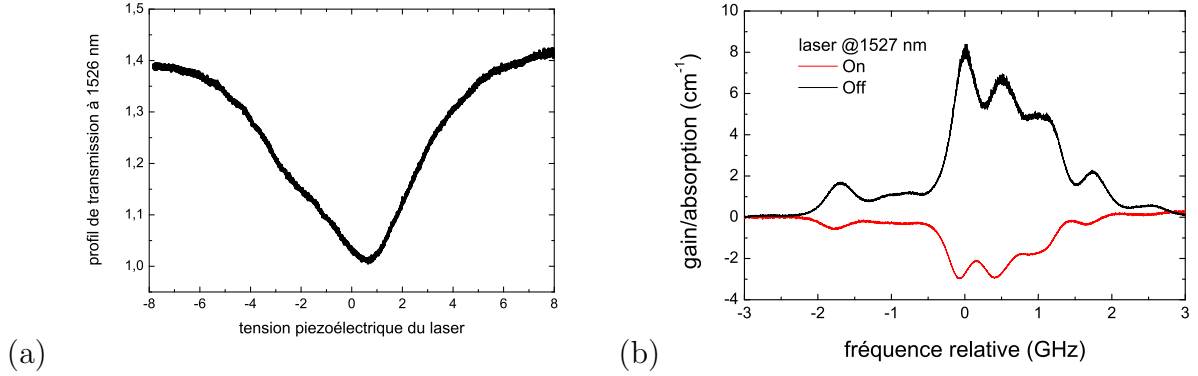


FIG. 4.18 – (a) Profil spectral de transmission à 1526 nm (transition pour le pompage optique) (b) spectre de gain à 1536 nm, obtenu pour une puissance de sonde $40\mu\text{W}$ et une puissance du repompage 10 mW.

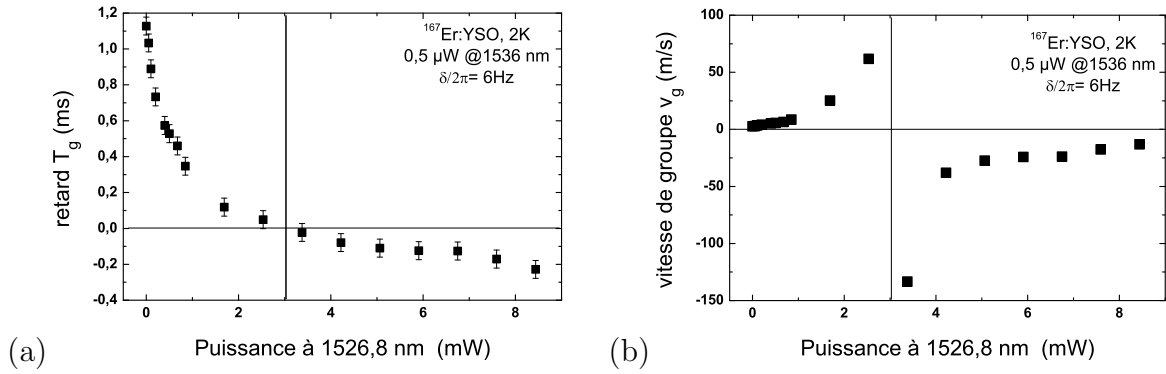


FIG. 4.19 – (a) Retard T_g et (b) vitesse de groupe v_g en fonction de la puissance du laser de repompage à 1527 nm pour une modulation à 6 Hz, une puissance du laser à 1536.1 nm de $0,5\ \mu\text{W}$.

l'intensité de la sonde, à fréquence de battement et intensité de pompe fixées. Voyons maintenant comment l'élargissement inhomogène constitue lui aussi un moyen de jouer sur le ralentissement et la transmission de la sonde.

4.3.3 Élargissement inhomogène comme paramètre du matériaux

Cette partie est dédiée à l'utilisation originale que nous avons faite de la largeur inhomogène; la considérant comme un nouveau paramètre lié au matériau. En changeant la fréquence du laser ω à l'intérieur de cet élargissement inhomogène, différentes classes d'ions sont excitées. Pour chaque classe d'ions l'efficacité des oscillations de population dépend

de la densité d'ions excités, c'est-à-dire de l'absorption $\alpha_0(\omega)$. Cela permet d'ajuster le retard en même temps que la transmission de la sonde.

Pour accorder la fréquence du laser dans le profil d'absorption, une rampe en tension constituée de paliers de plusieurs secondes pilote la tension envoyée sur la cale piezo électrique du laser. L'acquisition et le moyennage des voies signal et référence, DC et AC-démodulée est automatisée dans un programme *Labview*TM, le temps d'acquisition d'un spectre étant de plus d'une heure.

Les figures 4.20 sont les mesures expérimentales du retard T_g en fonction de la fréquence laser pour le cristal enrichi à l'isotope 167 et le cristal dopé à l'erbium naturel. Ces mesures sont faites pour l'intensité optimale I_{opt} donnant le plus grand retard T_g pour chaque cristal, la fréquence de modulation $\delta/2\pi$ étant constante. Les expériences ont été faites pour plusieurs $\delta/2\pi$. Le profil de T_g obtenu reproduit le profil de l'absorption comme attendu, et permet de discerner le retard maximum accessible dans chaque cristal.

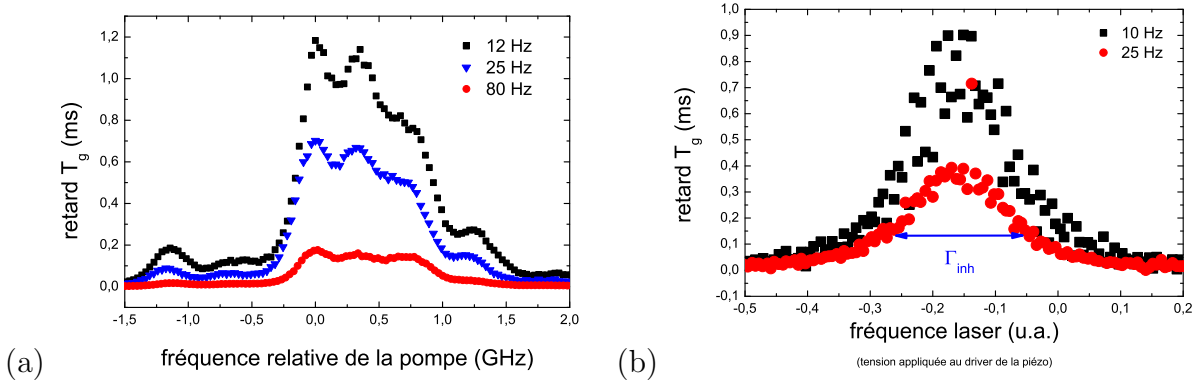


FIG. 4.20 – Retard T_g mesuré en fonction de la fréquence de la pompe dans le profil d'absorption des ions erbium pour différentes fréquences de modulation $\delta/2\pi$ pour un dopage à 50 ppm avec l'isotope 167 (a) et l'erbium naturel (b) à 2 K.

Le tracé du retard T_g en fonction de l'absorption de la pompe $\alpha_P(\omega)$ sur la figure 4.21 met en valeur la dépendance entre ces deux quantités. Plus l'absorption est importante plus le retard mesuré l'est aussi. Alors que la dépendance est explicitement linéaire dans la théorie, elle ne l'est pas tout à fait dans les expériences. Les résultats dans le cristal enrichi à l'isotope 167 semblent dévier un peu plus de la linéarité que ceux obtenus avec l'erbium naturel. Cela pourrait venir d'une variation des paramètres autres que l'absorption lorsque la fréquence de la pompe décrit le profil d'absorption. En effet le profil d'absorption de $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ correspond aux différentes transitions entre niveaux hyperfins de l'excité et du fondamental : la probabilité de transition ainsi que la durée de vie des niveaux mis en jeu lors des oscillations cohérentes de population varie donc selon la pulsation ω du laser dans le spectre.

Le bénéfice de l'élargissement inhomogène est mis en exergue sur la figure 4.22. Elle représente le tracé de la vitesse de groupe v_g pour $\delta/2\pi = 12$ Hz, ainsi que les trans-

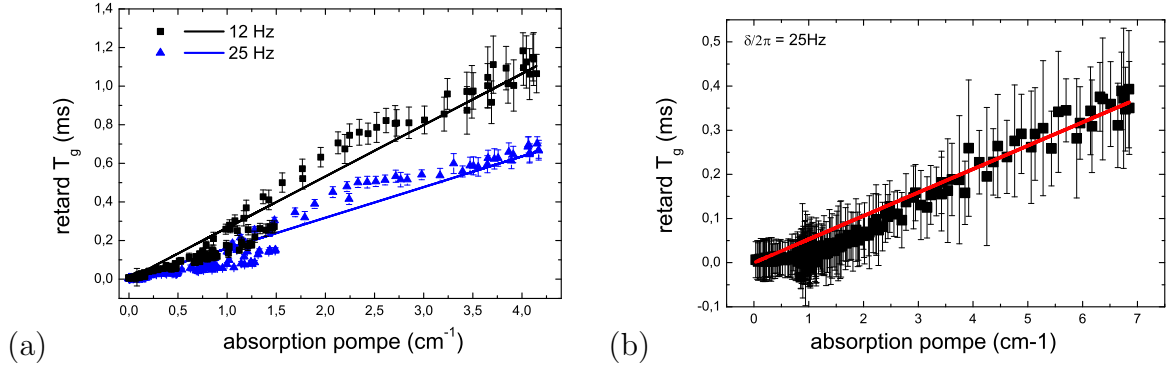


FIG. 4.21 – Retard de la sonde $T_g(\delta) = 10$ Hz en fonction de l'absorption de la pompe pour une puissance optimale pour différentes fréquences de modulation $\delta/2\pi$ et pour un dopage à 50 ppm avec l'isotope 167 (a) et l'erbium naturel (b). Les droites sont des ajustements linéaires.

mission pompe et sonde en fonction de la fréquence laser dans le profil d'absorption d' $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$. La transmission de la sonde est meilleure que celle de la pompe du fait des oscillations de population. Comme souligné par les deux bulles, il est possible de varier la vitesse de groupe de 3 m/s à 100 m/s, la transmission variant respectivement de 40% à 96 % en changeant simplement la position de la pompe dans le profil d'absorption inhomogène.

4.3.4 Propagation et ralentissement d'impulsions

Les résultats présentés dans le paragraphe précédent ont tous été obtenus suivant la méthode de modulation sinusoïdale décrite en 4.3.1. La mesure de $T_g(\delta)$ correspond au temps de groupe que verrait une impulsion de largeur 2δ autour de la fréquence de la pompe. On en a déduit la vitesse de groupe qu'aurait une telle impulsion. Reste que dans ces expériences aucune impulsion ne s'est propagée effectivement. Cette partie est une vérification que les propriétés démontrées en modulation sinusoïdale sont bien conservées lorsqu'on utilise des impulsions.

Le fait que la vitesse de groupe correspond bien à la vitesse de propagation de l'enveloppe d'une impulsion gaussienne alors que celle-ci est en résonance avec une transition a été prévu par Garrett et MacCumber en 1970 [111] et vérifié dans un cristal de GaP :N par Chu et Wong en 1982 [112]. La condition essentielle pour que cela soit vérifié est que la largeur spectrale des impulsions soit inférieure à la largeur de la résonance. L'utilisation d'impulsions de profil temporel plus abrupt, ou de durée trop courte, qui ont un large spectre en fréquence, induit un phénomène de filtrage. Certaines composantes spectrales voient une forte dispersion et sont ralenties alors que d'autres ne la voient pas. Ceci est illustré dans le cas des oscillations cohérentes de population sur les figures 4.23.b et 4.23.c. Il peut en résulter un éclatement temporel de l'impulsion, entre les composantes spectrales

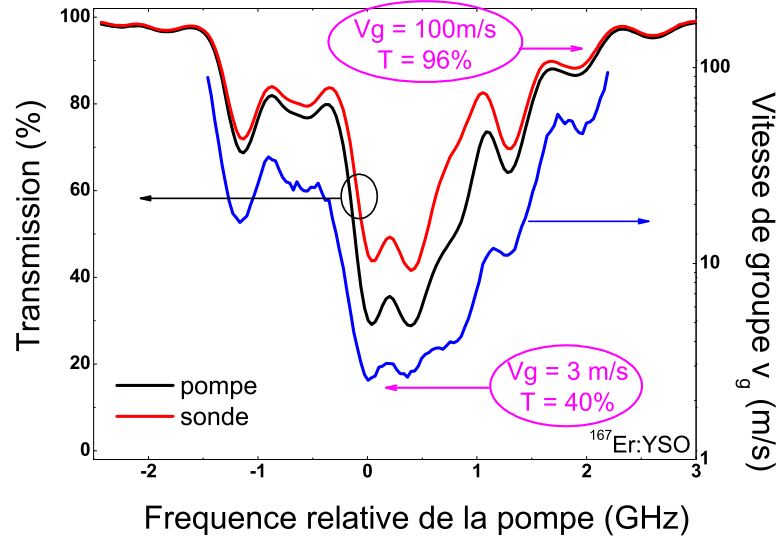


FIG. 4.22 – Vitesse de groupe v_g et transmissions pompe et sonde en fonction de la fréquence laser pour un battement pompe-sonde à $\delta = 12$ Hz.

ralenties accélérées et non ralenties. Dans un tel cas, la notion de vitesse de groupe n'est plus pertinente.

L'idée générale de la propagation d'impulsion dans un milieu où il est possible d'exciter des oscillations de population, est schématisé sur la figure 4.23. Comme on l'a vu une impulsion est composée d'un continuum de fréquences sondes δ autour d'une porteuse optique à ω . Pour chaque composante spectrale, on s'attend à ce que la porteuse joue le rôle de pompe. Ainsi tant que la largeur spectrale des impulsions est plus faible que la largeur du trou dû aux oscillations cohérentes de population l'impulsion est auto-ralentie. La largeur totale à mi-hauteur du trou dû aux oscillations cohérentes de population est de $2\Gamma_{CPO} = 60$ Hz d'après nos mesures précédentes.

On peut également voir cet "auto-ralentissement" comme la propagation à travers un système absorbant saturable, qui va modifier le paquet d'onde. Le retard provient de la variation temporelle de la saturation : l'absorption est forte au début de l'impulsion, et diminue du fait de la saturation lorsqu'on approche du maximum d'intensité de l'impulsion. Le temps de réponse des populations T_1 est celui de la saturation, on aura donc un effet de ralentissement sur le profil d'intensité de l'impulsion lorsque celle-ci sera de durée supérieure à T_1 .

Le dispositif expérimental est le même que celui utilisé lors des expériences de modulation. Au lieu d'appliquer une modulation sinusoïdale au modulateur acousto-optique, une impulsion dont le profil temporel est gaussien est utilisée. Le retard T_g^{exp} est calculé à partir des ajustements gaussiens de l'intensité détectée des impulsions *référence* et *signal*

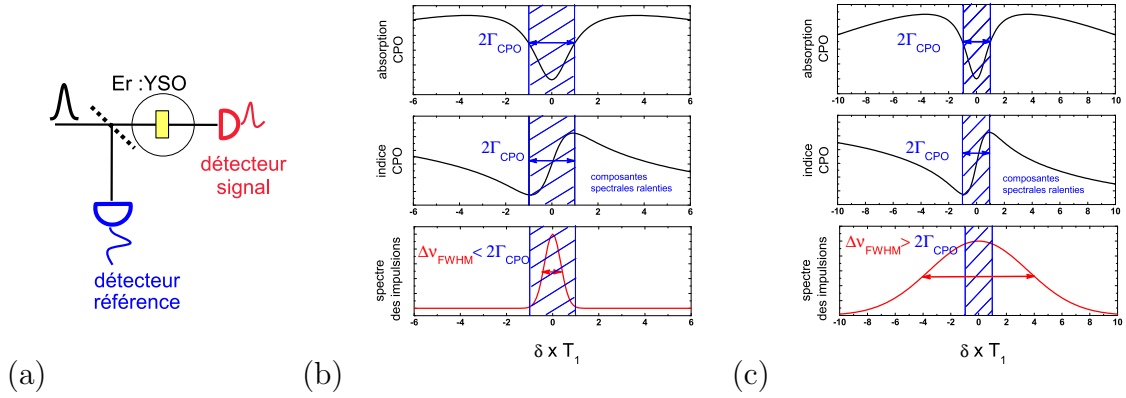


FIG. 4.23 – Principe du ralentissement d’impulsions dans un milieu à oscillations cohérentes de population (a) Schéma expérimental. Vision spectrale pour des impulsions de spectre étroit (b) et de spectre large (c).

selon l’équation

$$y = y_0 + y_1 \exp(-2(t - t_c)^2 / \Delta T^2) \quad (4.34)$$

où ΔT est ce que appellerons la largeur des impulsions¹¹.

$$T_g^{exp} = t_c^{signal} - t_c^{ref} \quad (4.35)$$

La largeur à mi-hauteur du spectre de ces impulsions est définie comme

$$\Delta\nu_{FWHM} = \sqrt{2 \ln 2} / \pi \Delta T. \quad (4.36)$$

Puissance crête des impulsions

Le laser est accordé sur le maximum de l’absorption. La focalisation est faite sur un waist de $580 \mu\text{m}$. La température du cristal est de 2 K. Nous avons travaillé pour plusieurs durées ΔT d’impulsions : 25 ms, 20 ms, 6.5 ms et 4.7 ms. Pour les durées de 20 ms, et 4 ms, la variation du retard T_g en fonction de la puissance crête est tracée sur les figures 4.24.a et 4.25.a. Tous les résultats, y compris en régime de pompage, pour les impulsions de 20 ms sont regroupés sur la figure 4.24.

Comme pour les expériences de modulation sinusoïdale, il existe une puissance crête optimale P_{opt} pour laquelle le nombre de systèmes excités et non saturés est maximum. Cette intensité optimise l’amplitude de la saturation du système et le façonnage de l’impulsion par le système absorbant. Comme pour les expériences de modulation sinusoïdale, la saturation avec la puissance des impulsions est typique d’un élargissement inhomogène (ligne continue sur les figures).

Lorsque les impulsions sont de durée 20 ms, supérieure à T_1 (figure 4.24), un retard de 1.1 ms est mesuré. Ce retard est le même que le retard maximum que nous avons

¹¹ ΔT n’est pas l’usuelle largeur à mi-hauteur en intensité $\Delta T_{FWHM} = \sqrt{2 \ln 2} \Delta T = 1.18 \Delta T$.

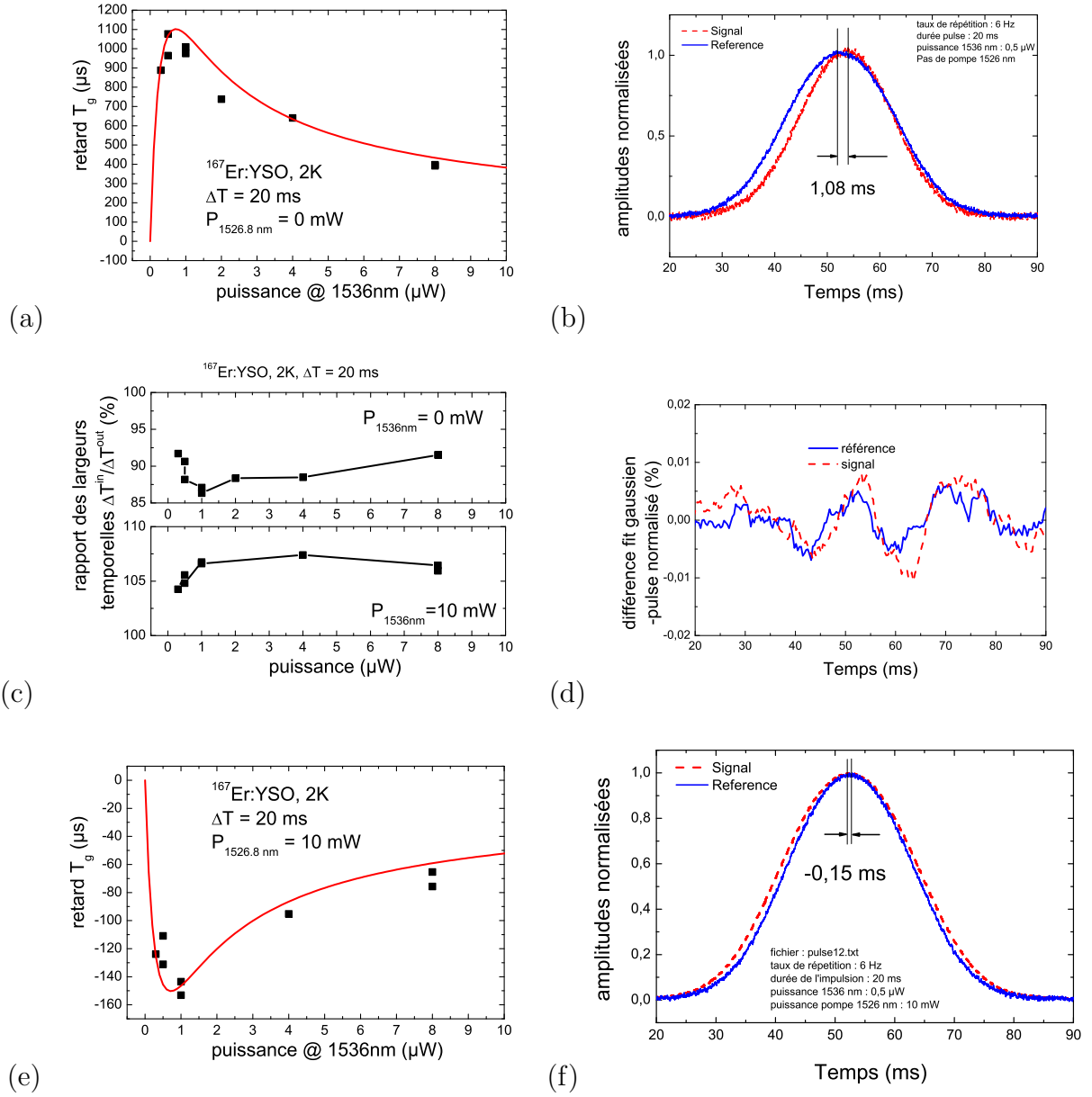


FIG. 4.24 – Propagation d'impulsions gaussiennes de durée $\Delta T = 4$ ms dans $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$. (a) (e) Variation du retard T_g mesuré en fonction de la puissance crête des impulsions, ligne continue : ajustement selon l'équation du tableau 4.1 pour un profil inhomogène, (e) en régime de gain. (b) (f) Profil des impulsions en entrée et en sortie du cristal, (f) en régime de gain, (c) Rapport des largeurs temporelles des impulsions *signal* et *références* en fonction de la puissance du laser pompe-sonde à 1536 nm avec et sans gain. (d) Tracé de la différence entre une impulsion gaussienne de durée 20 ms et l'impulsion détectée pour les impulsions référence et signal, après propagation dans un cristal d' $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$, pour une puissance optimale ~ 0.5 μW.

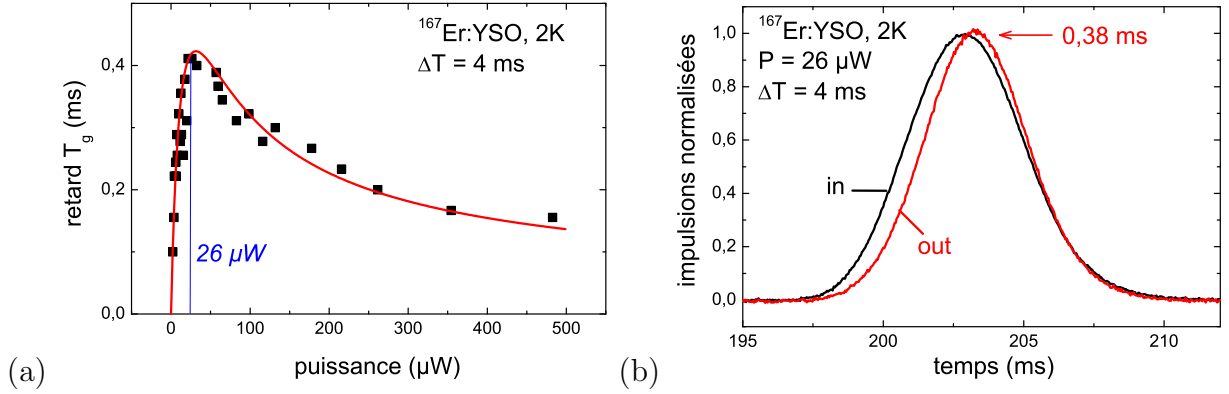


FIG. 4.25 – Propagation d’impulsions gaussiennes de durée $\Delta T = 4 \text{ ms}$ dans $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$. (a) Variation du retard T_g mesuré en fonction de la puissance crête des impulsions, ligne continue : ajustement selon l’équation du tableau 4.1 pour un profil inhomogène. (b) Profil des impulsions en entrée et en sortie du cristal.

mesuré dans les expériences de modulation sinusoïdale pour une fréquence de $\delta = 10 \text{ Hz}$, c’est-à-dire une extension du spectre de $2\delta = 20 \text{ Hz}$. La largeur spectrale de ces impulsions (eq.(4.36)) est de $\Delta\nu_{FWHM} = 18 \text{ Hz}$, nettement inférieure à $2\Gamma_{CPO} (= 60 \text{ Hz})$: ces impulsions voient la pente positive de la dispersion due aux oscillations de population.

A l’inverse pour les impulsions de durée 4 ms, inférieure à T_1 (figures 4.25), le retard mesuré est moins important. Le retard maximal est de 0.37 ms, pour une puissance de $P_{opt}=26 \text{ μW}$. Ces impulsions de largeur $\Delta\nu_{FWHM} = 93 \text{ Hz}$ sont spectralement plus larges que $2\Gamma_{CPO}$: elles voient donc plus que la zone de la pente positive due aux oscillations cohérentes de population. Ce résultat de 0.37 ms est à rapprocher des 0.4 ms de retard obtenues pour une modulation de 40 Hz ($\sim \Delta\nu_{FWHM}/2$) sur la figure 4.14.

Profil temporel

Les figures 4.24.b et 4.25.b. représentent les profils temporels des impulsions *signal* et *référence* de 20 ms et 4 ms respectivement, obtenus pour la puissance optimale. Comme on peut en juger sur ces profils détectés, les impulsions sont très peu déformées par la propagation dans un milieu où elles sont pourtant en résonance, même lorsque la condition sur la largeur spectrale n’est pas tout à fait remplie comme pour les impulsions de 4 ms.

La figure 4.24.c représente la largeur temporelle des impulsions après propagation en fonction de leur puissance en entrée, pour des impulsions d’entrée de durée 20 ms. Comme on peut le voir, cette durée est légèrement raccourcie par la propagation et cette déformation varie avec la puissance des impulsions, de même que le retard accumulé.

Un autre effet des oscillations cohérentes de population sur la propagation des impulsions est d’introduire une légère dissymétrie. La figure 4.24.d est le tracé de la différence entre le profil temporel de l’impulsion signal et son ajustement gaussien, pour les impulsions de durée 20 ms dont le profil est représenté sur la figure 4.24.b. Notons tout d’abord

que les impulsions envoyées sur le cristal ne sont pas parfaitement gaussienne mais qu'elle le sont à mieux que 0.01 %. La dissymétrie de l'impulsion de sortie se traduit par un écart à l'ajustement gaussien plus important pour le front descendant

Si on avait un milieu simplement linéaire présentant une forte dispersion, seul un étalement temporel des impulsions pourrait être observé. Le cristal d' $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ excité en résonance est un système non-linéaire, et les oscillations de population sont un processus non-linéaire du troisième ordre. Ces non-linéarités sont à l'origine de la dissymétrie et la réduction de la durée des impulsions [85].

Gain

La procédure est la même que pour les expériences avec une modulation sinusoïdale sous pompage optique. L'étude a été faite avec les impulsions de 20 ms, qui bénéficient de tout l'effet d'oscillations cohérentes de population. Elles sont envoyées dans le cristal avec un taux de répétition de 6 Hz. Comme pour les expériences de modulation, nous sommes limités par la puissance du laser *Tunics* de repompage : on travaille avec la puissance maximale de 10 mW qui permet de maximiser l'effet (figure 4.19).

La figure 4.24.e représente le retard T_g mesuré avec faisceau de repompage à 1526 nm, en fonction de la puissance du laser pompe-sonde à 1536 nm. La saturation avec la puissance semble bien décrite par le modèle de l'élargissement inhomogène (tableau 4.1), adapté en utilisant simplement une absorption négative ici pour rendre compte de l'inversion de population. Le maximum d'avancement obtenu est de $T_g = -0.15$ ms, correspondant à $v_g = -20$ m/s, pour une puissance crête de $0.5 \mu\text{W}$. Ce résultat, inférieur à l'avancement de -0.20 ms mesurées pour la modulation sinusoïdale, vraisemblablement à cause d'une variation de la puissance du laser de repompage, confirme néanmoins la validité des expériences en modulation.

Profil temporel

La figure 4.24.f représente les profils temporels des impulsions *signal* et *références* de 20 ms dans les conditions "optimales". Comme pour l'étude sans pompage, le profil temporel est peu déformé lors de la propagation à $v_g = -20$ m/s. Un élargissement temporel est visible sur les profils. Cet élargissement évolue avec la puissance crête des impulsions, comme on peut le voir sur la figure 4.24.c. Nous n'avons pas vu de dissymétrie notable du profil temporel dans ce régime de gain, sans doute parce que nous sommes loin de l'avancement maximal accessible, faute de puissance de pompe..

En régime de gain, les impulsions sont bien évidemment amplifiées et cela peut constituer un avantage pour les applications. Il faut cependant s'attendre à une saturation due à la puissance crête des impulsions qui augmente du fait de l'amplification.

Retard fractionnaire

En étudiant la propagation ralentie d'impulsions dans un milieu dispersif en vue d'une application comme des mémoires tampons ou le recentrage d'impulsions dans une fenêtre temporelle, un facteur mérite intéressant proposé par R. Boyd *et al.* est le rapport du retard sur la durée de impulsions, ou le produit retard par bande passante [113]. Ce facteur de mérite, appelé également le retard fractionnaire défini comme le rapport du retard T_g sur la largeur à mi-hauteur en intensité des impulsions $\Delta T_{FWHM} = \sqrt{2 \ln 2} \Delta T$

$$\tau_g = T_g / \sqrt{2 \ln 2} \Delta T. \quad (4.37)$$

Pour un retard fractionnaire τ_g supérieur à 100%, l'impulsion est alors retardée de plus que sa durée.

Peu d'expériences de ralentissement peuvent se prévaloir d'un retard fractionnaire supérieur à 100%. Les premiers résultats de lumière ultra-lente [9] utilisant la transparence induite électromagnétiquement ont permis d'obtenir $\tau_g = 280\%$ et les expériences de creusement spectral dans une vapeur de Rb $\tau_g = 780\%$, ce résultat étant accompagné d'un fort élargissement des impulsions [95].

Un retard fractionnaire de 100% et plus n'est théoriquement pas possible avec les oscillations cohérentes de population [113]. Expérimentalement, même si nous avons mesuré des vitesses de groupes v_g très faibles, elles ne correspondent pas forcément à un retard important par rapport à la durée des impulsions. Lorsqu'on regarde les profils détectés des impulsions de 20 ms figure 4.24.b et 4.24.f, on voit à peine le décalage temporel qu'induisent les oscillations de population.

Le tableau 4.2 reprend les résultats obtenus pour différentes durée d'impulsions. Pour les expériences que nous avons faites, nous n'avons pas dépassé $\tau_g = 8\%$. Ce retard fractionnaire de 8% a été obtenu avec les impulsions de 4.7 ms, qui ont pourtant une largeur spectrale légèrement supérieure à $2\Gamma_{CPO}$. Elles ne bénéficient pas du plus grand retard, mais rapporté à leur bande spectrale l'effet d'oscillations cohérentes de population est plus important.

ΔT^{in}	ΔT^{out}	T_g	τ_g	P_{opt}	I_{opt}
ms	ms	ms	%	μW	mW/cm ²
25	23.2	1.1	3.7	10	1.9
20	17.8	1.1	4.7	0.5	*
6.5	5.9	0.56	7.3	22	4.1
4	3.8	0.37	8	26	4.9
20	22	0.15	0.6	0.5	*
(+gain)					

TAB. 4.2 – Résultats de propagation des impulsions. (* waist non mesuré!)

Elargissement inhomogène

Nous avons également vérifié la possibilité d'ajuster le retard T_g des impulsions de 25 ms, en accordant la longueur d'onde du laser dans le profil d'absorption d' $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$. Le résultat est tracé sur la figure 4.26.a. Pour chaque point expérimental, la tension continue appliquée à la calle piézo électrique du laser *Koheras* est changée. Du fait de l'hystérésis de la commande, il n'est pas possible de superposer exactement une échelle en fréquence relative de la pompe, l'abscisse des figures 4.26 est en tension.

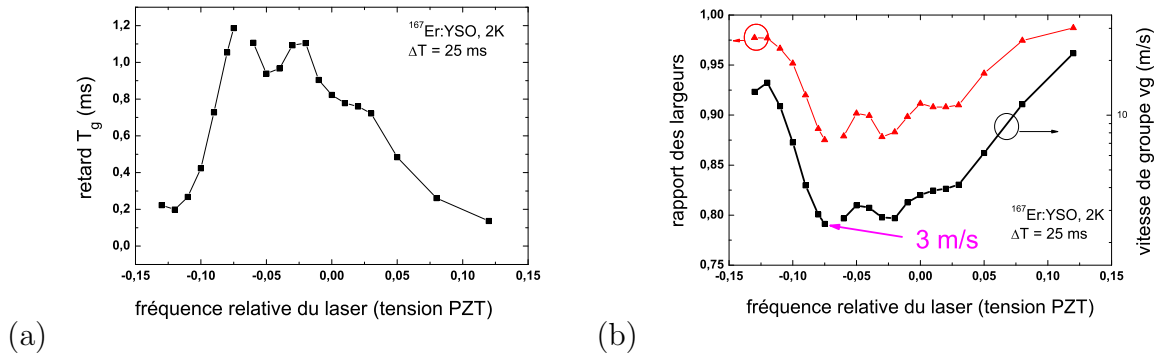


FIG. 4.26 – (a) Retard T_g accumulé par des impulsions de 25 ms lors de leur propagation dans $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ et (b) vitesse de groupe et transmission des impulsions en fonction de la fréquence laser dans l'élargissement inhomogène (unité arbitraire), pour une puissance optimale de $10 \mu\text{W}$.

La figure 4.26.b représente la vitesse de groupe v_g correspondante obtenue. Elle met en valeur la grande plage d'accordabilité du régime de propagation lente et de la transmission pour les impulsions de 25 ms, comme les résultats obtenus pour une modulation de $\delta = 12$ Hz (figure 4.22).

Conclusion sur la propagation d'impulsions

Ces expériences avec des impulsions démontrent la validité des différentes expériences réalisées avec une modulation sinusoïdale. En respectant la condition sur la bande passante des impulsions, nous avons observé des résultats comparables sur les vitesse de groupe $v_g = 2.7$ m/s et $v_g = 20$ m/s en régime de pompage. Les comportements en fonction de la saturation de la pompe sont identiques. L'intensité crête optimale très faible de l'ordre de $2 \text{ mW}/\text{cm}^2$ est également reproduite (voir le tableau 4.2, pour des impulsions de 25 ms). La possibilité de jouer sur l'élargissement inhomogène pour moduler le retard est également conservée. Comme on s'y attendait toutes les propriétés démontrées lors des expériences de modulation sont retrouvées en passant aux impulsions. Nous avons même pu vérifier que le profil temporel des impulsions reste gaussien au premier ordre.

Les expériences impulsionnelles étant plus fastidieuses, les démonstrations de principe en modulation semblent plus intéressantes.

Cependant, les expériences impulsionnelles, ont montré que la largeur temporelle des impulsions est modifiée : réduite, en cas d'absorption, ou augmentée, en cas de gain. Ce phénomène est invisible sur les expériences de modulation, de même que l'apparition d'une légère dissymétrie dans le profil temporel. Ces deux points traduisent la non-linéarité du phénomène d'oscillations cohérentes de population et n'ont pour le moment fait l'objet d'aucune modélisation précise.

Ces expériences mettent en outre en lumière la faible bande passante des oscillations cohérentes de population dans l'erbium. Elle ne peut être augmentée qu'en changeant la durée de vie des populations T_1 . C'est possible en utilisant un effet de cavité (effet Purcell) ou plus simplement en changeant de système atomique.

Une autre solution pour augmenter cette bande passante serait de copier le fonctionnement des amplificateurs femtosecondes. L'idée est d'étaler spatialement le spectre des impulsions, de sorte que localement le spectre vu par un groupe d'ion est assez fin pour pouvoir bénéficier des oscillations de population. Un élargissement inhomogène très large par rapport au spectre des impulsions d'origine pourrait être utilisé pour ralentir les différentes composantes spectrales de la même façon. Il faut ensuite refaçonner l'impulsion et mettre en phase toutes les composantes spectrales qui ont été retardées d'un temps $T_g(\omega, x)$. La réalisation expérimentale dans le cas de l'erbium n'est pas évidente, notamment pour trouver un système ayant une dispersion suffisante sur une échelle de quelques Hz. Là encore la transposition à des systèmes atomiques de plus courte durée de vie est nécessaire.

4.4 Conclusions et perspectives sur le ralentissement de la lumière

Bilan des résultats

A notre connaissance ce travail est la première démonstration expérimentale des propriétés de ralentissement des oscillations de population avec un élargissement inhomogène. Cet élargissement n'empêche pas le ralentissement et permet au contraire de bénéficier d'un effet de saturation moins rapide avec la puissance de pompe.

Les résultats ont été obtenus à la fois par une mesure du temps de groupe faite avec deux sondes décalées de $\pm\delta$, obtenues par modulation d'amplitude du faisceau laser, et par l'étude de la propagation d'impulsions gaussiennes, de durée adéquate. Ces dernières sont simplement auto-ralenties ou auto-avancées, avec le même facteur que la modulation sinusoïdale de fréquence correspondant à leur largeur spectrale.

Nous avons démontré expérimentalement des vitesses de groupe de 2.7 ± 0.2 m/s dans Y_2SiO_5 dopé exclusivement avec l'isotope 167 de l'erbium et 1.25 ± 0.08 m/s dans le même cristal dopé à l'erbium naturel. Ces deux résultats se situent clairement dans le régime de propagation ultra-lente avec un indice de groupe supérieur à $n_g = 10^8$. Par ailleurs les intensités nécessaires sont plusieurs ordres de grandeurs en deçà des intensités

utilisées pour le ralentissement de la lumière dans d'autres systèmes avec les oscillations cohérentes de population [6, 5, 19].

L'étude du retard et de la transmission de la sonde en fonction de la fréquence du battement pompe-sonde corrobore le résultat sur le temps de vie de l'état excité de 10 ms. Nous avons pu également vérifier qu'il n'est pas nécessaire de travailler à basse température pour observer le ralentissement : la largeur du trou est bien limitée par la largeur naturelle à 2 K comme à 4 K, et est donc insensible aux processus déphasants qui modifient la largeur homogène. En revanche l'intensité I_{opt} pour laquelle l'effet est maximal, dépend du temps de déphasage T_2 et donc de la température. Par ailleurs, un faisceau de repompage a été utilisé pour modifier l'équilibre des populations et réaliser une inversion de population. Des vitesses de groupe négatives de **-15 m/s**, en modulation sinusoïdale, et **-20 m/s**, en régime impulsionnel, ont été mesurées. Elles correspondent à un régime de lumière *accélérée*, dans lequel le paquet d'onde semble sortir du cristal avant d'y être entrée. Le passage entre la lumière ralentie et la lumière accélérée se fait en changeant la puissance du faisceau de repompage réalisant l'inversion de population.

Nous avons enfin exploité de manière originale la largeur inhomogène pour démontrer la dépendance du ralentissement de la lumière par d'effet d'oscillations cohérentes de population, en fonction de l'absorption, comme stipulé par la théorie décrite au paragraphe 4.2. Pour cela, la fréquence du champ pompe a été balayée sur tout le **profil d'absorption inhomogène**, passant d'un régime de fort ralentissement et transmission moyenne 3 m/s et 40 % à un régime de transmission forte et de ralentissement moins important 100 m/s et 96 % [110].

Perspectives

Un des avantages des oscillations cohérentes de population par rapport à la transparence induite utilisée elle aussi pour obtenir des régimes de propagation ultra-lents est qu'elles ont lieu dans un système à deux niveaux d'énergie¹². Par ailleurs, les impulsions de durée et d'intensité adéquate sont "auto-ralenties", sans qu'il soit nécessaire d'appliquer un autre faisceau. Enfin, ce phénomène dépend de la durée de vie des populations et non des cohérences et est de ce fait insensible aux processus brouillant la phase du dipôle. Il est ainsi possible de l'observer à température ambiante, en augmentant l'intensité injectée.

Nous avons ainsi fait quelques **expériences à température ambiante dans des fibres optiques dopés aux ions erbium**. Une étude des propriétés des oscillations de population dans des fibres monomodes du type de celles utilisées dans les amplificateurs a été publiée à peu près au même moment [114, 115]. Dans cette dernière publication [115], le repompage à 980 nm permet d'ajuster le retard fractionnaire τ_g de -12.4% (lumière accélérée) à +8.9%, correspondant à des vitesses de groupe v_g variant de -40000 m/s à 35210 m/s pour des impulsions de durée 1.8 ms et 3.2 ms. En théorie le retard est proportionnel au gain, mais Schweisberg *et al.* ont noté une saturation du retard fractionnaire avec

¹²C'est clairement un avantage dans $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$, car il est plus facile de trouver un système à deux niveaux qu'un système à 3 niveaux.

la puissance de repompage ; la déplétion du faisceau de repompage à 980 nm est invoquée pour comprendre cette limitation.

Nos travaux sur les fibres ont commencé sur une fibre en silice standard dont le coeur est dopé à 0,04% avec des ions erbium. Nous avons pu vérifier la bande passante de $2\Gamma_{CPO} = 60$ Hz et avons mesuré une vitesse de groupe minimale de **1200 m/s**. Nos voisins et collègues d'Alcatel, nous ont alors proposé une *fibre à double coeur* destinée aux amplificateurs forte puissance. Cette fibre, protégée par un brevet [116], présente un profil d'indice schématisé sur la figure 4.27.a. Le guidage dans le petit coeur est monomode pour le signal à 1.5 μm et le guidage dans le grand coeur est multimode pour la pompe à 980 nm. La particularité de cette fibre est son dopage aux ions erbium suivant une topologie en anneau et non dans le (petit) coeur comme les fibres usuelles. Cela permet un meilleur transfert d'énergie de la pompe vers les ions tout au long de la propagation. Il est ainsi possible d'augmenter le pompage, le gain et la puissance de sortie à 1.5 μm . Pour les oscillations de population, il serait ainsi possible d'obtenir une plus grande plage d'accordabilité dans le retard/avancement fractionnaire.

Les résultats obtenus en modulation sinusoïdale et sans repompage optique à 980 nm sont encourageants. Avant de les détailler, précisons simplement que le dispositif expérimental est dans son principe le même que pour les expériences dans le cristal. La modulation d'amplitude se fait dans l'espace libre et le faisceau est ensuite couplée dans la fibre à l'aide d'un objectif de microscope. Un "taper" est soudé à la fibre pour faciliter le couplage dans le guide monomode à 1.5 μm . Le faisceau de référence est prélevé avant couplage dans la fibre. La puissance est mesurée avant l'objectif de microscope.

La figure 4.27.b. représente le retard T_g mesuré en fonction de la puissance incidente et la figure 4.27.b, le retard T_g en fonction de la fréquence de modulation $\delta/2\pi$. On retrouve le comportement de saturation typique des oscillations de population et une demi-largeur du trou Γ_{CPO} de 30 Hz, confirmant bien qu'il s'agit d'une interaction avec les ions erbium, dont la durée de vie dans les fibres est de 10 ms. Une vitesse de groupe de **1300 m/s** a été obtenue, comparable au résultat obtenu dans la fibre standard, les deux fibres présentant à peu près la même absorption à 1.5 μm . Bien que le mode guidé ne voie que partiellement les ions erbium, c'est bien la constante de propagation du mode qui est affectée par la dispersion due aux oscillations de population des ions erbium et tout le mode à 1.5 μm qui est ralenti. Cette vérification importante valide le principe de l'utilisation de cette fibre double coeur pour le ralentissement/accélération sous pompage optique.

Nous n'avons pas continué les expériences notamment en régime de gain, préférant nous consacrer à la mise en place de la transparence induite électromagnétiquement dans $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ qui est détaillée dans le chapitre 5.

Précisons qu'à la différence de la transparence induite électromagnétiquement, il n'y a pas à notre connaissance d'étude théorique ou expérimentale sur l'utilisation du régime de propagation ultra-lente obtenu avec les oscillations cohérentes de population. Les résultats sont tournés vers les applications en traitement optique de l'information du type retard ajustable ou recentrage d'impulsions dans une fenêtre temporelle pour lesquelles un re-

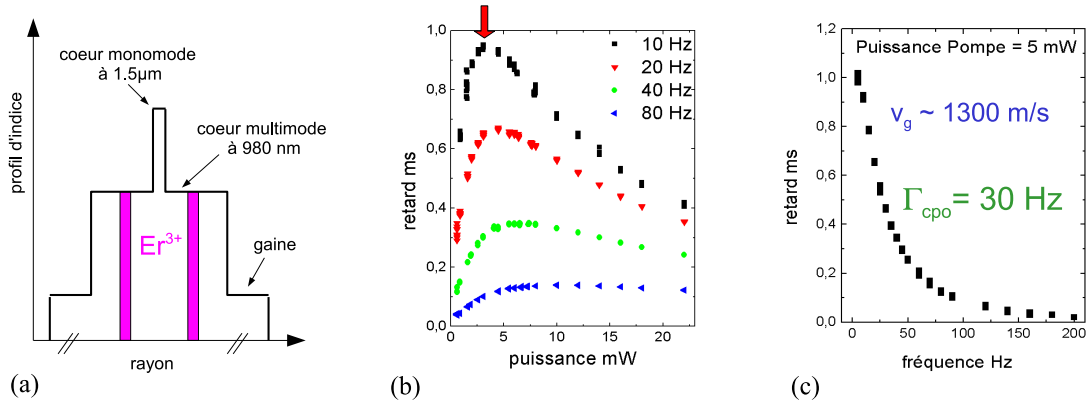


FIG. 4.27 – Résultats de ralentissement dans une fibre dopée aux ions erbium selon une topologie en anneau [116]. (a) Schéma du profil d'indice et du dopage. (b) Retard de groupe en fonction de la puissance injectée pour différentes fréquences de modulation $\delta/2\pi$. (c) Retard de groupe en fonction de la fréquence de modulation pour la puissance optimale, montrant une largeur Γ_{CPO} de 30 Hz.

tard fractionnaire supérieur à 100% n'est pas nécessaire. Dans ce cadre la bande passante réduite à la largeur naturelle peut être une limitation importante pour $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$. L'utilisation d'autres systèmes atomiques de durée de vie plus courte est nécessaire. Les semi-conducteurs, puits et boîtes quantiques, apportent dans cette optique des possibilités d'intégration intéressantes [100].

Chapitre 5

Transparence Induite à $1.5 \mu m$

La première démonstration expérimentale de la transparence induite (EIT) a été faite dans une vapeur de strontium en 1991 [117]. Depuis, les démonstrations se sont succédées dans de nombreux systèmes : vapeurs atomiques [118, 119], atomes froids [9], mais aussi dans la matière condensée [22, 26, 120]. La première démonstration dans des cristaux dopés aux ions de terres rares a été réalisée dans un cristal d' Y_2SiO_5 dopé aux ions praséodyme [22]. A $1.5 \mu m$, la transparence induite a été obtenue dans une vapeur d'acétylène confinée dans une fibre à cristaux photoniques [121, 122]. Les résultats présentés dans ce chapitre constituent à notre connaissance la première démonstration de la transparence induite électromagnétiquement avec les ions erbium, à 1536 nm, dans la matière condensée.

Le chapitre est organisé en 4 parties. La première partie donne une présentation théorique succincte de la transparence induite, qui permet de dégager les caractéristiques utiles pour les expériences. La seconde partie reprend quelques expériences préliminaires qui nous ont poussé à faire un dispositif expérimental particulier. La troisième partie développe ce dispositif et les résultats obtenus. Enfin la dernière partie propose quelques modélisations et simulations destinées à confirmer les observations expérimentales et à dégager des points d'optimisation.

5.1 Systèmes en Λ et transparence induite

Avant de présenter les résultats expérimentaux, l'étude théorique d'un système à trois niveaux excités par deux champs optiques quasi-résonants est présentée dans cette partie. Les notions de transparence induite électromagnétiquement et d'état noir vont y être détaillées, les effets de pompage sur les populations étant négligés.

5.1.1 Système à trois niveaux

Pour traiter le cas de l'interaction de deux champs avec un système à 3 niveaux, nous resterons dans une approche semi-classique. Un tel système est représenté sur la figure 5.1. L'hamiltonien du système au repos est

$$H_0 = -\hbar\omega_{13}|1\rangle\langle 1| - \hbar\omega_{23}|2\rangle\langle 2|, \quad (5.1)$$

avec l'état excité $|3\rangle$ comme niveau zéro d'énergie. Le système à trois niveaux est décrit par sa matrice densité ρ dans le référentiel au repos, et par la matrice σ dans le référentiel tournant à la fréquence de l'excitation optique.

Les deux champs électromagnétiques excitateurs E_1 et E_2 sont quasi-résonants avec les transitions $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ et $|2\rangle \rightarrow |3\rangle$ respectivement. E_1 , de fréquence ω_1 est le champ sonde, E_2 de fréquence ω_2 le champ pompe également appelé champ de couplage ou de contrôle. L'hamiltonien d'interaction du système atomique avec ces champs s'écrit

$$H_{int} = \frac{\hbar\Omega_1}{2}e^{-i\omega_1 t}|3\rangle\langle 1| + \frac{\hbar\Omega_2}{2}e^{-i\omega_2 t}|3\rangle\langle 2| + h.c., \quad (5.2)$$

avec $\Omega_1 = \frac{\mu_{13}\mathcal{E}_1}{\hbar}$ et $\Omega_2 = \frac{\mu_{23}\mathcal{E}_2}{\hbar}$ les pulsations de Rabi des deux champs.

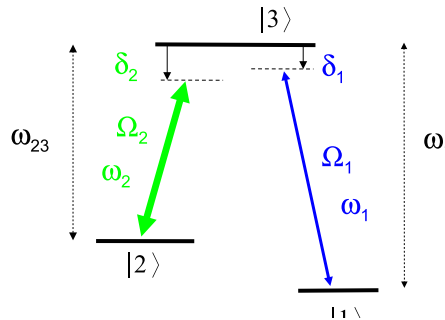


FIG. 5.1 – Système à trois niveaux sous excitation de deux champs optiques quasi-résonants Ω_1 et Ω_2 .

Le passage dans le référentiel tournant [123] permet de faire disparaître les termes dépendants du temps dûs à l'excitation optique. Le changement de variable est le suivant :

$$\begin{aligned}\sigma_{ii} &= \rho_{ii} \\ \sigma_{13} &= \rho_{13}e^{-i\omega_1 t} \\ \sigma_{23} &= \rho_{23}e^{-i\omega_2 t} \\ \sigma_{12} &= \rho_{12}e^{-i(\omega_1 - \omega_2)t}\end{aligned}\tag{5.3}$$

L'évolution temporelle de la matrice densité est donnée par l'équation :

$$\frac{d\sigma}{dt} = \frac{1}{i\hbar} [H, \sigma] + \left(\frac{d\sigma}{dt} \right)_{relax},\tag{5.4}$$

avec l'hamiltonien H qui vaut (dans le référentiel tournant)

$$H = -\frac{\hbar}{2} \begin{bmatrix} 0 & 0 & \Omega_1 \\ 0 & -2(\delta_1 - \delta_2) & \Omega_2 \\ \Omega_1 & \Omega_2 & 2\delta_1 \end{bmatrix}.\tag{5.5}$$

Les désaccords à la résonance sont $\delta_1 = \omega_1 - \omega_{13}$ pour le champ sonde E_1 et $\delta_2 = \omega_2 - \omega_{23}$ pour le champ couplage E_2 . Les pulsations de Rabi sont réelles toutes les deux. Les deux champs considérés sont cohérents entre eux, c'est-à-dire qu'il existe une relation de phase bien définie entre eux.

Le système d'équation pour les composantes σ_{ij} de la matrice densité dans le référentiel tournant est :

$$\begin{aligned}\dot{\sigma}_{33} &= \Omega_1 Im(\sigma_{13}) & + \Omega_2 Im(\sigma_{23}) & - (\gamma_{31}^{sp} + \gamma_{32}^{sp})\sigma_{33} \\ \dot{\sigma}_{11} &= -\Omega_1 Im(\sigma_{13}) & & + \gamma_{31}^{sp}\sigma_{33} - \gamma_{12}^{sp}\sigma_{11} + \gamma_{21}^{sp}\sigma_{22} \\ \dot{\sigma}_{22} &= & -\Omega_2 Im(\sigma_{23}) & + \gamma_{32}^{sp}\sigma_{33} + \gamma_{12}^{sp}\sigma_{11} - \gamma_{21}^{sp}\sigma_{22} \\ \dot{\sigma}_{13} &= -(\gamma_{13} + i\delta_1)\sigma_{13} & -i\frac{\Omega_1}{2}(\sigma_{33} - \sigma_{11}) & + i\frac{\Omega_2}{2}\sigma_{12} \\ \dot{\sigma}_{23} &= -(\gamma_{23} + i\delta_2)\sigma_{23} & -i\frac{\Omega_2}{2}(\sigma_{33} - \sigma_{22}) & + i\frac{\Omega_1}{2}\sigma_{21} \\ \dot{\sigma}_{12} &= (\gamma_{12} + i(\delta_2 - \delta_1))\sigma_{12} & -i\frac{\Omega_1}{2}\sigma_{32} & + i\frac{\Omega_2}{2}\sigma_{13}\end{aligned}\tag{5.6}$$

avec des populations σ_{ii} réelles et des cohérences σ_{ij} telles que $\sigma_{ji} = \sigma_{ij}^*$. Les cohérences σ_{13} et σ_{23} sont appelées *cohérences optiques* et la cohérence σ_{12} *cohérence Raman ou hyperfine*. Les termes de relaxations présents sont différenciés selon qu'il s'agit des populations γ_{ij}^{sp} ou des cohérences γ_{ij} entre les niveaux $|i\rangle$ et $|j\rangle$.

$\gamma_{12}^{sp}\sigma_{11}$ et $\gamma_{21}^{sp}\sigma_{22}$ sont deux termes de relaxations croisées des populations entre les deux niveaux fondamentaux qui rendent compte du temps de vie du niveau hyperfin $T_1^f = 187$ ms que nous avons mesuré dans le chapitre 3.

Nous nous intéressons au comportement de la cohérence optique induite par le faisceau sonde E_1 et plus particulièrement à son absorption, proportionnelle à $Im(\sigma_{13})/\Omega_1$, en

présence du champ E_2 . En régime stationnaire, on peut déduire des équations (5.6) les expressions des cohérences :

$$\begin{aligned}\mathcal{D}_{13}\sigma_{13} &= -i\frac{\Omega_1}{2}(\sigma_{33} - \sigma_{11}) + i\frac{\Omega_2}{2}\sigma_{12} \\ \mathcal{D}_{23}\sigma_{23} &= -i\frac{\Omega_2}{2}(\sigma_{33} - \sigma_{22}) + i\frac{\Omega_1}{2}\sigma_{21} \\ \mathcal{D}_{12}\sigma_{12} &= -i\frac{\Omega_1}{2}\sigma_{32} + i\frac{\Omega_2}{2}\sigma_{13}\end{aligned}\tag{5.7}$$

avec $\mathcal{D}_{13} = \gamma_{13} + i\delta_1$, $\mathcal{D}_{13} = \gamma_{23} + i\delta_2$ et $\mathcal{D}_{12} = \gamma_{12} + i(\delta_2 - \delta_1)$. Sur les deux premières équations de ce système, deux contributions apparaissent pour les cohérences optiques σ_{13} et σ_{23} . La première est proportionnelle à la différence de population entre état excité et fondamental et est à l'origine du creusement spectral. La seconde est proportionnelle à la cohérence Raman σ_{12} et au champ de couplage Ω_2 . Comme l'indique la dernière équation du système, la cohérence Raman est excitée ici par les deux champs optiques sonde Ω_1 et couplage Ω_2 .

En éliminant la cohérence Raman σ_{12} dans le système (5.7), les cohérences optiques s'expriment en fonction des différences de population :

$$\begin{aligned}\sigma_{13} &= \frac{i\frac{\Omega_1}{2}}{\mathcal{D}_{23}\mathcal{D}_{13}^*\mathcal{D}_{12} + \frac{\Omega_2^2}{4}\mathcal{D}_{13}^* + \frac{\Omega_1^2}{4}\mathcal{D}_{23}} \left[(\mathcal{D}_{12}\mathcal{D}_{23} + \frac{\Omega_1^2}{4})(\sigma_{33} - \sigma_{11}) - \frac{\Omega_2^2}{4}(\sigma_{33} - \sigma_{22}) \right] \\ \sigma_{23} &= \frac{i\frac{\Omega_2}{2}}{\mathcal{D}_{23}\mathcal{D}_{13}^*\mathcal{D}_{12} + \frac{\Omega_2^2}{4}\mathcal{D}_{13}^* + \frac{\Omega_1^2}{4}\mathcal{D}_{23}} \left[\frac{\Omega_1^2}{4}(\sigma_{33} - \sigma_{11}) - (\mathcal{D}_{12}\mathcal{D}_{13}^* + \frac{\Omega_2^2}{4})(\sigma_{33} - \sigma_{22}) \right]\end{aligned}\tag{5.8}$$

L'expression de l'absorption de la sonde proportionnelle à $Im(\sigma_{13})/\Omega_1$ peut être déduite de ces équations. Voyons maintenant comment apparaît la transparence induite dans un tel système.

5.1.2 Transparence induite

L'intensité du faisceau sonde est considérée comme faible devant l'intensité pompe $\Omega_1 \ll \Omega_2$. La population est initialement dans l'état fondamental $|1\rangle$. Le pompage optique et les effets de creusement spectral sont négligés, $\Omega_2 \ll \gamma_{13}, \gamma_{23}$. A l'état stationnaire, les populations des états $|2\rangle$ et $|3\rangle$ restent nulles $\sigma_{22} = \sigma_{33} = 0$, alors que toute la population est dans l'état $|1\rangle$, $\sigma_{11} = 1$. Dans ce cas, la cohérence σ_{31} de l'équation(5.8) se simplifie et

s'écrit :

$$\begin{aligned}\sigma_{13} &= -\frac{i\Omega_1}{2} \frac{\mathcal{D}_{12}}{\mathcal{D}_{12}\mathcal{D}_{13}^* + \Omega_2^2/4} \\ \sigma_{13} &= -\frac{i\Omega_1}{2} \frac{\gamma_{12} + i(\delta_2 - \delta_1)}{(\gamma_{12} + i(\delta_2 - \delta_1))(\gamma_{13} - i\delta_1) + \Omega_2^2/4}\end{aligned}\tag{5.9}$$

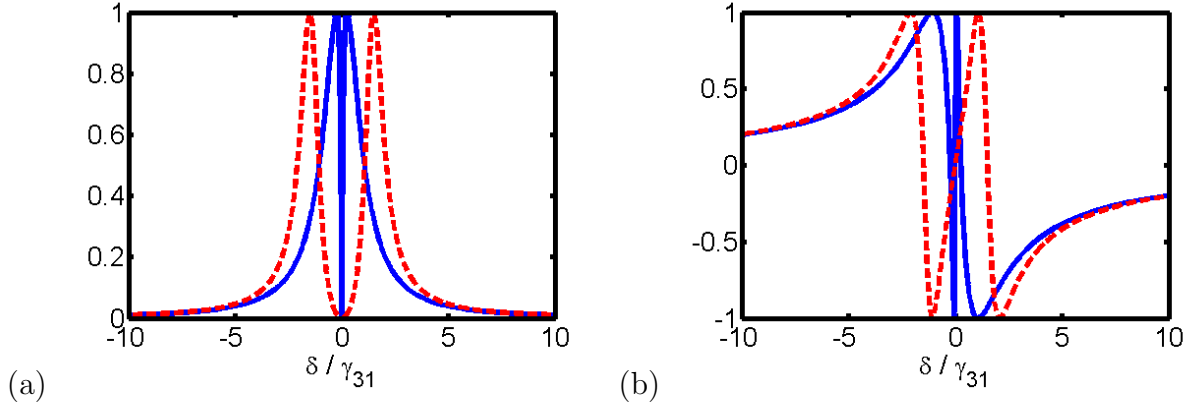


FIG. 5.2 – (a) Absorption $Im(\sigma_{13})/\Omega_1$ et (b) dispersion $Re(\sigma_{13})/\Omega_1$ en fonction du désaccord sonde δ_1/γ_{13} pour deux puissances de couplage $\Omega_2 = 0.3\gamma_{13}$ et $\Omega_2 = 2\gamma_{13}$, le temps de cohérence Raman est supposé infini $\gamma_{12} = 0$.

La figure 5.2 représente l'absorption $Im(\sigma_{13})/\Omega_1$ et la dispersion $Re(\sigma_{13})/\Omega_1$ en fonction du désaccord de la sonde δ_1 normalisé au taux de décohérence optique γ_{13} . Le taux de décohérence Raman est supposé nul $\gamma_{12} = 0$. Deux puissances de couplage sont considérées $\Omega_2 = 0.3\gamma_{13}$ et $\Omega_2 = 2\gamma_{13}$.

Pour une puissance de couplage de $\Omega_2 = 0.3\gamma_{13}$ un pic de transparence très fin est observé, au milieu d'une résonance complètement absorbante. Lorsque la puissance de couplage est plus importante que la largeur homogène optique $\Omega_2 = 2\gamma_{13}$, le pic de transparence s'élargit. La dispersion associée est évidemment très forte dans le cas $\Omega_2 < \gamma_{13}$ et a été utilisée lors de la première expérience de lumière "ultra-lente" [9].

On peut comprendre cette annulation de l'absorption comme un effet d'interférences quantiques. Deux contributions s'ajoutent au niveau de la réponse atomique à l'excitation des deux champs. La première est le chemin direct $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$, la seconde est le chemin indirect autorisé par la présence de la pompe $|1\rangle \rightarrow |3\rangle \rightarrow |2\rangle \rightarrow |3\rangle$. Ce dernier chemin a une amplitude comparable au premier dans le cas d'une pompe très intense. Lorsque les deux champs sont en résonance les deux contributions sont en opposition de phase, conduisant à l'annulation de la susceptibilité, et donc de l'absorption. Le terme transparence induite électromagnétiquement (EIT pour *Electromagnetically Induced Transparency*) a été introduit par Harris *et al.* en 1990 pour décrire cette annulation de l'absorption.

En considérant que le temps de vie des cohérences est très grand $\gamma_{12} \rightarrow 0$, la cohérence σ_{13} est donc nulle pour $\delta_1 = \delta_2 = 0$. Pour γ_{12} petit mais non nul, on peut comparer la

cohérence résiduelle de la sonde à résonance ($\delta_1 = 0$) lorsque la pompe est présente σ_{13}^{eit} à la cohérence résiduelle linéaire σ_{13}^{lin}

$$\sigma_{13}^{lin} = \frac{-i\Omega_1}{2\gamma_{13}} \quad (5.10)$$

$$\sigma_{13}^{eit} = \frac{4\gamma_{13}\gamma_{12}}{\Omega_2^2} \sigma_{13}^{lin} \quad (5.11)$$

Le cas d'une pompe résonante avec $\gamma_{12} = 0.01\gamma_{13}$ est présenté sur la première figure 5.3. Lorsque la pulsation de Rabi Ω_2 du faisceau de couplage E_2 est suffisamment forte $\Omega_2^2 \gg 4\gamma_{13}\gamma_{12}$ l'absorption vue par la sonde est négligeable.

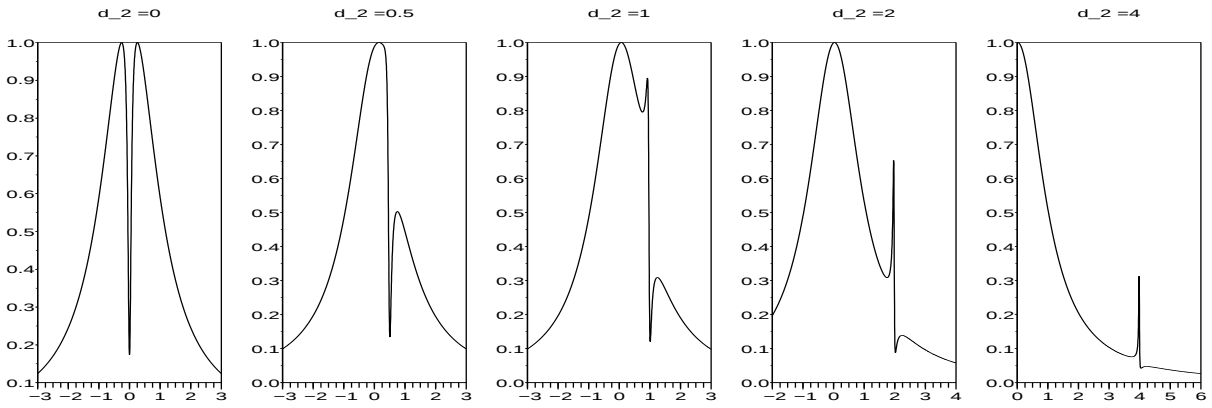


FIG. 5.3 – Absorption $Im(\sigma_{13})/\Omega_1$ en fonction du désaccord sonde δ_1/γ_{13} pour différents désaccords δ_2 de la pompe par rapport à la transition $|2\rangle \rightarrow |3\rangle$, $\delta_2 = 0, 0.5, 1, 2, 4 \times \gamma_{13}$ avec $\Omega_2 = 0.5\gamma_{13}$, $\gamma_{12} = 0.01\gamma_{13}$.

La largeur de la résonance pour une pompe résonante ($\delta_2 = 0$) est de

$$\delta^{eit} = \frac{\gamma_{12}\gamma_{13} + \Omega_2^2/4}{\gamma_{13} + \gamma_{12}} \quad (5.12)$$

Lorsque le temps de vie de la cohérence Raman est nettement supérieur à celui de la cohérence optique $\gamma_{13} \gg \gamma_{12}$

$$\delta^{eit} \sim \gamma_{12} + \frac{\Omega_2^2/4}{\gamma_{13}} \quad (5.13)$$

la largeur de la transparence est gouvernée par le taux de décohérence hyperfin γ_{12} .

Les figures 5.3 représentent l'évolution du spectre d'absorption de la sonde pour différents désaccords de la pompe par rapport à la transition $|2\rangle \rightarrow |3\rangle$. Lorsque $\delta_2 > \gamma_{13}$ le profil de l'EIT devient dispersif, et même absorptif pour $\delta_2 = 4\gamma_{13}$. Ces caractéristiques seront retrouvées au paragraphe 5.4.

5.1.3 Etat noir

Pour avoir une vision plus physique de la transparence induite et ses propriétés, nous nous intéressons dans ce paragraphe au point de vue de l'atome habillé. Pour simplifier on suppose que $\delta_1 = \delta_2$ c'est à dire que la condition de résonance à deux photons est remplie. On note $\delta = \delta_1 = \delta_2$ le désaccord à la résonance atomique. Les valeurs propres de l'hamiltonien H éq. (5.5) sont 0 et $\hbar\omega^\pm = \hbar/2 \left(\delta \pm \sqrt{\delta^2 + \Omega_1^2 + \Omega_2^2} \right)$. Elles sont associées aux états propres

$$\begin{aligned} |a^0\rangle &= \cos\theta|1\rangle - \sin\theta|2\rangle \\ |a^+\rangle &= \sin\theta\sin\phi|1\rangle + \cos\theta\sin\phi|2\rangle + \cos\phi|3\rangle \\ |a^-\rangle &= \sin\theta\cos\phi|1\rangle + \cos\theta\cos\phi|2\rangle - \sin\phi|3\rangle, \end{aligned} \quad (5.14)$$

avec les angles θ et ϕ tels que $\tan\theta = \frac{\Omega_1}{\Omega_2}$ et $\tan 2\phi = \frac{\sqrt{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}}{\delta}$.

Alors que les états $|a^\pm\rangle$ sont une superposition des trois états au repos $|1\rangle$, $|2\rangle$ et $|3\rangle$, l'état $|a^0\rangle$ n'a pas de contribution de l'état excité $|3\rangle$ et est une superposition cohérente des deux états fondamentaux de l'atome $|1\rangle$ et $|2\rangle$. Il est impossible de coupler optiquement cet état vers l'état excité, cet état est appelé état noir. Le piégeage vers cet état noir peut se faire par pompage optique et émission spontanée depuis $|3\rangle$ par exemple. En préparant le système dans l'état $|a^0\rangle = |1\rangle$, la transparence du faisceau sonde est obtenue directement lorsque le faisceau de couplage est présent. Sans préparation, le piégeage de la population dans l'état noir se fait naturellement dans l'état noir $|a^0\rangle$, superposition cohérente des états $|1\rangle$ et $|2\rangle$.

L'angle θ souligne le rôle symétrique des deux champs dans l'excitation de la cohérence Raman. Pour $\Omega_1 \ll \Omega_2$, l'état piège est $|1\rangle$ alors que pour $\Omega_1 \gg \Omega_2$, l'état piège est $|2\rangle$. Lorsque les deux pulsations de Rabi sonde et couplage sont égales, $\Omega_1 = \Omega_2$, l'angle θ vaut $\pi/4$. L'état noir est alors une superposition cohérente de $|1\rangle$ et $|2\rangle$ avec des coefficients de même amplitude et phase opposée, correspondant à une cohérence entre les niveaux maximale :

$$|a^0\rangle = 1/\sqrt{2}(|1\rangle - |2\rangle). \quad (5.15)$$

Il est possible en utilisant l'effet de transparence induite de transférer complètement l'information portée par le faisceau sonde dans une telle superposition en diminuant progressivement l'intensité du faisceau de couplage jusqu'à 0. Le faisceau sonde est restauré, avec ses propriétés quantiques, lorsque le faisceau de couplage est remis. Une mémoire quantique est ainsi obtenue [7].

5.2 Etude préliminaire

Dans la suite des expériences de creusement spectral nous avons étudié plus particulièrement certains anti-trous, jugés intéressants parce que leur amplitude est importante et parce qu'ils apparaissent lors des expériences impulsionnelles. Ces anti-trous sont observés

lorsque le laser pompe est en A et en G dans le spectre d'absorption (voir figure 2.7 pour les lettres). D'après le recoupement des expériences de creusement spectral et de résonance paramagnétique électronique certains de ces anti-trous correspondent à des systèmes en Λ , notés Λ_1 et Λ_2 dans le paragraphe 3.3.3, figure 3.30. Leur comportement sous excitation des deux lasers est étudié, notamment en fonction de la puissance de l'excitation.

Les anti-trous concernés par cette étude sont situés pour une pompe en G à 880 MHz, à 1510 MHz et à 1780 MHz (spectres de creusement spectral de la figure 3.16) et pour une pompe en A à 740 MHz (spectre 3.17). Parmi ces anti-trous, seuls ceux à 880 MHz (Λ_1) et 740 MHz (Λ_2) correspondent à une transition en Λ d'après l'étude de la RPE. Ne connaissant pas à ce moment les résultats de la spectroscopie de résonance paramagnétique électronique une étude systématique de tous les anti-trous en Λ n'a pu être réalisée.

5.2.1 Expériences à 2 faisceaux

Ces premières observations ont été faites avec deux lasers en utilisant le dispositif expérimental des expériences de creusement spectral de la figure 3.11.b. Les deux lasers *Koheras* présentent tous les deux une grande finesse de raie, inférieure au kHz. Par ailleurs leur battement présente une largeur de l'ordre de 0.5 MHz qui se déplace sur plus de 2 MHz sur une échelle temporelle de l'ordre de la seconde. Lors des expériences, l'acquisition des spectres est faite en quelques ms, on peut donc considérer que les fréquences des deux lasers sont stables l'une par rapport à l'autre à mieux que 0.5 MHz. Il est ainsi possible d'exciter, de manière plus ou moins cohérente, les ions erbiums à deux fréquences différentes en même temps, comme cela est nécessaire pour exciter la cohérence Raman entre niveaux hyperfins et observer la transparence induite.

Variation de la puissance de pompe

La première étude a été faite en variant la puissance du faisceau pompe, qui excite le système continuellement. Le faisceau sonde est présent uniquement pendant l'acquisition du spectre. Le spectre de transmission de la sonde est enregistré ainsi que sa dérivée, obtenue par modulation de fréquence autour de 1 MHz (voir chapitre 2 pour les détails).

La figure 5.4 présente le spectre de transmission et sa dérivée en fonction de la puissance de la pompe pour l'anti-trou à 880 MHz, configuration Λ_1 . La puissance du faisceau sonde est maintenue constante à 50 μW . Le faisceau pompe est focalisé sur 680 μm et le faisceau sonde sur 380 μm . Les intensités correspondantes des faisceaux sont de 22.0 mW/cm² pour la sonde et de 1.8 mW/cm² à 220 mW/cm² pour la pompe. Lorsque la puissance de la pompe augmente un pic apparaît au milieu de l'anti-trou. Sa transmission augmente et dépasse la transmission linéaire pour une puissance pompe de 1.6 mW. Les largeurs de ces structures sont mieux perceptibles sur le spectre dérivé (figure 5.4.b). Si la largeur pic-à-pic de l'anti-trou et de la transparence semblent être les mêmes (1.3 MHz et 1.4 MHz respectivement), celle-ci apparaît sur le fond d'un anti-trou élargi (4.3 MHz) par la puissance de pompage. Cette observation fait donc pencher l'interprétation de cette transparence comme venant de l'excitation par les deux lasers de la cohérence Raman entre les deux

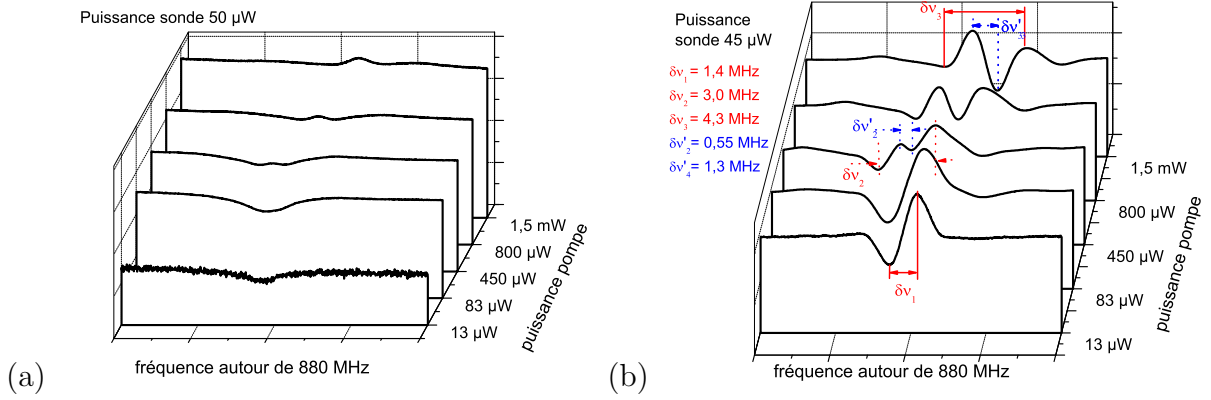


FIG. 5.4 – Variation du spectre de creusement spectral en fonction de la puissance du faisceau pompe faisceau pompe situé en G, configuration Λ_1 pour un faisceau sonde de $50 \mu\text{W}$ ($22.0 \text{ mW}/\text{cm}^2$), (a) spectre en transmission (b) spectre après démodulation FM à 1 MHz.

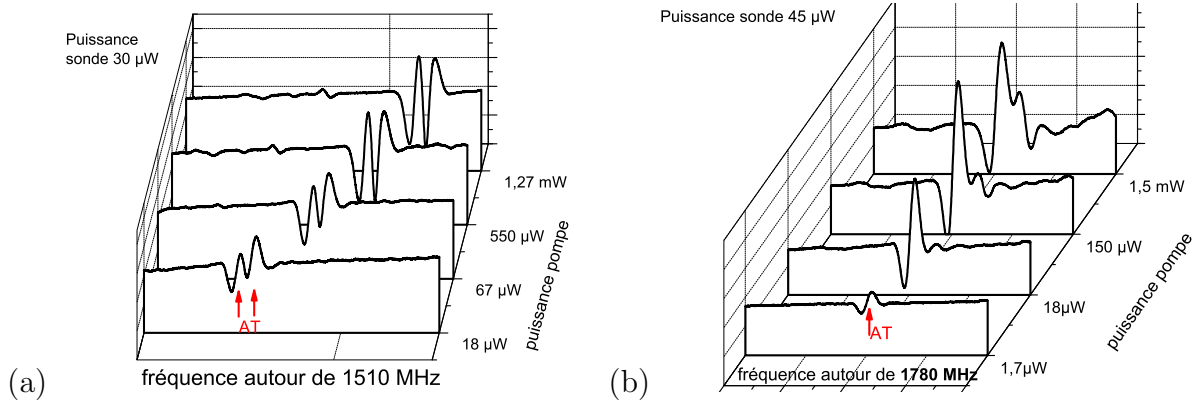


FIG. 5.5 – Variation de la dérivée du spectre de creusement spectral (signal démodulé) en fonction de la puissance du faisceau pompe faisceau pompe situé en G pour un faisceau sonde de $50 \mu\text{W}$ ($22.0 \text{ mW}/\text{cm}^2$), (a) anti-trou à 1510 MHz (b) anti-trou à 1780 MHz, .

niveaux hyperfins. La meilleure transparence est obtenue ici pour des intensités pompe de 220 mW/cm² et sonde de 22 mW/cm².

Les figures 5.5.a et 5.5.b représentent la dérivée des spectres de transmission en fonction de la puissance de pompe pour les anti-trous à 1510 MHz et 1780 MHz respectivement. Les spectres en transmission n'ont pas été représentés à cause de la médiocrité du rapport signal sur bruit. Pour l'anti-trou à 1510 MHz, un double pic est présent quelle que soit la puissance. Cela correspond vraisemblablement à deux anti-trous très proches dont l'amplitude augmente avec la puissance de pompage¹. Le comportement de l'anti-trou à 1780 MHz en fonction de la puissance de pompage est similaire, son amplitude augmente. Un trou apparaît juste à côté (à 2 MHz du centre de l'anti-trou environ) pour les fortes puissances ($> 100 \mu\text{W}$), mais il n'y a pas de structures à l'intérieur de l'anti-trou. Pour ces deux anti-trous la variation de la puissance sur des plages équivalentes à celle de l'étude de l'anti-trou Λ_{11} à 880 MHz n'induit aucun élargissement.

Variation de la puissance de la sonde

La figure 5.6.a représente le spectre de transmission autour de l'anti-trou Λ_1 à 880 MHz (pompe en G) pour différentes puissances de la sonde. La puissance du faisceau pompe est maintenue à 1 mW. Le faisceau pompe est focalisé sur 570 μm et le faisceau sonde sur 510 μm . Par rapport aux expériences précédentes, l'augmentation de la taille du faisceau sonde permet de travailler avec des puissances plus importantes, donc des signaux plus importants et moins bruités. La réduction de la taille du faisceau pompe permet de travailler à plus forte intensité. L'intensité de la pompe est ainsi de 196 mW/cm². L'intensité de la sonde varie de 2.5 mW/cm² à 147 mW/cm². Comme précédemment les deux faisceaux sont présents lors de l'acquisition. La plus grande transparence est obtenue pour une intensité sonde de 147 mW/cm². Son amplitude est trois fois celle de l'anti-trou à faible puissance.

La figure 5.6.b représente le spectre de transmission en fonction de la puissance de la sonde autour de l'anti-trou Λ_2 à 740 MHz, pompe en A. La puissance du faisceau pompe est de 1.7 mW, focalisé sur 570 μm (333 mW/cm²). Le faisceau sonde est focalisé sur 510 μm , et sa puissance varie de 20 μW à 1 mW (5 mW/cm² à 245 mW/cm²). Sur les spectres présentés le fond de l'absorption de la sonde seule sans la pompe a été soustrait. La largeur de l'anti-trou passe de 3 MHz à 5.7 MHz lorsque la puissance de la sonde varie de 20 μW à 1 mW, confirmant que les puissances de sonde en jeu ne sont pas négligeables et modifient le comportement en creusement spectral du système. La transparence obtenue a une largeur de 1.3 MHz, comparable au 1.7 MHz obtenus avec la configuration Λ_1 .

Cette situation de transparence optimisée (à défaut d'être optimale) pour les deux anti-trous Λ_1 à 880 MHz et Λ_2 à 740 MHz apparaît pour des intensités pompe et sonde du même ordre ($\sim$ centaine de mW/cm²) dans les deux configurations.

¹Des expériences de spectroscopie ultérieures ont confirmé qu'il s'agit bien de 2 anti-trous respectivement à 1505 MHz et 1510 MHz de la fréquence de la pompe.

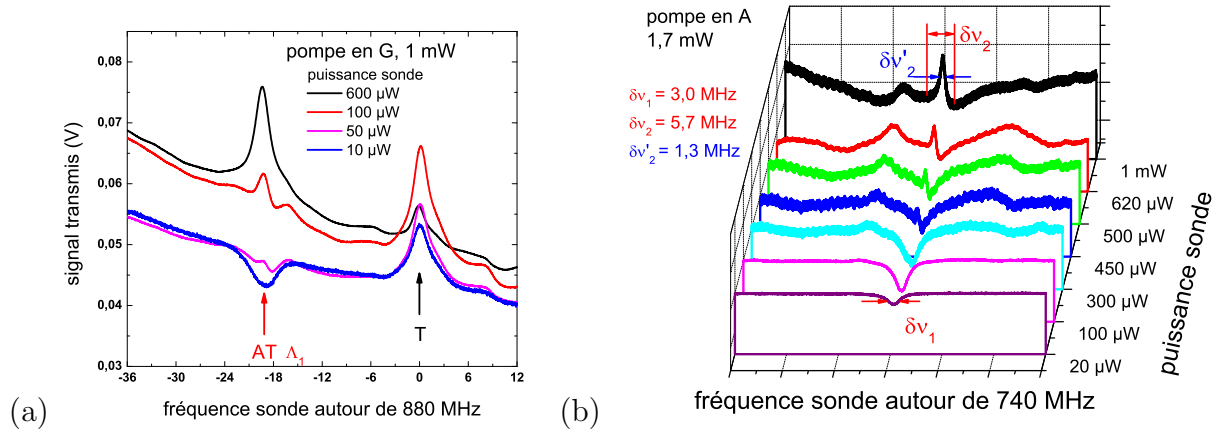


FIG. 5.6 – Spectre de creusement spectral en transmission en fonction de la puissance du faisceau sonde. (a) Spectres autour de 880 MHz pour un faisceau pompe de 1 mW, situé en G, configuration Λ_1 . (b) Spectres autour de 740 MHz pour un faisceau pompe de 1.7 mW, situé en A, configuration Λ_2 .

Discussion

L'étude des spectres de creusement spectral selon la puissance des faisceaux pompe et sonde révèle deux comportements distincts selon que les anti-trous correspondent ou non à des systèmes en Λ :

- *Deux comportements différents.* Les anti-trous en Λ (Λ_1 pompe en G, sonde décalée de 880 MHz et Λ_2 pompe en A, sonde décalée de 740 MHz) présentent un pic de transmission, transparence qui n'a pas été observée pour les autres anti-trous pour des puissances optiques comparables. Ce comportement est symptomatique de la transparence induite qui ne peut être excitée que dans un système en Λ . L'observation de l'induite électromagnétiquement peut d'ailleurs être envisagée comme un moyen d'identifier les systèmes en Λ .
- *Caractéristique de la transparence.* La transparence obtenue à l'intérieur des anti-trous en Λ peut avoir une amplitude importante, (jusqu'à 3 fois celle de l'anti-trou) lorsque les intensités pompe et sonde sont relativement importantes et du même ordre de grandeur (200 mW/cm²). La largeur spectrale de cette transparence est de 0.5 MHz à basse puissance et de 1.7 MHz à forte puissance (et forte transparence). Cette largeur est du même ordre que celle d'un anti-trou, ce qui ne permet pas de conclure fermement sur la nature de la transparence. Dans le cas de la transparence induite on s'attend en effet à un pic plus fin, dont la largeur est gouvernée par le temps de cohérence Raman entre niveaux hyperfins.
- *Comportement des anti-trous.* L'élargissement fréquentiel des anti-trous à 880 MHz, 1510 MHz et 1780 MHz avec la puissance n'est pas le même selon qu'on observe ou pas la transparence. Les phénomènes touchant aux populations des niveaux hyperfins sont donc différents. Est-ce que des puissances plus importantes (non accessibles

expérimentalement) auraient permis de voir une transparence pour les anti-trous à 1510 MHz et 1780 MHz ?

Ces résultats préliminaires utilisant 2 lasers ne permettent pas de conclure. La question de savoir si cette transparence est liée aux populations ou à la cohérence Raman reste posée.

5.2.2 Expérience à 3 faisceaux

Dans les premiers résultats que nous venons de présenter, la présence de l'anti-trou témoigne de l'importance du creusement spectral parallèlement à l'effet de transparence observé. Pour avancer dans la compréhension de ce phénomène, nous avons ajouté un faisceau de repompage à une fréquence correspondant à un anti-trou différent de l'anti-trou en Λ étudié. L'idée est de modifier l'état initial des populations du système en contrebalançant l'effet de creusement spectral à l'origine de l'anti-trou qui apparaît en utilisant deux faisceaux pompe et sonde. Le faisceau de repompage à la fréquence d'un anti-trou est en résonance avec la classe excitée par le faisceau pompe et recycle une partie de la population vers les deux niveaux hyperfins concernés par le système en Λ . Un schéma des niveaux est présent sur la figure 5.7.a.

Cette configuration de pompage est très différente des configurations précédemment utilisées dans $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ pour préparer l'état initial des ions. Dans la référence [22] par exemple, les faisceaux de sonde et de couplage sont résonnants avec les transitions $^3\text{H}_4(\pm 3/2) \rightarrow ^1\text{D}_2(\pm 1/2)$ et $^3\text{H}_4(\pm 1/2) \rightarrow ^1\text{D}_2(\pm 1/2)$, afin d'exciter la cohérence entre les niveaux $^3\text{H}_4(\pm 3/2)$ et $^3\text{H}_4(\pm 1/2)$ séparés de 10.2 MHz. Le faisceau de couplage est très intense et sature toute une bande dans l'absorption. Le laser de repompage accordé sur la transition $^3\text{H}_4(\pm 5/2) \rightarrow ^1\text{D}_2(\pm 3/2)$, permet de sélectionner une classe d'ion fine spectralement en repeuplant les niveaux fondamentaux de cette classe. C'est avec cette classe d'ions seulement que la transparence induite est obtenue.

Le laser utilisé pour le repompage est une source fibrée accordable *T'unis* délivrant jusqu'à 10 mW. Elle est envoyée collimatée à travers le cristal, au moyen d'un cube polariseur (sa polarisation est orthogonale à celle des faisceaux pompe et sonde). Aucune modulation temporelle ne lui est appliquée, ce faisceau est présent en permanence. Sur la figure 5.7.a les spectres de transmission de la sonde avec et sans faisceau de repompage sont tracés. Le faisceau pompe est placé en G. Le faisceau de repompage a été placé au niveau de l'anti-trou à 1510 MHz en C. L'anti-trou à 880 MHz en configuration Λ_1 est situé en E. Le laser *Tunics* présente une gigue en fréquence importante, le trou spectral qu'il creuse a une largeur de 60 MHz environ. (À part le trou correspondant au laser, aucun spectre de creusement spectral spécifiquement lié au laser de repompage n'est observé.) Compte tenue des caractéristiques spectrales du laser *Tunics*, le pompage n'est pas cohérent avec l'excitation pompe-sonde.

La figure 5.7.b représente les spectres de creusement spectral en transmission avec et sans faisceau de repompage. La sonde et la pompe ne sont pas présentes en même temps. La sonde est allumée 11 ms après que la pompe est éteinte. Les deux faisceaux n'étant pas présent en même temps, seuls les effets de population sont visibles. Un anti-trou à

880 MHz et un trou à 898 MHz sont observés. L'effet du faisceau de repompage sur les populations est de diminuer l'amplitude du trou et de l'anti-trou.

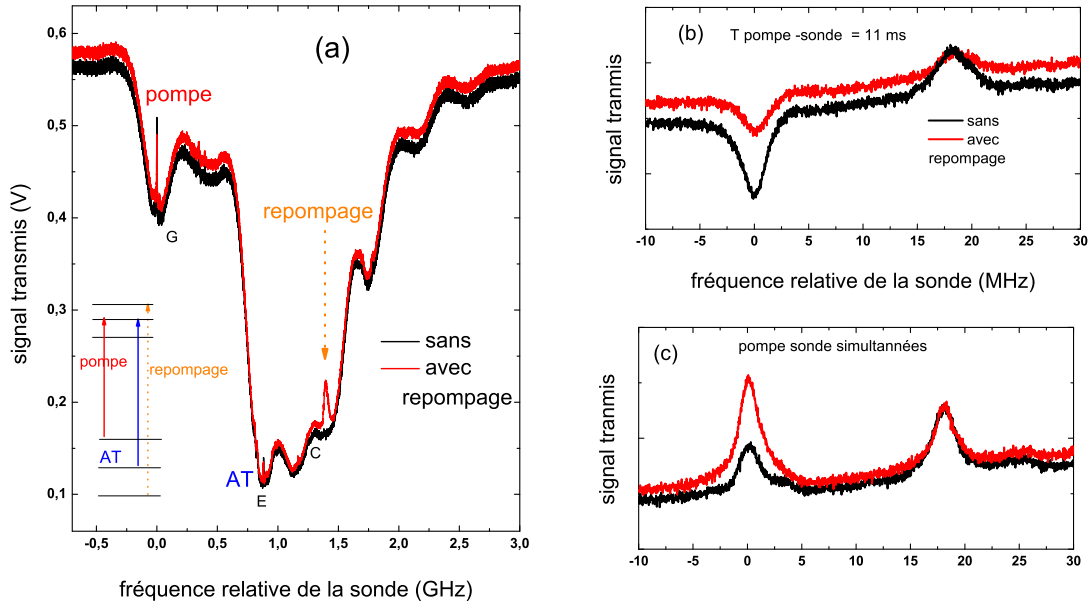


FIG. 5.7 – Étude de la transparence à 880 MHz (configuration Λ_1) avec 3 faisceaux. (a) Spectre de creusement spectral avec et sans faisceau de repompage, celui-ci est positionné autour de l'anti-trou à 1510 MHz. (b)(c) Agrandissement du spectre de la figure (a) mettant en valeur l'effet du faisceau de repompage sur l'amplitude de l'anti-trou, pompe et sonde superposées (b) et non superposée dans le temps (c).

La figure 5.7.c représente le même spectre que la figure 5.7.b avec une superposition temporelle de la pompe et la sonde. Dans ce cas, les faisceaux pompe et sonde étant présents en même temps, il est possible d'exciter la cohérence Raman des niveaux hyperfins des ions erbiums 167. Sans repompage, on observe effectivement une transparence, dont l'amplitude augmente lorsque le repompage est présent. S'il s'agit bien de transparence induite, elle est obtenue de manière équivalente pour des populations initiales dans les états fondamentaux différents lorsque le repompage est présent ou non. Le gain sur la transparence est du même ordre de grandeur que le gain sur l'amplitude de l'anti-trou et peut donc être attribué au creusement spectral seul.

Premières conclusions

En utilisant deux lasers de grande finesse spectrale mais néanmoins indépendants, nous avons pu observer des pics de transparence :

- La différence de comportement entre les anti-trous en Λ à 880 MHz (Λ_1) et 740 MHz (Λ_2) et les deux autres anti-trous à 1510 MHz et 1780 MHz conforte l'idée que la transparence observée est spécifique à la configuration en Λ et qu'il ne s'agit pas d'un phénomène de type creusement spectral qui aurait eu lieu de manière équivalente sur tous les anti-trous.

- La transparence n'apparaît que lorsque les faisceaux pompe et sonde excitent en même temps les ions erbiums 167, c'est là aussi une condition nécessaire à l'observation de la transparence induite.

- Les largeurs spectrales obtenues sont cependant relativement importantes et comparables aux largeurs des anti-trous (1.7 MHz).

- L'introduction d'un troisième laser dit de *repompage*, incohérent, peut être utilisé pour changer les populations à l'équilibre des niveaux fondamentaux, mais ne semble pas jouer sur l'efficacité de la transparence

Ces expériences préliminaires ne permettent pas de conclure fermement sur l'excitation de la cohérence Raman entre les deux niveaux hyperfins formant un système en Λ mais laissent cette voie ouverte. Afin de confirmer et d'améliorer ses résultats, nous avons mis en place un nouveau dispositif expérimental permettant d'avoir deux faisceaux cohérents entre eux, sans gigue en fréquence et indépendants spatialement et temporellement.

5.3 Résultats expérimentaux

Comme nous l'avons vu dans le développement théorique la transparence induite apparaît lorsque le système en Λ est excité simultanément sur les deux bras par deux champs cohérents. Les niveaux hyperfins de l'erbium 167 dans YSO étant séparés de quelques centaines de MHz, il est intéressant d'utiliser une seule source laser et de générer par des techniques de modulation le second faisceau. La cohérence entre la pompe et la sonde est ainsi optimale. Les configurations Λ_1 et Λ_2 à 880 MHz et 740 MHz qui nous intéressent interdisent cependant d'utiliser un modulateur acousto-optique comme dans les expériences dans $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ [22]. Le dispositif expérimental décrit sur la figure 5.8 repose sur une modulation d'amplitude filtrée. Il permet d'avoir deux faisceaux cohérents entre eux décalés de quelques centaines de MHz et indépendants spatialement et temporellement.

5.3.1 Dispositif

Le principe du dispositif expérimental est décrit sur la figure 5.8. Le faisceau issu du laser *Koheras* est séparé en deux voies, une voie pompe à la fréquence ω_P du laser et une voie sonde. Sur la voie sonde, une modulation d'amplitude à la fréquence ν_{RF} crée deux bandes latérales autour de la fréquence ω_P . Le faisceau sonde est obtenu par filtrage fréquentiel dans un Fabry Péroth asservi à la fréquence de la bande latérale qui nous intéresse, $\omega_P + \nu_{RF}$ sur le schéma. Sur les deux voies, des modulateurs acousto-optiques (AO) permettent de façonner temporellement les faisceaux pompe et sonde. Nous allons maintenant détailler le

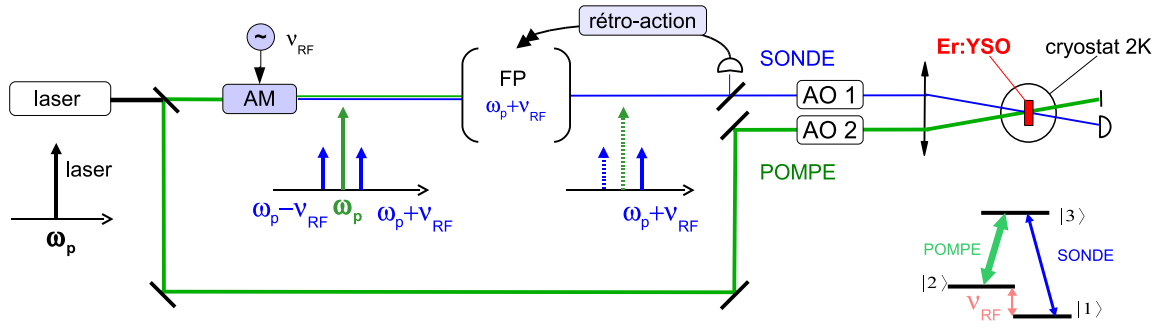


FIG. 5.8 – Schéma de principe du dispositif expérimental destiné à l'observation de la transparence induite. Sur la voie sonde, la modulation d'amplitude (AM) du faisceau à la fréquence ν_{RF} est utilisée pour générer deux bandes latérales. FP est un Fabry Péro asservi sur la bande latérale à $\omega_P + \nu_{RF}$. Insert : configuration souhaitée des faisceaux pompe et sonde et du système à 3 niveaux en Λ .

dispositif de modulation d'amplitude, le Fabry Péro et son asservissement et le montage des voies sonde et pompe.

Modulation d'amplitude

La modulation d'amplitude à la fréquence ν_{RF} est utilisée pour créer deux bandes latérales à $\omega_P \pm \nu_{RF}$ autour de la fréquence ω_P . Une de ces bandes latérales constitue le faisceau de sonde après filtrage par le Fabry Péro. Il faut donc pouvoir faire varier facilement ν_{RF} et obtenir suffisamment de puissance dans les bandes latérales. (Les compromis expérimentaux étant dans le *facilement* et le *suffisamment*.)

Pour réaliser cette modulation, nous utilisons un interféromètre de Mach-Zehnder fibré commercial (*JDSU Z5 Modulator*), MZ. Ses caractéristiques sont reportées dans le tableau 5.1. Le MZ est formé de deux guides d'onde possédant des propriétés électro-optiques et placés entre les électrodes. En leur appliquant une tension V_{MZ} , la différence de phase entre les deux bras $\delta\varphi$ est modifiée ainsi que l'état d'interférence en sortie du MZ. L'intensité du faisceau en sortie de l'interféromètre I_S est donc modulée selon la tension V_{MZ} appliquée.

$$I_S = I_{S0} [1 + \cos(\delta\varphi(V_{MZ}))].$$

La figure 5.10.a. représente la transmission du MZ en fonction de la tension continue V_{MZ}^{bias} appliquée. La tension de polarisation permettant d'avoir un point de fonctionnement linéaire afin d'obtenir une modulation d'amplitude non déformée est de 2.8 V. En pratique, peu nous importe que la modulation en intensité soit réellement sinusoïdale ou présente des harmoniques puisque la composante fréquentielle souhaitée est ensuite filtrée par le Fabry Péro.

La tension sinusoïdale à ν_{RF} envoyée vers le MZ est issue du générateur RF *Agilent*

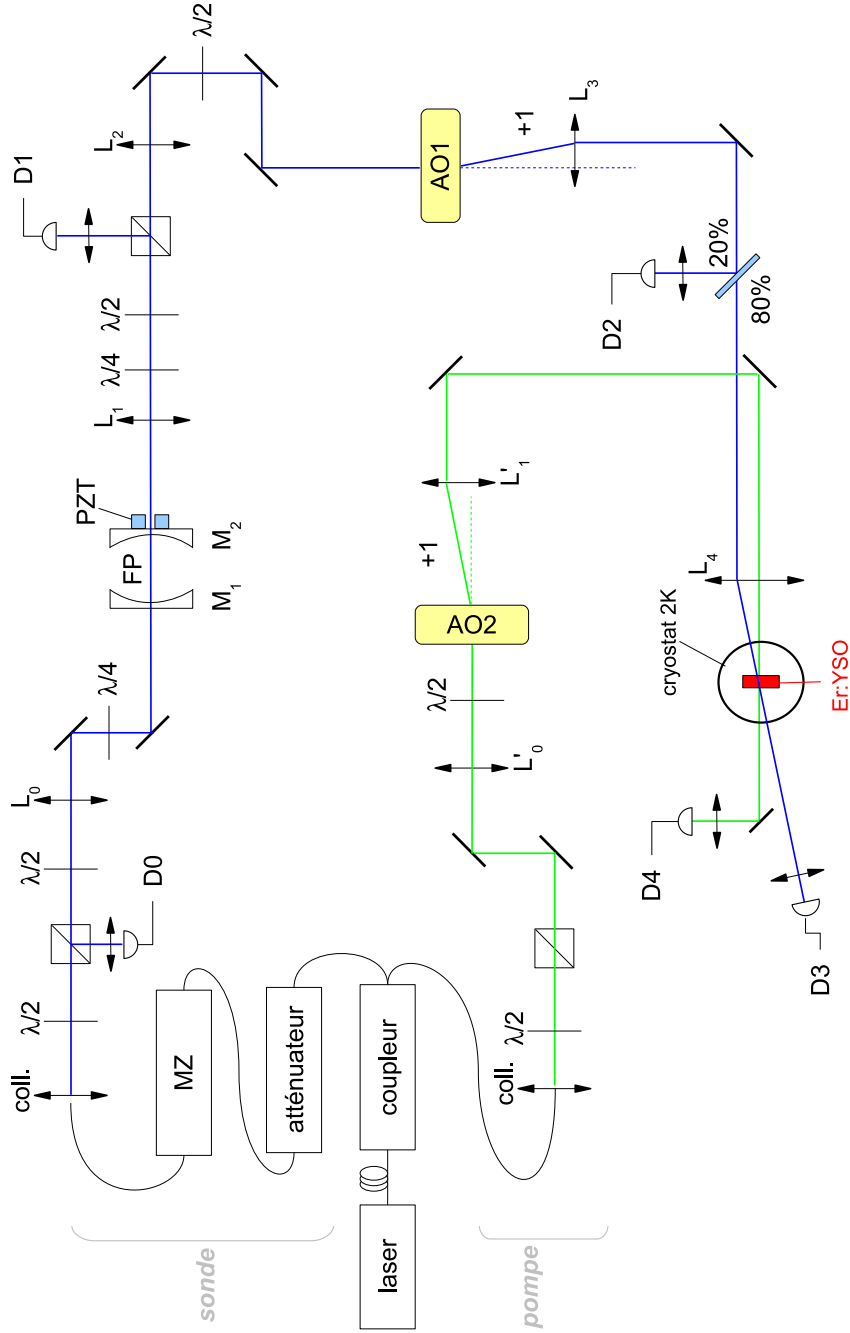


FIG. 5.9 – Détails du montage expérimental destiné à l'observation de la transparence induite. MZ interféromètre de Mach Zehnder fibré, FP : Fabry Pérot, M_1 , M_2 : miroirs du Fabry Pérot ; PZT : cale piézo électrique située sur le miroir arrière du Fabry-Pérot M_2 ; AO1, AO2 : modulateurs acousto-optiques identiques ; D_{0-4} : photodiodes InGaAs ; coll. L_{0-4} : lentilles de différente focale $f_0=400$ mm $f_1 = f_2 = f_4 =250$ mm, $f_3 =200$ mm, les lentilles de focalisation sur les détecteurs ont toutes une focale de 50 mm.

bande passante RF	10 GHz
intensité optique maximale en entrée I_{max}^{in}	10 mW
pertes d'insertion optiques	4.5 dB
$V\pi$	4 V

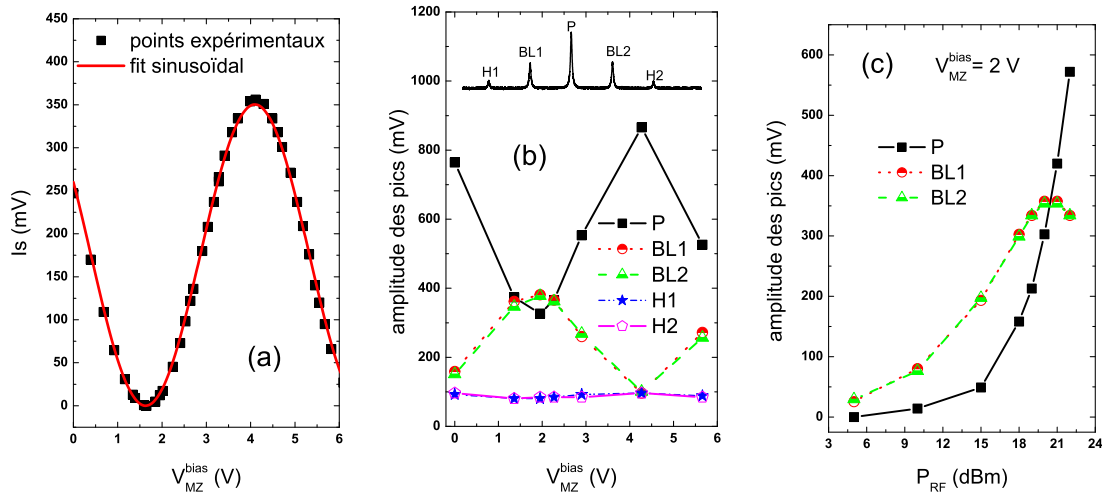
TAB. 5.1 – Caractéristiques du modulateur Mach-Zehnder *JDSU Z5*

FIG. 5.10 – Réponses du MZ. (a) Signal transmis en fonction de la tension de polarisation V_{RF}^{bias} . (b) Amplitude des différentes composantes transmises par le modulateur en fonction de la tension de polarisation V_{RF}^{bias} pour une modulation à ν_{RF} de 250 kHz de puissance 20 dBm (soit 3.3V crête à crête). Les composantes spectrales sont discriminées par le Fabry Péro dont le signal de transmission est tracé en insert. P : porteuse, BL1–BL2 : bandes latérales, H1–H2 : harmoniques à $2\nu_{RF}$. (c) Amplitude des différentes composantes transmises par le modulateur en fonction de la puissance RF en dBm injectée au modulateur MZ pour une tension de polarisation $V_{RF}^{bias} = 2$ V.

E 4428 C (option 506). Ce générateur RF délivre des sinusoïdes de grande pureté spectrale de 250 kHz à 6 GHz avec une résolution de 0.1 Hz. Il permet en outre de faire de la modulation d'amplitude, de fréquence et de phase de ce signal, en externe ou à l'aide d'un générateur de fonctions interne. Il délivre jusqu'à 22 dBm (158 mW) de puissance RF pour les fréquences inférieures à 1 GHz vers une charge 50 Ω .

Le Fabry Péro placé après le MZ est utilisé comme analyseur de spectre. En balayant la fréquence du laser, le signal transmis présente un pic chaque fois que la fréquence laser est résonante avec la cavité, modulo son intervalle spectral libre. Lorsqu'une modulation d'amplitude à ν_{RF} est appliquée, trois pics sont détectés correspondant à la fréquence laser et aux deux bandes latérales à $\pm\nu_{RF}$ dues à la modulation. Un signal typique est tracé sur

l'insert de la figure 5.10.b. Cette figure 5.10.b représente l'amplitude des pics correspondants à la porteuse (P), aux bandes latérales (BL1 et BL2) ainsi qu'aux harmoniques (H1 et H2) à $\pm 2\nu_{RF}$. La puissance de ces harmoniques est quasi-constante quelle que soit la tension de polarisation. Par ailleurs l'amplitude des bandes latérales à $\pm\nu_{RF}$ est maximale pour une tension de polarisation de $V_{MZ}^{bias}=2$ V, qui correspond également à une amplitude de porteuse minimale, indiquant un transfert de puissance de la porteuse vers les bandes latérales BL1 et BL2.

L'amplitude de la porteuse et des deux bandes latérales à $\pm\nu_{RF}$ est tracée en fonction de la puissance RF en dBm délivrée par le générateur *Agilent* pour $V_{MZ}^{bias}=2$ V sur la figure 5.10.c. Au delà de 20 dBm, l'amplitude des bandes latérales n'augmente plus, la puissance RF transférée vers le modulateur est maximale.

⇒ Afin de maximiser la puissance dans les bandes latérales, nous travaillons donc avec une tension de polarisation de $V_{MZ}^{bias}=2$ V et une puissance RF de 20 dBm.

Cavité Fabry–Pérot

Pour réaliser un filtre en fréquence accordable, nous utilisons une cavité Fabry Pérot asservie sur une bande latérale.

Montage La cavité utilisée est constituée de deux miroirs sphériques identiques (M_1 et M_2 sur la figure 5.9) de rayon de courbure $R_c = 250$ mm, de réflectivité $R_M = 99\%$ à 1.5 μm , séparés de $e \sim 46$ mm. Le second miroir est collé sur une cale piézo-électrique (PZT) en anneau qui laisse passer le faisceau optique. La transmission T_{FP} d'un tel Fabry Pérot en fonction de la fréquence ν de l'onde qui l'éclaire s'écrit :

$$T_{FP} = \frac{1}{1 + \frac{4R_M}{(1 - R_M)^2} \sin^2(\delta/2)}, \quad (5.16)$$

où $\delta = 2\pi en \frac{\nu}{c}$ est la différence de marche correspondant à un aller-retour dans la cavité et n est l'indice de réfraction de l'air entre les deux miroirs de la cavité, qui vaut 1. La transmission T_{FP} est un peigne de fréquence dont les pics sont séparés par l'intervalle spectral libre $ISL = c/2en$. La finesse du Fabry Pérot est définie comme le rapport de l'ISL sur la largeur à mi-hauteur d'un pic $\delta\nu$ et vaut théoriquement $\mathcal{F} = \pi\sqrt{R_M}/(1 - R_M) = 175$. La figure 5.11 représente une mesure de T_{FP} d' laquelle on déduit un ISL de $3.27 \text{ GHz} \pm 0.01 \text{ GHz}$ et une finesse expérimentale de 260. La largeur spectrale d'un pic de transmission est de $\delta\nu_{FP} = 13 \text{ MHz}$. La largeur spectrale du laser étant de $2 \text{ kHz} \ll \delta\nu_{FP}$, le Fabry Pérot ne réduit pas la largeur spectrale de la bande latérale.

La plage d'accordabilité du décalage en fréquence entre les deux faisceaux pompe et sonde est limitée par le Fabry Pérot entre 13 MHz et 1.6 GHz ($ISL/2$), ce qui permet d'envisager l'étude de la plupart des systèmes en Λ indentifiés

La réflectivité du Fabry Pérot $R_{FP} = 1 - T_{FP}$ est mesurée sur le détecteur D0 de la

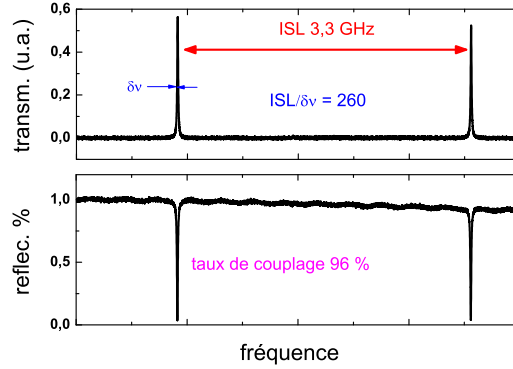


FIG. 5.11 – Transmission (en D1) et réflectivité (en D0) du Fabry Pèrot

figure 5.9 grâce à un circulateur optique². R_{FP} est tracée sur la figure 5.11.b. Un taux de couplage de 96% est obtenu en utilisant une lentille L_0 de focale $f_0 = 400$ mm afin d'adapter le mode du laser au mode propre transverse de la cavité. Ce mode est le mode gaussien TEM_{00} , ayant un waist minimal de $188 \mu\text{m}$ au centre de la cavité.

Pour augmenter la stabilité du Fabry Pèrot une mousse dense est placée entre son support et la table optique, atténuant entre autre les vibrations de cette dernière dues aux pompes à vide qui fonctionnent pendant les expériences. Pour limiter les fluctuations de l'indice de l'air entre les miroirs, il est recouvert d'un boîtier en plexiglas.

Asservissement Nous voulons asservir la longueur e de la cavité Fabry Pèrot de sorte que celui-ci soit toujours en résonance avec la fréquence de la bande latérale $\omega_P + \nu_{RF}$. La PZT située sur le miroir M_2 de la cavité permet de déplacer ce miroir et d'ajuster e selon la tension qui lui est appliquée. Lorsque la fréquence $\omega_P + \nu_{RF}$ ou la longueur de la cavité e dérive dans le temps, la transmission de la bande latérale chute. Un signal d'erreur mesurant cette chute est nécessaire pour corriger la longueur de cavité e en temps réel. Le signal d'erreur $\varepsilon(t)$ utilisé est la dérivée du signal transmis T_{FP} . $\varepsilon(t) = dT_{FP}/dt$ s'annule et change de signe autour du maximum de transmission : il n'y a pas d'erreur lorsque la transmission est maximale, et le signe de l'erreur change selon le sens de la dérive permettant une correction appropriée.

Cette dérivée dT_{FP}/dt est obtenue en appliquant une modulation temporelle à la longueur de la cavité e via la position du miroir M_2 . Nous avons travaillé en démodulant le signal en transmission T_{FP} et non en réflexion R_{FP} , ce qui impose de prélever une partie du faisceau transmis pour l'asservissement et réduit légèrement la puissance sonde disponible

²En sortie de fibre le faisceau a une polarisation rectiligne. La lame quart d'onde $\lambda/4$ placée avant le Fabry Pèrot permet d'envoyer une polarisation circulaire vers celui-ci. Le faisceau réfléchi par le Fabry Pèrot passe de nouveau à travers la $\lambda/4$ et sa polarisation redevient linéaire, orthogonale à sa polarisation originelle. Le faisceau réfléchi est renvoyé vers la photodiode D0 (*Newfocus 1811*) par le cube séparateur de polarisation

pour l'expérience.

Diamètre externe	16 mm
Diamètre interne	8 mm
Déplacement pour 1000 V (sans charge)	10 μm
Capacité d'entrée	90 nF
Etalonnage déplacement en charge	300 V $\leftrightarrow$ 1 μm

TAB. 5.2 – Caractéristiques de la cale PZT *PI Electronics P-016.05H*

Une cale piézo-électrique (PZT) (*PI Electronics P-016.05H*) dont les principales caractéristiques sont données dans le tableau 5.2 est collée au miroir M_2 d'un côté et sur une monture optique de l'autre. Nous avons calibré son déplacement dans les conditions de l'asservissement, c'est à dire miroir collé et en utilisant l'alimentation haute tension *Laserlab HVA-1000*. Un déplacement de 1 μm est obtenu pour une tension (maximale) de 300 V. Ce déplacement est suffisant pour l'asservissement autour d'une fréquence mais insuffisant pour parcourir un ISL. Un réglage mécanique de la longueur de la cavité permet de compenser ce défaut.

Le schéma de l'asservissement est représenté sur la figure 5.12. La commande statique permet de se placer autour de la résonance souhaitée. La modulation appliquée à la PZT est issue du générateur interne de la détection synchrone *SR830 DSP (Stanford Research)*. La fréquence de modulation f_{mod} utilisée est de ~ 74.5 kHz (fréquence qui maximise la pente de la démodulation autour de la transmission maximale). La démodulation est effectuée par la détection synchrone *SR830 DSP* suivie d'un amplificateur bas bruit *SR560*. La phase (φ sur la figure 5.12) de la démodulation est un paramètre important car elle change le signe de la pente autour du pic de transmission. Lorsque le signal d'erreur n'a pas le bon signe, la contre-réaction n'agit pas dans le bon sens. La constante de temps (τ sur la figure 5.12) du filtre passe bas du premier ordre de la détection synchrone détermine la rapidité de l'asservissement. L'amplitude du signal d'erreur est adaptée pour permettre une contre-réaction efficace en réglant le gain G sur la figure 5.12 au niveau de l'amplificateur. La commande statique, la modulation et le signal d'erreur sont additionnés et amplifiés par un amplificateur en tension (*Laserlab HVA-1000*) qui délivre une haute tension alimentant la cale PZT. Le niveau de commande statique est directement réglé sur l'amplificateur. ³

³Pour balayer la fréquence ν_{RF} en gardant l'asservissement, nous avons été amenés à rajouter une compensation passive dans le schéma de l'asservissement. Le balayage de la fréquence ν_{RF} de la sinusoïde délivrée par le générateur RF *Agilent* est piloté par ordinateur via une connexion GPIB et un programme *Labview*. Le générateur RF délivre une tension proportionnelle au balayage. Cette rampe en tension est ajustée et inversée selon la bande latérale utilisée au moyen d'un inverseur artisanal (basé sur un amplificateur opérationnel) puis ajouté à l'entrée de commande continue de l'amplificateur haute tension pilotant la PZT. Des balayages de plusieurs dizaines de MHz sont ainsi réalisables sans que l'asservissement ne décroche. Ce dispositif n'a finalement pas été utilisé dans les résultats présentés dans la suite.

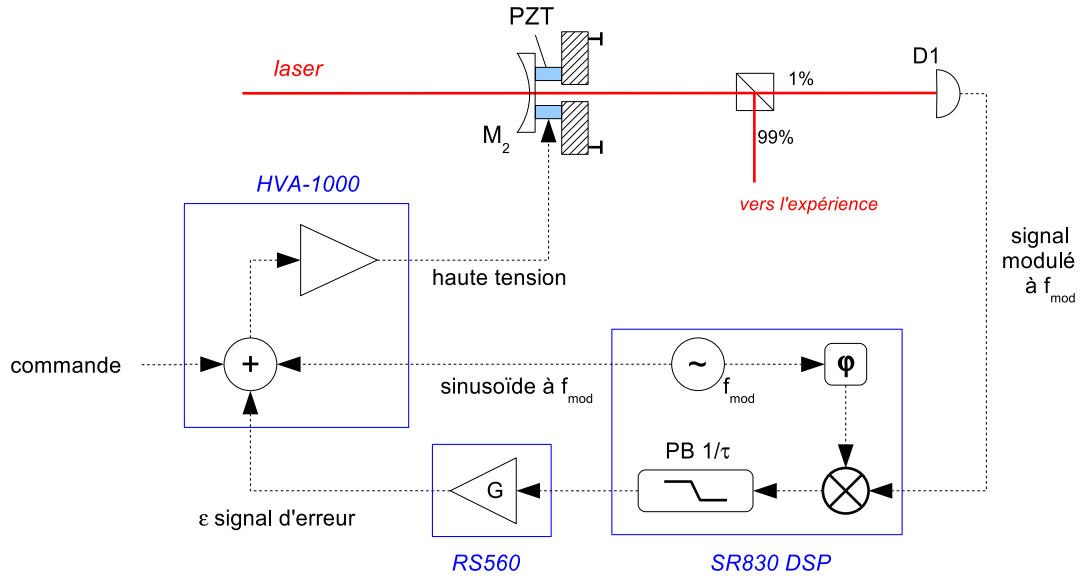


FIG. 5.12 – Diagramme de l'asservissement du Fabry Péro. Trait continu : faisceau laser, traits pointillés : signaux électriques. D1 photodiode (cf dispositif optique schéma 5.9). PZT : cale Piézo-électrique située sur le miroir de fond de la cavité Fabry Péro M_2 . Dans la détection synchrone *SR830*, un générateur délivrant une sinusoïde d'amplitude variable à f_{mod} , un déphaseur φ entre la référence interne et le signal, un filtre passe bas PB de constante de temps τ . G : gain de l'amplificateur *RS560*. L'alimentation haute tension *Laserlab HVA-1000* réalise la somme des différents signaux avant de les amplifier.

Montage optique

Le montage optique est représenté sur la figure 5.9. Il comprend une partie fibrée et une partie de propagation à l'espace libre pour la voie sonde comme pour la voie pompe. La partie fibrée comprend en sortie du laser un coupleur 80/20 (*JDSU Nufern PANDA14 XX*) à maintien de polarisation qui permet d'envoyer 82 % de la puissance vers la voie pompe et 18 % vers la voie sonde.

Sonde A la sortie du coupleur, le faisceau est envoyé vers un atténuateur fibré puis vers l'interféromètre de Mach-Zehnder fibré (MZ) au moyen de fibres optiques monomodes à $1.5\mu\text{m}$. En sortie du MZ, le faisceau sonde, contenant 3 fréquences est collimaté. La première lame demi-onde suivie du cube séparateur de polarisation constitue une densité optique variable pour ajuster la puissance du faisceau. La lentille L_0 de focale 400 mm permet d'adapter au mieux le mode spatial du faisceau au mode gaussien TEM_{00} de la cavité. Après la cavité, une partie du faisceau est prélevée à l'aide d'un cube séparateur de polarisation et envoyée vers la photodiode D1 (*Newfocus 1811*) pour permettre l'asservissement de la cavité.

Le faisceau est focalisé dans un modulateur acousto-optique (AO1) avec une lentille L_2 de focale 250 mm. L'AO1 permet d'appliquer à la fois une modulation en amplitude et une modulation de fréquence sur une plage de quelques MHz au faisceau sonde. 70% de la puissance incidente se retrouve dans l'ordre 1 de diffraction. La modulation de fréquence induit un léger changement de la direction de propagation de l'ordre diffracté. Afin de ne pas y être sensible, l'image de l'acousto-optique est faite au niveau du cristal au moyen de lentilles L_3 et L_4 , de focale 200 mm et 250 mm respectivement. Par ailleurs l'efficacité de diffraction change elle aussi avec la fréquence de modulation. Pour repérer ce changement 20 % de l'intensité du faisceau sonde sont à nouveau prélevés au moyen d'une lame semi-réfléchissante 80-20 et focalisés sur la photodiode D2 (*Newfocus 1811*). Ce balayage en fréquence est utilisé pour obtenir les spectres présentés au paragraphe 5.3.2.

La principale limitation de la puissance de la sonde est au niveau du MZ, qui ne supporte pas plus de 10 mW en entrée. En poussant le MZ dans ses retranchements, on a jusqu'à 1 mW en sortie répartis entre la pompe et les deux bandes latérales. Lorsque l'asservissement est en fonctionnement, nous mesurons 120 μW en sortie du Fabry Pérot. Après l'AO1, on retrouve 70 μW dans l'ordre 1 et après la lame semi-réfléchissante, nous disposons de 50 μW sur la voie sonde. La focalisation au niveau du cristal après une lentille L_5 de 250 mm est de 200 μm pour la sonde. Avec 50 μW de sonde ; une intensité maximale de 80 mW/cm² est disponible pour réaliser les expériences. Cette puissance est inférieure aux puissances utilisées dans les expériences préliminaires, mais permet d'observer la transparence induite électromagnétiquement, compte tenu du gain escompté au niveau de la pureté spectrale de l'excitation.

Pour accéder à des puissances sondes plus importante, une étape d'amplification optique après le MZ est envisageable. L'utilisation d'un laser bi-modal, du type de celui développé récemment dans les laboratoires de Thalès Research and Technology, est intéressante [124].

Après le cristal la sonde est détectée par la photodiode D4 (*Newfocus 1811*).

Pompe Comme pour la voie sonde, la voie pompe est constituée d'une densité optique variable composée d'une lame demi-onde et d'un cube polariseur. Un modulateur acousto-optique (AO2) est utilisé pour moduler en amplitude l'intensité de pompe. L'efficacité de diffraction dans l'ordre 1 est de 70%. La puissance de la pompe n'est limitée que par la puissance du laser qui délivre jusqu'à 150 mW, soit 123 mW après le coupleur. Les puissances utilisées sont de l'ordre de quelques mW seulement.

Sur les deux faisceaux, pompe et sonde, c'est l'ordre +1, décalé de 80 MHz pour les deux faisceaux, qui est utilisé. De cette manière la différence de fréquence entre pompe et sonde reste égale à ν_{RF} ⁴. Le faisceaux pompe est focalisé dans le cristal au moyen de la lentille L_5 comme la sonde. Les deux faisceaux pompe et sonde se croisent au niveaux de leur waist dans le cristal. Le waist de la pompe dans le cristal après L_5 ($f_5 = 250$ mm) est de 155 μm . Après le cristal le faisceau pompe est détectée par la photodiode D5 (*InGaAs*).

Les polarisations des deux faisceaux sont rectilignes et alignées au moyen de lames

⁴Le battement entre l'ordre 0 et l'ordre 1 a été ajusté à 80 MHz pour chacun des acousto-optiques à l'aide d'un analyseur de spectre RF (*HP-8563A*).

demi-onde sur l'axe D_2 du cristal pour lequel l'absorption est maximale. Les signaux des photodiodes D4 et D5 sont enregistrés par un oscilloscope numérique (*Lecroy WaveRunner 44X1*).

Remarques Nous avons travaillé sur plusieurs dispositifs, seul le dispositif permettant de faire des mesures concluantes est décrit ici. Afin d'épargner le temps précieux des futurs expérimentateurs, il faut noter que voici deux remarques :

- pour des intensités de sonde trop importantes, les spectres ont un profil nettement distordu. La sonde sature partiellement les systèmes avec lesquels elle interagit et lit ensuite cette saturation.
- la tension d'alimentation de la cale PZT du laser Kohéras présente parfois un bruit à 50 Hz (pour des raisons mystérieuses liées à la topologie des cables électriques dans le laboratoire) qui induit un bruit de fréquence du laser de l'ordre 2 MHz et qui est rédhibitoire pour toute expérience propre. Il vaut mieux dans ce cas ne pas utiliser la PZT du laser et se cantonner à utiliser l'accordabilité en température du laser, plus lente mais insensible au bruit électrique. L'utilisation d'une alimentation stabilisée ou l'asservissement de la fréquence laser devraient résoudre efficacement ce problème.

5.3.2 Résultats

Les résultats suivants ont été obtenus avec le dispositif expérimental qui vient d'être décrit. Ils concernent les anti-trous Λ_1 et Λ_2 . Les spectres de creusement spectral correspondants à ces deux configurations sont représentés sur les figures 5.15.a et 5.16.a.

Conditions et procédures expérimentales

Pour chacune de ces deux positions, la position du laser et de la bande latérale concernée dans le spectre est d'abord vérifiée en balayant la fréquence du laser. Sur la figure 5.13 le signal transmis par le Fabry Pérot ainsi que le spectre d'absorption de Er :YSO sont représentés. La comparaison entre le signal transmis par le Fabry Pérot détecté en D1 et le signal sonde en D3 permet de voir l'absorption de la porteuse, qui est à la fréquence de la pompe, et des bandes latérales. Le premier réglage est celui du laser, dont la fréquence est d'abord positionnée à l'endroit souhaité dans le spectre d'absorption, en G ou en A. Ensuite, la longueur de la cavité Fabry Pérot est ajustée de sorte que la fréquence transmise soit celle de la BL souhaitée. La boucle de l'asservissement est enfin fermée pour conserver ce réglage.

Lorsque la pompe est en G, la bande latérale à $\omega_P + \nu_{RF}$ est utilisée, alors que pour la configuration en Λ avec la pompe en A c'est la bande latérale à $\omega_P - \nu_{RF}$. Cela est conforme aux diagrammes d'énergie présentés sur les figures 5.15.a et 5.16.a.

Pour la démonstration de la transparence induite, la pompe (couplage) et la sonde sont appliquées au cristal selon la séquence schématisée sur la figure 5.14. Le faisceau pompe est modulé selon deux impulsions par le modulateur acousto-optique AO2 (voir figure 5.9). La première impulsion, appelée *pompe*, dure 10 ms est séparée de 28 ms de la

seconde impulsion, dite de *couplage*. Entre ces deux impulsions la fréquence du faisceau reste inchangée. Les 28 ms correspondent, d'après l'analyse de dynamique de creusement spectral, au temps où l'amplitude de l'anti-trou est maximale, c'est-à-dire la population dans l'état fondamental associé à l'anti-trou est maximale. Comme le faisceau de repompage des expériences préliminaires, l'application ou non de l'impulsion pompe modifie les populations des niveaux fondamentaux du système en Λ avant que les impulsions couplage et sonde ne soient appliquées.

L'impulsion de sonde dure $50 \mu\text{s}$. Elle est décalée de $70 \mu\text{s}$ par rapport au début de

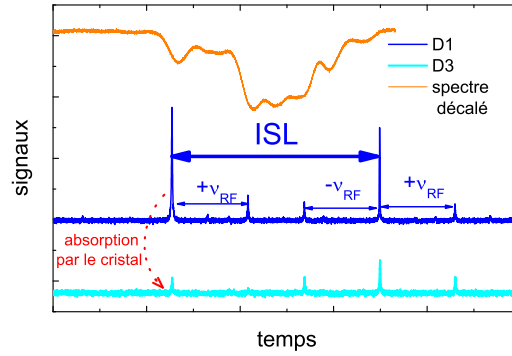


FIG. 5.13 – Signaux utilisés pour le réglage de la porteuse et de la bande latérale dans le spectre d'absorption avant asservissement. La comparaison des pics de Fabry Péroth avant (D1) et après le cristal (D3) permet de voir quelles sont les fréquences qui sont absorbées par le cristal et de placer ainsi dans le spectre d'absorption la porteuse et la bande latérale sur laquelle le Fabry Péroth doit être asservi.

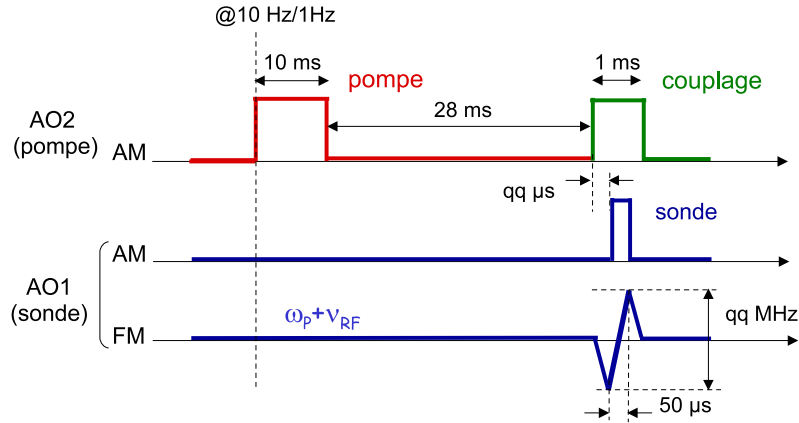


FIG. 5.14 – Séquence des impulsions utilisée lors des expériences de transparence induite. La fréquence du faisceau pompe reste inchangée entre les deux impulsions pompe et couplage.

l'impulsion couplage. Au cours de ces 50 μ s, la fréquence de la sonde est balayée de quelques MHz à l'aide de l'AO1 autour de la résonance à 2 photons (Raman). Ce balayage autour de l'anti-trou permet de tracer les spectres des figures 5.15.b, 5.16.b et 5.16.c ⁵.

Spectres

Les figures 5.15.b et 5.16.b représentent les spectres mesurés autour de $\nu_{RF} = 880$ MHz et $\nu_{RF} = 740$ MHz respectivement. Dans ces expériences le taux de répétition est de 10 Hz, et les spectres sont moyennés sur 30 acquisitions. Dans chacun de ces spectres le profil de l'anti-trou, tracé en noir, est obtenu en appliquant l'impulsion pompe puis l'impulsion sonde sans impulsion couplage. On vérifie ainsi qu'il y a un décalage entre les deux faisceaux est le bon. Pour exciter la cohérence Raman du système en Λ , les deux faisceaux sont appliqués en même temps (impulsions couplage et sonde). Les spectres obtenus ainsi sont tracés en bleu sur les figures 5.15.b et 5.16.b. Un pic de transparence apparaît à la fréquence du maximum de l'anti-trou.

Lorsque l'impulsion pompe n'est pas appliquée, la transparence est toujours présente, sur le fond d'un anti-trou de faible amplitude. Cet anti-trou est dû au taux de répétition de 10 Hz (période 100 ms) trop rapide par rapport au temps de relaxation des populations dans le multiplet hyperfin fondamental ($T_1^f = 187$ ms). La redistribution des populations due au creusement spectral s'accumule dans le temps. Les résultats obtenus avec un taux de répétition de 1 Hz pour l'anti-trou à 740 MHz sont tracés sur la figure 5.16.c. Lorsque les impulsions couplage et sonde sont seules présentes, la transparence apparaît sur un fond proche de l'absorption linéaire. On observe tout de même du creusement spectral, probablement dû à la présence des deux faisceaux couplage et sonde (et pas au taux de répétition) et un effet incohérent sur les populations qui se superpose à l'effet cohérent de transparence induite.

Le tableau 5.3 précise les largeurs spectrales $\delta\nu_1$ et $\delta\nu_2$ ainsi que les amplitudes H_1 et H_2 indiquées sur les figures 5.15.b, 5.16.b et 5.16.c. $\delta\nu_1$ est la largeur de l'anti-trou obtenu avec la pompe. $\delta\nu_2$ est la largeur de la transparence qui est la même avec ou sans pompe. H_1 et H_2 sont les amplitudes de la transparence avec et sans pompe respectivement, exprimées en pourcentage de l'amplitude de l'anti-trou. Afin de prendre en compte les résidus de creusement spectral dans les expériences à 10 Hz, un ajustement gaussien de l'anti-trou a été fait.

Discussion

Les résultats présentés ici sont les premiers résultats exploitables obtenus avec le nouveau dispositif expérimental. Ils confirment les expériences préliminaires : un pic de transparence apparaît sous certaines conditions au milieu des deux anti-trous à 880 MHz pompe en G, et à 740 MHz, pompe en A.

⁵L'étalonnage en fréquence de ce balayage est réalisé en changeant la fréquence de la bande latérale ν_{RF} de 2 MHz -changement assez faible pour ne pas perturber l'asservissement- et en relevant le déplacement obtenu sur le spectre mesuré.

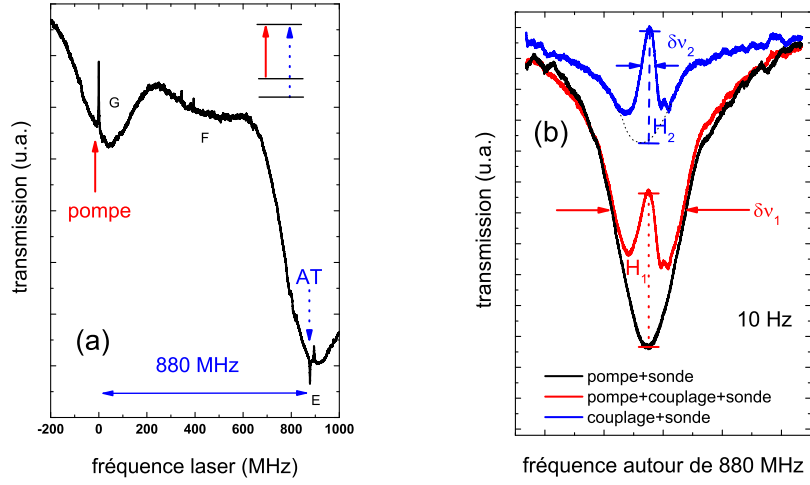


FIG. 5.15 – (a) Spectre de creusement spectral pour une pompe en G, AT : Anti-trou à 880 MHz. insert schéma de niveaux incluant les transitions correspondant à la pompe et l'anti-trou. (b) Spectre autour de l'anti-trou à 880 MHz selon les différentes impulsions appliquées au système avec un taux de répétition de 10 Hz.

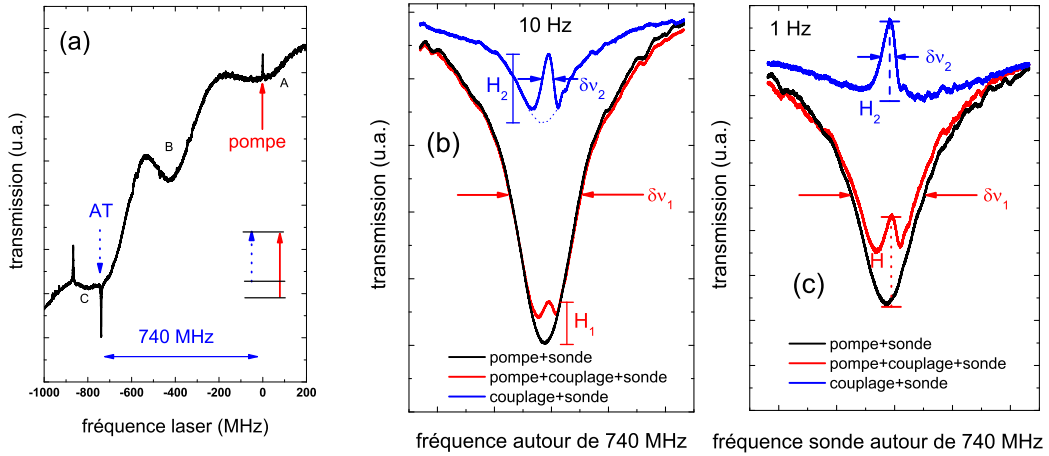


FIG. 5.16 – (a) Spectre de creusement spectral pour une pompe en A, AT : Anti-trou à 740 MHz. insert schéma de niveaux incluant les transitions correspondant à la pompe et l'anti-trou. (b)(c) Spectres autour de l'anti-trou à 740 MHz selon les différentes impulsions appliquées au système avec un taux de répétition de 10 Hz (b) et 1 Hz (c).

AT à	taux de répétition	largeur AT $\delta\nu_1$	largeur EIT $\delta\nu_2$	amplitude EIT *	
				H ₁ avec pompe	H ₂ sans pompe
880MHz	10Hz	2.8MHz	0.5MHz	55%	38%
740MHz	10Hz	2.8MHz	0.6MHz	14%	30%
740MHz	1Hz	2.7MHz	0.4MHz	38%	36%

TAB. 5.3 – Résultats de transparence induite pour différentes configurations expérimentales. $\delta\nu_1$ $\delta\nu_2$ largeurs spectrales de l’anti-trou et de la transparence sans pompe. * L’amplitude de la transparence est indiquée en pourcentage de l’amplitude de l’anti-trou pour les deux configurations avec et sans pompe ; H₁ et H₂ sur les figures 5.15.b, 5.16.b et 5.16.c.

Par rapport aux expériences préliminaires, la largeur spectrale de la transparence a été réduite d’un facteur 3 environ. Elle est de 0.41 MHz dans l’expérience à 1 Hz. Par ailleurs elle est la même que l’impulsion pompe soit appliquée ou non. Cette relative finesse confirme que cette transparence est due à l’excitation de la cohérence Raman et qu’il s’agit bien de transparence induite électromagnétiquement. Entre les expériences à 10 Hz et à 1 Hz, les deux largeurs $\delta\nu_1$ et $\delta\nu_2$ de l’anti-trou et de la transparence induite sont réduites de 2.79 MHz à 2.67 MHz (soit 4%) et 580 kHz à 410 kHz (soit 29%) respectivement. Il semble donc possible d’améliorer encore la finesse de la transparence en jouant sur les conditions expérimentales. L’effet de mémoire des populations / saturation a par exemple été limité en laissant le système revenir à son état initial avec un taux de répétition de 1 Hz.

Par rapport aux expériences préliminaires nous n’avons pas retrouvé de transparence dont l’amplitude était 3 fois celle de l’anti-trou. Les transparences obtenues ont au mieux un amplitude moitié de celle de l’anti-trou (à 880 MHz et 10 Hz). Il semble cependant que toute la puissance disponible n’a pas été utilisée⁶. Le comportement de l’amplitude de la transparence vis-à-vis de la présence de l’impulsion de pompe n’est pas clair. Dans l’expérience à 10 Hz autour de l’anti-trou à 740 MHz, la transparence est deux fois plus importante sans pompe alors que dans les deux autres études elle est du même ordre. Des expériences supplémentaires sont nécessaires, notamment une étude de H₁ en fonction du délai pompe-sonde. pour déterminer le rôle de la pompe et de la densité de population du niveaux fondamental sondé.

Enfin l’amplitude de la transparence obtenue à 740 MHz est notablement améliorée par la réduction du taux de répétition lorsque la pompe est appliquée : elle passe de 14% à 38%. On peut considérer qu’à 1 Hz les populations du système en Λ sont relaxées alors qu’elles ne le sont pas à 10 Hz. L’effet d’accumulation sur les populations semble réduire les cohérences Raman. Parallèlement lorsque la pompe n’est pas appliquée et que seules les impulsions sonde et couplage induisent la transparence, la réduction du taux de répétition a un effet moins important : la transparence passe de 30% à 36% de l’amplitude de l’anti-trou.

⁶Des expériences pour caractériser les puissances utilisées sont en cours.

Conclusions

Ces premiers résultats sont encourageants. Nous avons pu observer la transparence induite électromagnétiquement dans deux configurations en Λ , dans le même cristal d' $^{167}\text{Er}^{3+} : \text{Y}_2\text{SiO}_5$. On voit ici l'intérêt que peut représenter un système aussi complexe, avec une riche structure hyperfine : plusieurs systèmes en Λ sont exploitables autour de 1536 nm. Avec un taux de répétition de 1 Hz, le pic de transparence induite dans la configuration Λ_2 , a une largeur de 410 kHz et une amplitude de 38% celle de l'anti-trou dans lequel elle apparaît. Cependant quelques questions importantes demeurent :

- Si la largeur de la transparence a été réduite par l'utilisation d'une seule source au lieu de deux sources non asservies, l'amplitude de la transparence a également diminuée en utilisant une sonde et un couplage cohérents. D'autres paramètres expérimentaux peuvent être invoqués comme le recouvrement spatial des faisceaux ainsi que l'angle qu'ils forment.
- L'influence du pompage et du creusement spectral est mal comprise.

Pour préciser les phénomènes relevant des populations et de l'excitation de la cohérence Raman, des simulations numériques ont été faites et sont exposées dans le paragraphe suivant.

5.4 Modélisation et simulations numériques

Dans le modèle présenté en introduction (paragraphe 5.1.2), aucun élargissement inhomogène n'est pas pris en compte. Dans le cas d' $^{167}\text{Er}^{3+} : \text{Y}_2\text{SiO}_5$ nous avons à la fois un élargissement inhomogène de la transition optique et un élargissement inhomogène de la transition RF entre niveaux hyperfins. Ceci doit jouer un rôle sur les propriétés de l'EIT, puisque nous observons expérimentalement à la fois la transparence induite et du creusement spectral. A notre connaissance seul un article adresse les effets de ce double élargissement inhomogène de manière analytique [125]. Pour nos conditions expérimentales, les résultats ne correspondent pas à ce que nous avons pu observer. Sous l'impulsion de Stéphan Briaudeau, nous avons donc repris la modélisation pour introduire ce double élargissement inhomogène, ainsi que les effets de pompage optique et de creusement spectral associé.

5.4.1 Élargissement inhomogène

Comme nous l'avons dit deux élargissements inhomogènes sont à prendre en compte : celui de la transition optique, de largeur γ_{opt}^{inh} et celui de la transition hyperfine RF, de largeur γ_{RF}^{inh} . L'élargissement optique est pris en compte dans l'expression de la cohérence σ_{13} en remplaçant le désaccord à un photon δ_1 par $\delta_1 + \delta_{opt}$. L'élargissement RF intervient quant à lui sur le désaccord à deux photons $\delta_1 - \delta_2$, remplacé par $\delta_1 - \delta_2 + \delta_{RF}$. La cohérence optique σ_{13} est ainsi moyennée deux fois :

$$\langle \sigma_{13} \rangle = \frac{\int \int \sigma_{13} W(\delta_{opt}) W(\delta_{RF}) d\delta_{opt} d\delta_{RF}}{\int \int W(\delta_{opt}) W(\delta_{RF}) d\delta_{opt} d\delta_{RF}}, \quad (5.17)$$

Dans cette expression, les distributions de fréquence de la résonance optique $W(\delta_{opt})$ et RF $W(\delta_{RF})$ ont des largeurs notées γ_{opt}^{inh} et γ_{RF}^{inh} respectivement. Elles peuvent être lorentziennes pour simplifier le calcul analytique ou gaussiennes dans les calculs numériques :

$$W(\delta_{opt}) = \frac{1}{\delta_{opt}^2 + (\gamma_{opt}^{inh})^2} \text{ et } W(\delta_{RF}) = \frac{1}{\delta_{RF}^2 + (\gamma_{RF}^{inh})^2} \quad (5.18)$$

$$W(\delta_{opt}) = \exp -(\delta_{opt}/\gamma_{opt}^{inh})^2 \text{ et } W(\delta_{RF}) = \exp -(\delta_{RF}/\gamma_{RF}^{inh})^2 \quad (5.19)$$

Pour obtenir une expression analytique, reprenons l'expression de la cohérence σ_{13} obtenue pour une sonde faible et un pompage optique négligé éq. (5.9). Avec les hypothèses précédentes, elle s'écrit

$$\sigma_{13} = -\frac{i\Omega_1}{2} \frac{\gamma_{12} + i(\delta_2 - \delta_1 + \delta_{RF})}{(\gamma_{12} + i(\delta_2 - \delta_1 + \delta_{RF}))(\gamma_{13} + i(\delta_1 + \delta_{opt})) + \Omega_2^2/4} \quad (5.20)$$

L'intégration de (5.20) se fait tout d'abord sur δ_{opt} puis sur δ_{RF} , et donne le résultat suivant [126].

$$\langle \sigma_{13} \rangle = -\frac{i\Omega_1}{2} \frac{1}{2\gamma_{RF}^{inh}} \frac{1}{2\gamma_{opt}^{inh}} \frac{\gamma_{12} + \gamma_{RF}^{inh} + i(\delta_2 - \delta_1)}{(\gamma_{12} + \gamma_{RF}^{inh} + i(\delta_2 - \delta_1))(\gamma_{13} + \gamma_{opt}^{inh} + i\delta_1) + \Omega_2^2/4} \quad (5.21)$$

L'expression obtenue de la cohérence moyennée sur les élargissements inhomogènes $\langle \sigma_{13} \rangle$ se déduit simplement de l'expression homogène éq (5.9) en remplaçant les taux de décohérence RF γ_{12} et optique γ_{13} par $\gamma_{12} + \gamma_{RF}^{inh}$ et $\gamma_{13} + \gamma_{opt}^{inh}$ respectivement. L'équation (5.21) permet de déduire les propriétés de la transparence induite avec élargissement inhomogène

La forme de raie est la même que pour l'élargissement homogène mis à part que les échelles fréquentielles qui la gouvernent sont changées. Lorsque les élargissements inhomogènes sont supérieurs aux largeurs homogènes, $\gamma_{12} \ll \gamma_{RF}^{inh}$ et $\gamma_{13} \ll \gamma_{opt}^{inh}$, ce sont eux qui dominent les largeurs des structures spectrales observées. Ce résultat, évident pour le profil d'absorption optique, se transpose pour la largeur de la transparence qui est gouvernée par $\gamma_{12} + \gamma_{RF}^{inh}$. Lorsque l'élargissement inhomogène RF est nettement supérieur au temps de décohérence c'est donc lui qui est la limite inférieure de la largeur de la transparence.

Plaçons nous dans le cas où les élargissements inhomogènes prédominent $\gamma_{12} \ll \gamma_{RF}^{inh}$ et $\gamma_{13} \ll \gamma_{opt}^{inh}$. Lorsque les deux champs sont résonants ($\delta_1 = \delta_2 = 0$), la cohérence optique en régime linéaire est

$$\langle \sigma_{13}^{lin} \rangle = \frac{-i\Omega_1}{2\gamma_{opt}^{inh}}$$

et la cohérence résiduelle en régime de transparence induite

$$\langle \sigma_{13}^{eit} \rangle = \frac{1}{1 + \frac{\Omega_2^2}{4\gamma_{opt}^{inh}\gamma_{RF}^{inh}}} \langle \sigma_{13}^{lin} \rangle.$$

Un élargissement inhomogène important, tel que $(\Omega_2/2)^2 \ll \gamma_{opt}^{inh} \gamma_{RF}^{inh}$, détruit toute transparence, $\langle \sigma_{13}^{eit} \rangle = \sigma_{13}^{lin}$ (pour $\delta_1 = \delta_2 = 0$). A l'inverse pour un faisceau de couplage très intense $(\Omega_2/2)^2 \gg \gamma_{opt}^{inh} \gamma_{RF}^{inh}$, on retrouve

$$\langle \sigma_{13}^{eit} \rangle = \frac{4\gamma_{opt}^{inh} \gamma_{RF}^{inh}}{\Omega_2^2} \langle \sigma_{13}^{lin} \rangle.$$

En augmentant la puissance du champ E_2 de telle façon que $(\Omega_2/2)^2 \gg \gamma_{opt}^{inh} \gamma_{RF}^{inh}$, la transparence est toujours possible. Cependant dans de telles conditions les hypothèses négligeant le pompage optique ne sont plus valides.

5.4.2 Pompage optique seul

Pour prendre en compte le régime de pompage optique en régime stationnaire, les termes de cohérence Raman sont négligés dans un premier temps. Les équations de la matrice densité (5.6) deviennent :

$$\begin{aligned} 1 &= \sigma_{11} + \sigma_{22} + \sigma_{33} \\ 0 &= -\Omega_1 \text{Im}(\sigma_{13}) + \gamma_{31}^{sp} \sigma_{33} - \gamma_{12}^{sp} (\sigma_{11} - \sigma_{22}) \\ 0 &= -\Omega_2 \text{Im}(\sigma_{23}) + \gamma_{32}^{sp} \sigma_{33} + \gamma_{12}^{sp} (\sigma_{11} - \sigma_{22}) \\ \sigma_{13} &= -i \frac{\Omega_1}{2\mathcal{D}_{13}} (\sigma_{33} - \sigma_{11}) \\ \sigma_{23} &= -i \frac{\Omega_2}{2\mathcal{D}_{23}} (\sigma_{33} - \sigma_{22}) \end{aligned} \tag{5.22}$$

On définit les paramètres

$$S_1 = \Omega_1^2/2|\mathcal{D}_{13}|^2 \text{ et } S_2 = \Omega_2^2/2|\mathcal{D}_{23}|^2,$$

de telle manière que

$$\Omega_1 \text{Im}\sigma_{13} = S_1 \gamma_{13} (\sigma_{11} - \sigma_{33}) \text{ et } \Omega_2 \text{Im}\sigma_{23} = S_2 \gamma_{23} (\sigma_{22} - \sigma_{33}).$$

La résolution du système (5.22) donne les différences de population en régime stationnaire qui permettent de calculer la cohérence optique σ_{13} :

$$\sigma_{11} - \sigma_{33} = \frac{S_2 \gamma_{23} \gamma_{32}^{sp} + \gamma_{12}^{sp} (\gamma_{31}^{sp} + \gamma_{32}^{sp})}{S_2 \gamma_{23} (\gamma_{31}^{sp} + 3\gamma_{12}^{sp}) + S_1 \gamma_{13} (\gamma_{32}^{sp} + 3\gamma_{12}^{sp}) + 3S_1 S_2 \gamma_{13} \gamma_{23} + 2\gamma_{12}^{sp} (\gamma_{31}^{sp} + \gamma_{32}^{sp})} \tag{5.23}$$

On supposera par la suite que les taux de décroissance des populations depuis le niveau excité $|3\rangle$ sont les mêmes vers le niveau $|1\rangle$ et le niveau $|2\rangle$: $\gamma_{31}^{sp} = \gamma_{32}^{sp}$, de même que les taux de décohérence optique $\gamma_{13} = \gamma_{23}$. L'expression éq.(5.23) dépend à travers les paramètres S_1 et S_2 des pulsations de Rabi des deux champs excitateurs ainsi que des désaccords à la résonance δ_1 et δ_2 .

Pour prendre en compte l'élargissement inhomogène optique, il suffit de remplacer δ_1 par $\delta_1 + \delta_{opt}$ et δ_2 par $\delta_2 + \Delta + \delta_{opt}$ et de faire une intégration sur δ_{opt} . Δ rend compte de la

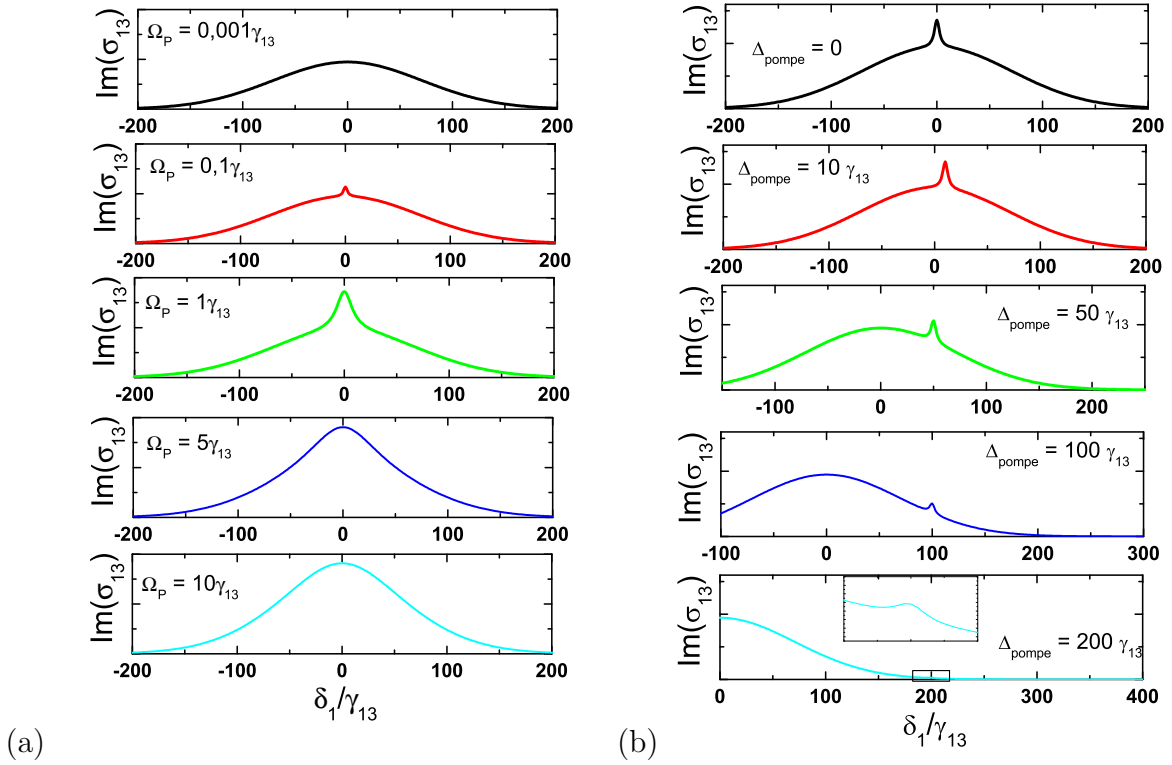


FIG. 5.17 – Absorption du faisceau sonde en fonction du désaccord δ_1/γ_{13} simulé en négligeant la cohérence Raman, et en prenant en compte le pompage optique pour différentes puissances du faisceau de couplage (a) et différents désaccords Δ de la pompe par rapport au profil d'absorption inhomogène (b).

position du champ de pompe/couplage E_2 par rapport au maximum du profil d'absorption inhomogène. L'expression de l'absorption de la sonde est de la forme

$$\langle \text{Im}(\sigma_{13}) \rangle / \Omega_1 = \frac{\int \frac{\gamma_{13}}{2|\mathcal{D}_{13}|^2} (\sigma_{11} - \sigma_{33}) W(\delta_{\text{opt}}) d\delta_{\text{opt}}}{\int W(\delta_{\text{opt}}) d\delta_{\text{opt}}}. \quad (5.24)$$

La figure 5.17 représente le résultat du calcul numérique de cette absorption pour différentes valeurs de la pulsation de Rabi du champ E_2 et différents décalages Δ de ce champ dans la largeur inhomogène. L'absorption de la sonde est augmentée par la présence du champ pompe, ce qui décrit bien un anti-trou dans le cadre du creusement spectral. Pour des saturations importantes $\Omega_2 > 5\gamma_{13}$, l'anti-trou devient plus large que l'élargissement inhomogène et ne se distingue plus.

5.4.3 Pompage optique et cohérence Raman

Pour simuler les spectres se rapprochant des conditions expérimentales, il nous faut à la fois considérer le pompage optique et les termes de cohérence Raman. Les deux dernières équations du système (5.22) donnant les cohérences optiques en régime stationnaire sans cohérence Raman doivent être remplacées par les expressions de l'équation (5.8).

Pour faire apparaître la transparence induite le faisceau de couplage/pompe est supposé être plus intense que le faisceau sonde : $\Omega_1 \ll \Omega_2$. Sous cette hypothèse les cohérences ci-dessus se simplifient

$$\begin{aligned}\sigma_{13} &= -i \frac{\Omega_1}{2} \frac{\mathcal{D}_{12}}{\mathcal{D}_{12}\mathcal{D}_{13}^* + \Omega_2^2/4} (\sigma_{11} - \sigma_{33}) \\ \sigma_{23} &= -i \frac{\Omega_2}{2\mathcal{D}_{23}} (\sigma_{33} - \sigma_{22})\end{aligned}\tag{5.25}$$

Ces expressions permettent de définir deux nouveaux paramètres de saturation S'_1 et S'_2 tels que

$$\Omega_1 \text{Im}\sigma_{13} = S'_1 \gamma_{13} (\sigma_{33} - \sigma_{11}) \text{ et } \Omega_2 \text{Im}\sigma_{23} = S'_2 \gamma_{23} (\sigma_{33} - \sigma_{22}).$$

On a donc

$$S'_1 = \frac{\Omega_1^2}{4\gamma_{31}} \frac{\mathcal{D}_{12}(\mathcal{D}_{12}^*\mathcal{D}_{13} + \Omega_2^2/4)}{|\mathcal{D}_{12}\mathcal{D}_{13}^* + \Omega_2^2/4|^2} + cc$$

et

$$S'_2 = S_2 = \Omega_2^2/2|\mathcal{D}_{23}|^2.$$

L'expression de la cohérence optique σ_{13} est la même que précédemment, en remplaçant S_1 par S'_1 .

$$\sigma_{13} = -i \frac{\Omega_1}{2} \frac{\mathcal{D}_{12}}{\mathcal{D}_{12}\mathcal{D}_{13}^* + \Omega_2^2/4} \frac{\gamma_{31}^{sp}(S_2\gamma_{23} + 2\gamma_{12}^{sp})}{(S_2\gamma_{23} + S'_1\gamma_{13})(\gamma_{31}^{sp} + 3\gamma_{12}^{sp}) + 3S'_1S_2\gamma_{13}\gamma_{23} + 4\gamma_{12}^{sp}\gamma_{31}^{sp}}\tag{5.26}$$

Il faut maintenant intégrer sur les deux élargissements inhomogènes éq.(5.17). Comme précédemment, l'élargissement optique est pris en compte en remplaçant les désaccords à un photon δ_1 par $\delta_1 + \delta_{opt}$, δ_2 par $\delta_2 + \delta_{opt}$ et l'élargissement RF en remplaçant le désaccord à deux photons $\delta_1 - \delta_2$ par $\delta_1 - \delta_2 + \delta_{RF}$. Compte tenu de l'échantillonnage requis pour avoir assez de précision sur les δ_{opt} et δ_{RF} et de la grande plage d'intégration le calcul numérique de la double intégration est très long et imprécis. On peut procéder à l'intégration analytique de l'élargissement inhomogène RF pour faciliter le calcul. En supposant que l'élargissement inhomogène n'affecte pas le profil d'absorption inhomogène optique, il est possible de considérer que les effets de l'élargissement inhomogène RF sur les cohérences et sur les populations sont indépendants. La moyenne du produit est alors égale au produit des moyennes. L'expression de la cohérence moyennée sur l'élargissement

inhomogène RF, supposé lorentzien, est [126] :

$$\begin{aligned} \langle \sigma_{13} \rangle_{RF} = & -i \frac{\Omega_1}{2} \frac{\mathcal{D}'_{12}}{\mathcal{D}'_{12} \mathcal{D}_{13}^* + \Omega_2^2/4} \\ & \times \frac{\gamma_{31}^{sp}(S_2 \gamma_{23} + 2\gamma_{12}^{sp})}{(S_2 \gamma_{23} + \langle S'_1 \rangle_{RF} \gamma_{13})(\gamma_{31}^{sp} + 3\gamma_{12}^{sp}) + 3\langle S'_1 \rangle_{RF} S_2 \gamma_{13} \gamma_{23} + 4\gamma_{12}^{sp} \gamma_{31}^{sp}} \end{aligned} \quad (5.27)$$

avec $\mathcal{D}'_{12} = \gamma_{RF}^{inh} + i(\delta_{13} - \delta_{23})$ et $\langle S'_1 \rangle_{RF} = \frac{\Omega_1^2}{4\gamma_{31}} \frac{\mathcal{D}'_{12}(\mathcal{D}_{12}' \mathcal{D}_{13} + \Omega_2^2/4)}{|\mathcal{D}'_{12} \mathcal{D}_{13}^* + \Omega_2^2/4|^2} + cc$ ⁷

L'intégration sur l'élargissement inhomogène optique $d\delta_{opt}$ qui apparaît dans les coefficients $\mathcal{D}_{13}$ et $\mathcal{D}_{23}$.

$$\begin{aligned} \mathcal{D}_{13} &= \gamma_{13} + i(\delta_1 + \delta_{opt}), \\ \mathcal{D}_{23} &= \gamma_{23} + i(\delta_2 + \delta_{opt}). \end{aligned}$$

est faite numériquement, en utilisant un élargissement optique de profil gaussien $W(\delta_{opt}) = e^{-(\delta_{opt}/\gamma_{opt}^{inh})^2}$

$$\langle \sigma_{13} \rangle = \frac{\int \langle \sigma_{13} \rangle_{RF} W(\delta_{opt}) d\delta_{opt}}{\int W(\delta_{opt}) d\delta_{opt}}. \quad (5.28)$$

Les profils d'absorption présentés dans le paragraphe suivant sont la partie imaginaire $Im(\langle \sigma_{13} \rangle)/\Omega_1$ de cette quantité moyennée analytiquement sur l'élargissement inhomogène RF et numériquement sur l'élargissement inhomogène optique.

5.4.4 Résultats de simulations

Avec le modèle présenté dans le paragraphe précédent, il est possible de simuler des spectres pour des paramètres proches des conditions expérimentales. Le tableau 5.4 reprend les paramètres du calcul, les valeurs expérimentales et les valeurs utilisées dans la simulation. Compte tenu des 9 ordres de grandeur entre l'élargissement inhomogène optique γ_{opt}^{inh} et le taux de relaxation des populations des niveaux fondamentaux γ_{12}^{sp} , les valeurs expérimentales rendent le calcul numérique délicat. Dans les simulations nous avons fait en sorte de respecter l'ordre des différents paramètres, mais réduit les écarts en fréquence à 5 ordres de grandeur. Les deux inconnues sont le taux de décohérence Raman γ_{21} et l'élargissement inhomogène RF γ_{RF}^{inh} . Nous avons vu que la plus grande de ses deux valeurs influe sur la largeur de la transparence. La largeur de la transparence obtenue expérimentalement, de l'ordre de 15% de la largeur de l'anti-trou, nous permet d'ajuster ces paramètres.

Puissance du couplage Ω_2

La figure 5.18 représente une série de spectres d'absorption de la sonde ($Im\sigma_{31}$) en fonction du désaccord δ_1/γ_{13} pour différentes pulsations de Rabi de pompe $\Omega_2 = 0.1, 1, 10, 100 \times$

⁷L'élargissement inhomogène RF n'intervient pas dans le coefficient de saturation du faisceau pompe $S_2 = S'_2$ qui ne dépend que du désaccord à la résonance optique.

	Paramètres expérimentaux		Paramètres simulation
	(Hz)	(unité γ_{31})	(unité γ_{31})
γ_{31}	$1/\pi T_2 = 100$ kHz	1	1
γ_{31}^{sp}	$1/2\pi T_1 = 16$ Hz	0.00016	0.05
γ_{21}	inconnu ($\gamma_{21}^{sp} < \gamma_{21} < \gamma_{31}$)	$8.10^{-6} < \gamma_{21} < 1$	0.02
γ_{12}^{sp}	$1/2\pi T_1 = 0.8$ Hz	8.10^{-6}	0.002
γ_{opt}^{inh}	~ 100 MHz	1000	100
γ_{RF}^{inh}	inconnu ($\gamma_{21} < \gamma_{RF}^{inh} < \gamma_{31}$)	$8.10^{-6} < \gamma_{RF}^{inh} < 1$	0.1

TAB. 5.4 – Paramètres du système et paramètres utilisés dans la simulation.

γ_{13} . La pulsation de la Rabi du sonde étant de $\Omega_1 = 0.001\gamma_{13}$, négligeable devant $\Omega_2 = 0.1\gamma_{13}$. Les figures (a) sont les résultats sur l'échelle fréquentielle de la largeur homogène optique et les figures (b) leur agrandissement autour de la position de la pompe (ici $\Delta=0$) sur une échelle de quelques γ_{13} .

Pour $\Omega_2 = 0.1\gamma_{13}$ et $\Omega_2 = 1\gamma_{13}$, l'anti-trou dû au pompage optique se discerne nettement sur les figures 5.18.a. Sur les figures 5.18.b, une très petite transparence (de largeur $\sim 0.2\gamma_{13}$) se dessine à l'intérieur de l'anti-trou dont la largeur est $2\gamma_{13}$. L'amplitude de cette transparence croît en augmentant la saturation en même temps que l'amplitude de l'anti-trou.

Pour $\Omega_2 = 10\gamma_{13}$ ($> \sqrt{\gamma_{inh}^{RF}\gamma_{inh}^{opt}}$), la transparence induite a pris le dessus sur le pompage optique, l'anti-trou s'élargissant plus rapidement que la fenêtre de transparence. Il semble donc possible d'obtenir une transparence complète pour une puissance de pompe suffisante. Pour $\Omega_2 = 100\gamma_{13}$ ($\sim \gamma_{inh}^{opt}$), on observe même un dédoublement de la largeur inhomogène et la transparence est totale sur une large gamme spectrale.

Les spectres simulés ressemblant aux spectres expérimentaux correspondent à des puissances de pompe telles que $\Omega_2 \sim \gamma_{31}$. L'évolution de l'amplitude de la transparence avec la puissance de pompe observée dans les expériences préliminaires se retrouve. D'après ces simulations pour obtenir la transparence complète en présence d'un élargissement inhomogène et de creusement spectral, il suffit d'augmenter l'intensité du faisceau pompe au delà de $\sqrt{\gamma_{inh}^{RF}\gamma_{inh}^{opt}}$.

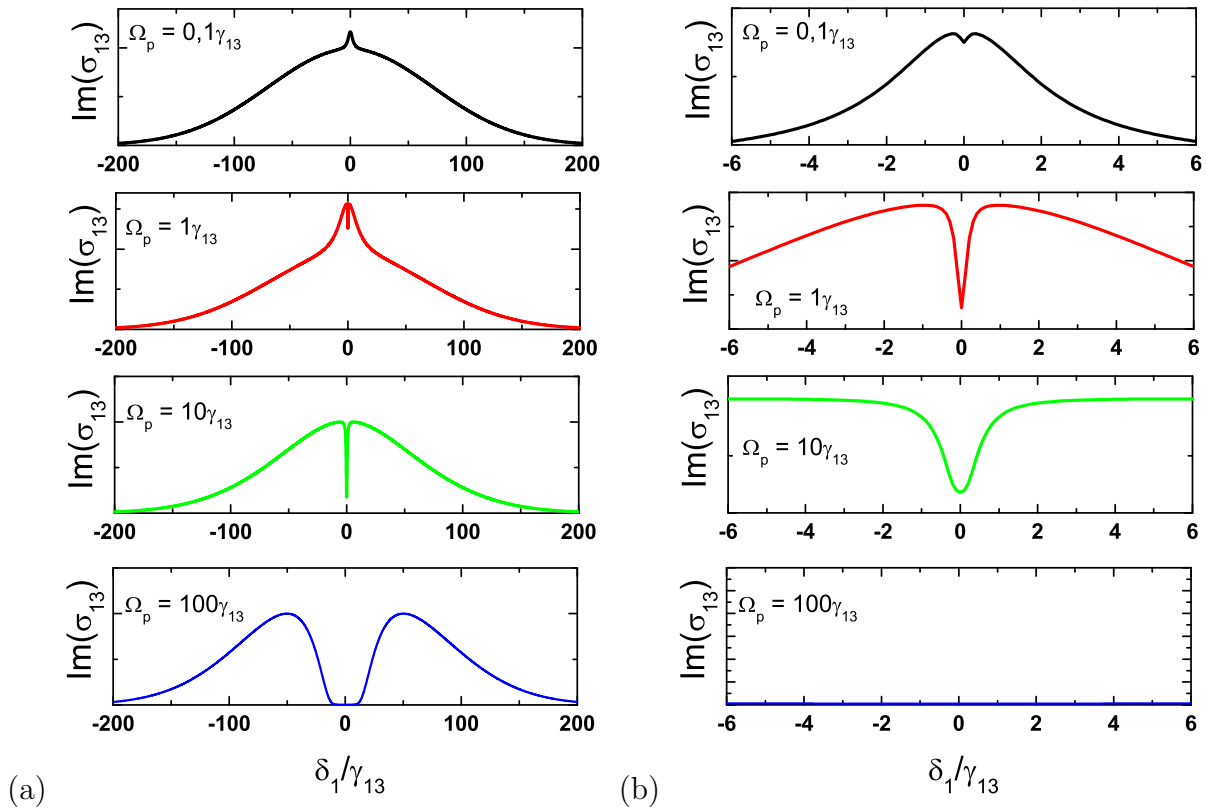


FIG. 5.18 – Spectres d’absorption en fonction de la fréquence sonde rapportée à la largeur homogène optique simulés avec les paramètres du tableau 5.4 pour différentes pulsations de Rabi du couplage (a) spectre à l’échelle de l’élargissement inhomogène, (b) agrandissement à l’échelle de quelques γ_{13} .

Désaccord à la résonance Δ

La figure 5.19 représente une série de spectre d’absorption de la sonde ($\text{Im}\sigma_{31}/\Omega_1$) en fonction du désaccord δ_1/γ_{13} pour différents désaccords du pompe par rapport au maximum de l’élargissement inhomogène $\Delta = 0, 10, 50, 100, 200 \times \gamma_{13}$. Les spectres simulés de la figure 5.19.a correspondent à une pulsation de Rabi du pompe de $\Omega_2 = 0.2\gamma_{13}$, pour laquelle une fine transparence est observée à résonance, alors que les spectres de la figure 5.19.b correspondent à une pulsation de Rabi $\Omega_2 = 10\gamma_{13}$. La pulsation de Rabi du faisceau sonde est de $\Omega_1 = 0.01\gamma_{13}$.

Pour un faisceau couplage/pompe de faible intensité (figure 5.19.a), la transparence induite apparaît toujours au milieu de l’anti-trou issu du pompage optique. Son amplitude est proportionnelle à l’amplitude de l’anti-trou quelle que soit le désaccord Δ . Le pompage optique sélectionne une classe d’atomes et la transparence est efficace pour cette classe seulement.

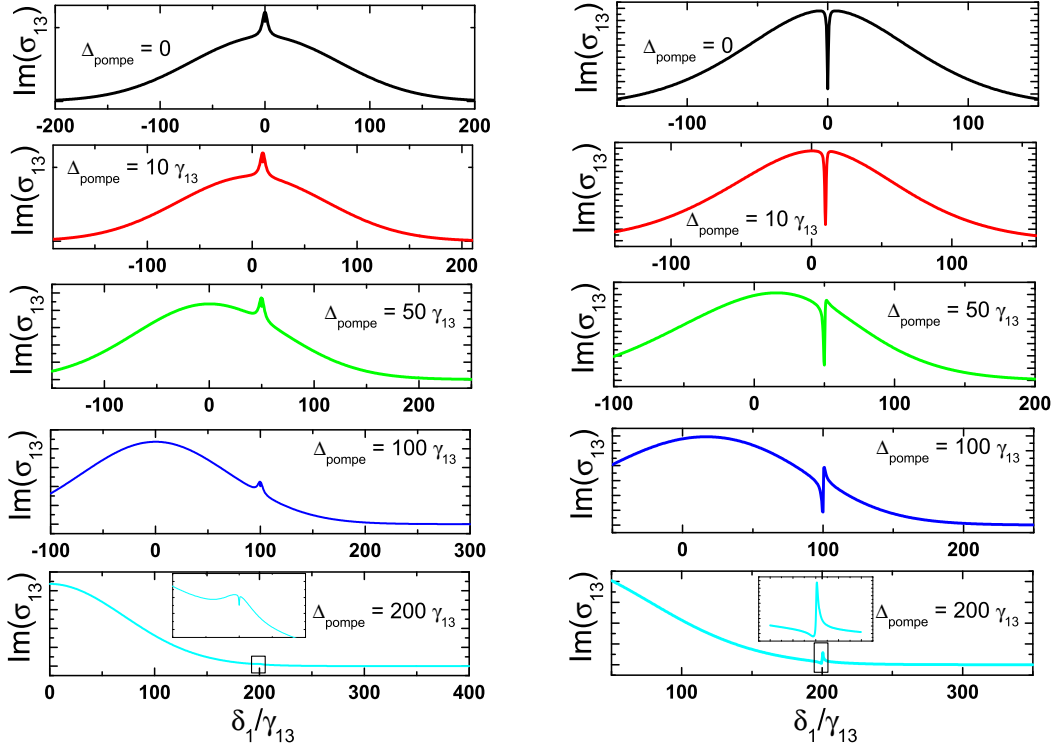


FIG. 5.19 – Spectres simulés avec les paramètres du tableau 5.4 pour différents désaccords Δ du faisceau pompe/couplage rapporté au maximum de l'absorption. (a) spectres obtenus pour $\Omega_2 = 0.2\gamma_{13}$. (b) Spectres obtenus pour $\Omega_2 = 10\gamma_{13}$.

Lorsque le faisceau de couplage/pompe est plus intense, l'effet de transparence dû à la cohérence Raman domine l'effet de pompage optique. Le profil de l'anti-trou disparaît. Pour $\Delta > 100\gamma_{13}$ (i.e. $\Delta > \gamma_{opt}^{inh}$), le profil de la transparence induite est dispersif. Au delà de $\Delta > 200\gamma_{13}$, l'effet est inversé, on a une absorption induite. Cela confirme que la structure spectrale observée est bien due à la cohérence Raman et non aux populations qui induisent toujours une augmentation de l'absorption sous la forme d'un anti-trou.

On vérifie ici par le calcul que le désaccord de la pompe n'empêche par l'observation de la transparence induite. Suivant l'intensité du faisceau de couplage/pompe, la transparence prend un profil dispersif lorsqu'on s'éloigne du maximum de l'absorption.

Influence de γ_{12}

Comme on l'a vu par le calcul analytique de σ_{13} avec élargissement inhomogène, la largeur minimale de la résonance est imposée par la plus grande des quantités entre γ_{12} , le temps de déphasage de la cohérence Raman, et γ_{RF}^{inh} la largeur inhomogène de la transition

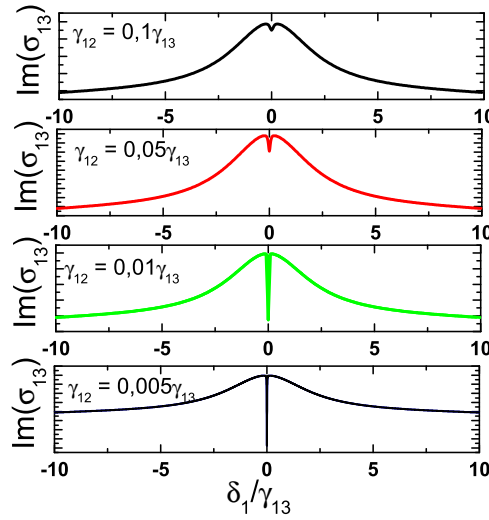


FIG. 5.20 – Spectres simulés pour différents taux de décohérence Raman γ_{12} , pour un élargissement inhomogène RF nul $\gamma_{RF}^{inh} = 0$, et des faisceaux pompe et sonde tels que $\Omega_2 = 0.1\gamma_{13}$ et $\Omega_1 = 0.001\gamma_{13}$. Les autres paramètres sont ceux du tableau 5.4

RF. Ces deux quantités sont inconnues dans $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$. Dans les simulations qui viennent d'être présentées, la limitation est imposée par $\gamma_{RF}^{inh} = 0.1\gamma_{13}$, puisque $\gamma_{12} = 0.02\gamma_{13}$.

Pour voir l'influence du taux de décohérence Raman, des simulations ont été faites à $\gamma_{RF}^{inh} = 0$, en variant γ_{12} . Elles sont présentées sur la figure 5.20 sur l'échelle spectrale de l'anti-trou, c'est à dire quelques γ_{13} . Pour des conditions d'excitation optique identiques, le pic de transparence est plus fin et plus important à mesure que le rapport γ_{12}/γ_{13} décroît. Il est donc important de connaître et maîtriser ces paramètres autant que possible.

Bilan de la modélisation

La modélisation analytique permet de comprendre les phénomènes observés et la simulation numérique incluant les élargissements inhomogènes et RF ainsi que l'effet du pompage optique rend relativement bien compte des spectres observés. Il faut cependant noter qu'une hypothèse importante a été faite sur les pulsations de Rabi pompe et sonde $\Omega_1 \ll \Omega_2$ ce qui ne permet pas de comprendre toutes les situations expérimentales. Par ailleurs, les calculs ont été faits en régime stationnaire, qui est vraisemblablement vérifié pendant les expériences, mais ne permettent pas d'étudier ce qu'il se passe en régime dynamique. Enfin $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ n'est pas forcément réductible à un système à trois niveaux. Les 14 niveaux hyperfins du multiplet fondamental qui ne sont pas connectés par les faisceaux pompe et sonde ont un rôle non négligeable dans le pompage optique et le creusement

spectral.

De ces calculs ressortent que les deux inconnues expérimentales que sont le taux de relaxation de la cohérence Raman γ_{12} et l'élargissement inhomogène RF γ_{RF}^{inh} de la transition hyperfine ont un rôle majeur dans la transparence induite. Des mesures expérimentales de ces paramètres permettrait de vérifier le régime (saturé ou non) de la transparence induite et de l'optimiser. La possibilité de contrôler les processus déphasants en fonction de la température ou d'un champ magnétique externe est une voie d'optimisation.

5.5 Conclusions et perspectives sur la transparence induite dans Er :YSO

Les expériences préliminaires obtenus avec deux lasers, suivies des résultats obtenus avec le dispositif expérimental à un laser confirment qu'il est possible d'exciter la cohérence Raman dans un système aussi complexe que $^{167}\text{Er}^{3+} : \text{Y}_2\text{SiO}_5$. Nous avons même démontré qu'il est possible de trouver au moins 2 configurations en Λ exploitables. La largeur de la transparence induite est de 400 kHz, sur le fond d'un anti-trou de 2.67 MHz. A notre connaissance, c'est la première fois que la transparence induite est démontrée dans un ion Kramers.

Les simulations numériques de l'absorption de la sonde issue de l'équation d'évolution de la matrice densité d'un système à 3 niveaux permettent de comprendre les effets des différents paramètres et d'identifier de potentiels facteurs limitants. Les inconnues du système physique $^{167}\text{Er}^{3+} : \text{Y}_2\text{SiO}_5$ comme l'élargissement inhomogène RF, le temps de cohérence Raman, notamment jouent un rôle important sur la finesse et le niveau de la transparence induite obtenue.

Des expériences d'approfondissement sont nécessaires pour déterminer précisément l'influence du taux de répétition, de la présence de l'impulsion de pompe, des intensités utilisées ainsi que de la durée des impulsions de couplage et de sonde par rapport aux temps de vie des cohérences optique et Raman. L'utilisation d'un faisceau de repompage qui recycle des populations semble intéressante, particulièrement pour le système Λ_1 à 880 MHz avec la pompe en G, qui est situé sur les niveaux hyperfins du fondamental les plus hauts en énergie pour lesquels le peuplement thermique est moins important. Par ailleurs tous les systèmes en Λ identifiés par le croisement des expériences de résonance paramagnétique électronique et de creusement spectral n'ont pas été étudiés.

L'application d'un champ magnétique est envisageable en vue d'augmenter les temps de vie des cohérences. Ce champ a pour effet de geler les interactions entre spins d'éléments voisins dans la matrice cristalline qui sont à l'origine du temps de déphasage relativement court. Sous un champ de 7 T, T. Böttger a mesuré un temps de vie des cohérences optiques T_2^{opt} de plus de 4 ms. Le deuxième effet du champ magnétique est évidemment de décaler les niveaux hyperfins. Grâce à l'étude de résonance paramagnétique électronique, il est possible de prévoir l'évolution des niveaux hyperfins du fondamental, ce qui devrait permettre de retrouver facilement des systèmes en Λ .

Chapitre 6

Conclusion générale

Ce manuscrit a présenté les travaux de recherche menés au Laboratoire de Photonique et de Nanostructures, pour la démonstration expérimentale de deux effets non-linéaires résonants à $1,5 \mu\text{m}$ dans un cristal dopé aux ions erbium. Les oscillations cohérentes de population et la transparence induite électromagnétiquement sont deux effets qui s'appuient sur les propriétés spectrales des ions erbiums, durée de vie des populations, durée de vie de la cohérence optique et structure hyperfine. Les caractéristiques des cristaux d' Y_2SiO_5 dopés exclusivement à l'isotope 167 de l'erbium rendent les expériences et leur compréhension ardues. En abordant cette grande richesse avec pragmatisme (et en acceptant de ne pas tout comprendre), nous avons réussi à démontrer les potentialités qu'offre $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ pour ces deux effets résonants et cohérents. Nous allons reprendre les résultats obtenus puis présenter les perspectives ouvertes par ce travail à court et moyen termes.

Transparence induite électromagnétiquement

Les données sur l'isotope 167 étant absentes au début de la thèse, nous avons commencé les travaux par une étape (de débroussaillage et) de caractérisation du cristal $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$. Elle a donné lieu à de fructueuses collaborations avec les équipes du Laboratoire Aimé Cotton (LAC) et du Laboratoire de Chimie Appliquée à l'Etat Solide (LCAES)¹.

Les mesures d'écho de photon spontané au LAC ont révélé que le temps de déphasage optique était de $T_2 = 3,5 \mu\text{s}$ en l'absence de champ magnétique. Cette valeur, proche des résultats de la littérature pour des cristaux dopés à l'erbium naturel, suggère que les processus déphasants à l'oeuvre ne sont pas liés à la structure hyperfine, du moins sans champ magnétique. Les expériences de spectroscopie non-linéaire de creusement spectral développées au laboratoire (LPN) ont parallèlement permis de mesurer le temps de vie des populations dans l'état excité $T_1^e = 10 \text{ ms}$, et dans l'état fondamental $T_1^f = 187 \text{ ms}$. Ce temps de vie des populations, étudié dans un système en Λ dans lequel nous avons

¹Laboratoire de Chimie de la Matière Condensée de Paris (LCMCP)

démontré la transparence induite, indique qu'il devrait être possible de stocker une information relativement longtemps dans les états hyperfins.

Les expériences de creusement spectral seules ne peuvent fournir une information claire sur la structure hyperfine. La richesse et l'irrégularité des spectres obtenus tiennent d'une part à la complexité de la structure hyperfine et des pseudo-règles de sélection présentes et d'autre part à un élargissement inhomogène intermédiaire : trop grand pour permettre de résoudre directement le spectre hyperfin et trop faible pour l'englober entièrement. Par l'analyse de la position en fréquence des anti-trous, nous avons pu estimer la largeur inhomogène de la transition à 1536,1 nm à 250 MHz.

La détermination de la structure hyperfine du niveau fondamental a été possible grâce aux mesures de résonance paramagnétique électronique faites au LCAES. Les spectres obtenus, notamment le dédoublement des raies interdites, témoignent de l'importance de l'interaction quadrupolaire, qui ne peut pas être traitée comme une perturbation de l'interaction hyperfine dans $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$. Il a fallu développer une méthode d'analyse adaptée à cette situation et à la basse symétrie du site pour la compréhension des spectres. Grâce au travail d'O. Guillot-Noël et P. Goldner, les tenseurs $\mathbf{g}$, $\mathbf{A}$ et $\mathbf{Q}$ ont ainsi pu être reconstitués pour les deux sites de substitution de l'erbium [64]. Ils donnent des informations sur l'environnement direct des ions et reflètent notamment la très basse symétrie des sites 1 et 2. Ils nous ont permis de déduire la structure hyperfine des ions $^{167}\text{Er}^{3+}$ dans le doublet de Kramers fondamental $^4\text{I}_{15/2}(0)$. Les états hyperfins obtenus sont extrêmement mélangés, ce qui est caractéristique des sites de basse symétrie. En brouillant les règles de sélection pour les transitions optiques, ce mélange est un avantage pour obtenir la transparence induite dans un système en Λ .

De nombreux systèmes en Λ ont ainsi pu être identifiés dans les spectres de creusement spectral. Une étude préliminaire d'excitation simultanée des deux bras de deux systèmes en Λ avec deux lasers indépendants a été réalisée. Une fenêtre de transparence apparaît selon les conditions de pompage. Pour confirmer que cette transparence correspond à l'excitation de la cohérence Raman entre les deux niveaux fondamentaux, et étudier ces systèmes en Λ , un dispositif expérimental capable de s'adapter à chacune des configurations identifiées a été mis en place. Il s'appuie simplement sur le filtrage par une cavité Fabry-Pérot d'une bande latérale obtenue par modulation d'amplitude dans un interféromètre de Mach Zehnder fibré (MZ). Avec ce principe simple, nous disposons de deux faisceaux cohérents indépendants spatialement et temporellement et ne souffrant pas de gigue en fréquence l'un par rapport à l'autre. La différence de fréquence entre les deux faisceaux peut être réglée à souhait entre 13 MHz (limite inférieure fixée par la largeur du pic Fabry Pérot) et 1,6 GHz (demi intervalle spectral libre du Fabry Pérot), ce qui laisse la possibilité d'explorer les configurations en Λ que nous avons identifiées dans $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$. La puissance du faisceau en sortie de ce dispositif est cependant limitée, à cause de la limitation de la puissance d'entrée au niveau du modulateur MZ.

Avec ce dispositif, nous avons pu mettre en évidence la transparence induite dans deux systèmes en Λ pour lesquels les niveaux hyperfins fondamentaux sont séparés de 880 MHz (pompe en G, figure 5.15, configuration Λ_1) et 740 MHz (pompe en A, figure 5.16, configuration Λ_2) respectivement. Un pic de transparence de largeur 400 kHz, apparaît à

l'intérieur d'un anti-trou, ce dernier reflétant le pompage optique incohérent dû au faisceau de couplage. Les niveaux de transparence obtenus restent cependant faibles.

Le modèle analytico-numérique basé sur les matrices densités, développé par S. Briaudeau (CNAM en délégation au CNRS) permet de confirmer que cette transparence correspond à l'excitation de la cohérence Raman et donc à une situation de transparence induite non optimale. La prise en compte du pompage optique et des effets du creusement spectral adapté à notre cristal montre qu'à très fort pompage la transparence obtenue peut effectivement être totale. Cette transparence est plus facilement atteinte lorsque différence entre les taux de relaxation des cohérences optique et Raman γ_{13} et γ_{12} est importante.

Oscillations cohérentes de population

Parallèlement à ce travail exploratoire sur la transparence induite, nous avons étudié les oscillations cohérentes de population dans $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$. L'avantage de cet effet est qu'il ne nécessite qu'un système à deux niveaux, aucune connaissance de la structure hyperfine n'est donc nécessaire. Le long temps de vie des ions erbium, 10 ms, permet de creuser une fenêtre de transparence très étroite, ~ 23 Hz, dans la largeur homogène. Ce phénomène n'est pas limité par l'élargissement inhomogène : la fenêtre de transparence cohérente des oscillations cohérentes de population s'ajoute à la transparence incohérente, de saturation, due à la présence d'un champ pompe. Expérimentalement les faisceaux cohérents sont une fois encore obtenus par modulation d'amplitude. La seule difficulté est de travailler à basse fréquence car le bruit en $1/f$ y est très important. En mettant en place un moyennage adéquat de bons résultats ont pu être obtenus. Une vitesse de propagation de 3 m/s a été démontrée dans le cristal dopé aux ions erbium 167, et 1,25 m/s dans le cristal dopé à l'erbium naturel.

Le travail en inversion de population permet d'inverser la pente de la dispersion et d'observer non pas un retard de temps de groupe mais une avancé de celui-ci. Cela permet également de bénéficier d'une amplification de l'impulsion.

L'utilisation de la largeur inhomogène comme paramètre d'ajustement du couple retard-transmission a été démontrée expérimentalement. Dans $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$, il est possible de travailler au maximum de l'absorption (en E) avec une transmission sonde de 40 % et une vitesse de 3 m/s ou dans les ailes de l'absorption avec une transmission 90 % et une vitesse de 100 m/s par exemple (figure 4.20). Toutes les valeurs entre ces deux points sont accessibles en changeant simplement les fréquences des faisceaux pompe et sonde dans l'absorption [110].

La propagation d'impulsions de longue durée (5 ms à 20 ms) reproduit les résultats obtenus avec une simple modulation d'amplitude. L'effet de ralentissement est limité à la bande passante très faible de la largeur naturelle de la transition optique $1/2\pi T_1$. C'est un avantage car T_1 est relativement insensible aux perturbations de l'environnement, on peut donc travailler à température ambiante. Il s'agit cependant d'un inconvénient pour les applications dans l'erbium car la largeur naturelle très faible impose une contrainte forte sur la bande passante.

Deux paramètres d'ajustement du retard et de la transmission ont été mis en évidence :

le pompage optique et la fréquence du signal dans l'élargissement inhomogène. Transposés dans un système de plus grande bande passante (les puits quantiques par exemple), ils peuvent être utiles pour les applications envisagées dans les mémoires tampons ajustables en temps réel pour le traitement de l'information lumineuse ou recentrage d'impulsion dans une fenêtre temporelle.

Perspectives

En conclusion, ce travail a élargi à l'isotope $^{167}\text{Er}^{3+}$ de l'erbium, la famille des terres rare envisagées pour le traitement optique de l'information utilisant des effets cohérents et résonants.

Le cristal $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ a permis de faire des démonstrations de principe de l'utilisation des oscillations cohérentes de population pour le ralentissement de la lumière. Cependant, la bande passante liée au temps de vie des ions erbium est beaucoup trop faible pour être exploitable. Les premiers résultats dans les fibres dopées erbium sont orientés vers les applications. Pour augmenter la bande passante il faut réduire le temps de vie du niveau excité, et donc choisir un autre système atomique que les ions erbiums ou profiter d'un effet de cavité pour modifier T_1 par effet Purcell.

Le travail sur la transparence induite n'en est qu'à ses débuts. Si nous avons pu démontrer qu'il est possible d'exciter la cohérence Raman dans $^{167}\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$, les spectres obtenus sont loin de présenter une réelle transparence, indiquant la faible efficacité du processus de transparence induite électromagnétiquement. Plusieurs voies sont envisagées pour optimiser l'effet en s'appuyant d'une part sur le contrôle des populations par pompage optique et d'autre part sur la maîtrise des processus déphasants dans le cristal.

L'étude du pompage optique et du creusement spectral associé est une étape indispensable. Pour apprécier l'influence de la population du niveaux fondamental sur la préparation du système en Λ , l'amplitude de la transparence doit être étudié en fonction du retard entre les impulsions pompe et couplage/sonde. L'ajout d'autres faisceaux permettra de voir les effets d'un recyclage (incohérent) des populations pour améliorer la préparation du système. L'utilisation de techniques de creusement spectral sur de larges bandes spectrales, toujours pour préparer le système en Λ , telles celles développées à Lund pour $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ semble séduisante vu le grand nombre de niveaux hyperfins de $^{167}\text{Er}^{3+}$ [127].

Par ailleurs, nous avons vu dans la modélisation qu'une fenêtre de transparence plus fine et plus importante est obtenue lorsque la différence entre les temps de cohérences optiques et Raman est grande. Le retour vers les caractérisations des transitions entre niveaux hyperfins et la mesure de γ_{12} , et γ_{RF}^{inh} est donc nécessaire. Plusieurs expériences sont envisagées. Avec le dispositif actuel l'étude de la décroissance temporelle de l'amplitude de la transparence sur une échelle de temps allant jusqu'à quelques μs et l'étude de la largeur de la transparence en fonction de la puissance de couplage devraient en donner un ordre de grandeur.

L'application d'un champ magnétique statique est également possible. La position des niveaux hyperfin sera alors modifiée, mais grâce aux études de RPE, il devrait être possible de suivre ces variations en fonction du champ magnétique et de retrouver les systèmes en

A. L'effet du champ magnétique est a priori de réduire les taux de déphasage γ_{13} et γ_{12} . Une étude minutieuse est nécessaire pour voir si cela va dans le bon sens, à savoir une augmentation du rapport γ_{13}/γ_{12} par alignement des spins électroniques et nucléaires. Un changement de la température de travail est également envisageable, puisqu'elle influence les processus de relaxation assistés par phonon et peut jouer différemment sur les temps de vie et de déphasage, optique et hyperfin [22, 67, 128].

L'utilisation couplée des excitations optiques et radio-fréquence est une voie qui offre de belles perspectives. Elle a déjà permis d'augmenter le temps de cohérence entre niveaux hyperfin du fondamental dans $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ [129, 24] et peut être utilisée pour faire des opérations sur ces états. Les résultats de résonance paramagnétique électronique pulsée dans l'erbium 167 dans un cristal de CaWO_4 [130] montrent qu'il est déjà possible de manipuler avec des impulsions RF l'état de spin des ions erbium 167. On peut ainsi rêver d'un système où l'état d'un photon (ou d'un champ comprimé [131]), Qbit volant, est mémorisé dans la superposition cohérente des états hyperfins fondamentaux via la transparence induite électromagnétiquement. La cohérence de ces derniers peut être maintenue par des impulsions RF, laissant le temps pour réaliser des opérations logiques entre les Qbits statiques que sont les ions. Les interactions magnétiques entre ions proches spatialement permettra de réaliser des portes logiques entre Qbits, voie qui est doré et déjà étudiée à Lund dans $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ [127, 132, 133].

Il ne s'agit là que de quelques unes des directions qui pourront être explorées dans un futur plus ou moins proche pour mieux comprendre et pour exploiter les potentialités des ions $^{167}\text{Er}^{3+}$ pour le traitement de l'information classique et quantique.

Annexe A

Résultats de spectroscopie

Dans les tableaux suivants sont regroupés les résultats de creusement spectral et de résonance paramagnétique électronique, permettant l'identification de systèmes en Λ présentée au chapitre 3.

La première colonne correspond à la position en MHz des anti-trous mesurés par rapport à la position de la pompe dans les expériences de creusement spectral. (Imp) signifie que l'anti-trou pu être observé lors des expériences impulsionnelles.

Les deuxième et troisième colonnes indiquent les niveaux hyperfins du fondamental issus de l'analyse résonance paramagnétique électronique (figure 3.29) qui peuvent théoriquement donner un anti-trou à la fréquence de l'anti-trou effectivement mesurée à ± 10 MHz et ± 20 MHz. Entre parenthèse la valeur de l'éclatement hyperfin en MHz entre les niveaux signalés est reportée. Cette valeur correspond à la position de l'anti-trou par rapport à la pompe (calculée dans le tableau 3.2).

Anti-trous mesurés (MHz)	Niveaux hyperfins	
	± 10 MHz	± 20 MHz
-1610	2/3 $\rightarrow$ 7 (1613)	
-1602		2/3 $\rightarrow$ 7 (1613)
-1523		
-1500		
-1376	1 $\rightarrow$ 4 (1386)	
-1361 (Imp)		
-754	8 $\rightarrow$ 9 (756)	
-735 (Imp) (~ 740)	1 $\rightarrow$ 3 (728)	8 $\rightarrow$ 9 (756)
-490		5 $\rightarrow$ 6 (473)
-470	5 $\rightarrow$ 6 (473)	
-165		

TAB. A.1 – Anti-trous obtenus avec la pompe en A et recoupement avec l'éclatement hyperfin issu des expériences de résonance paramagnétique électronique.

Anti-trous mesurés (MHz)	Niveaux hyperfins	
	± 10 MHz	± 20 MHz
-1550		
-1370		1 $\rightarrow$ 4 (1386)
-1230	4 $\rightarrow$ 8 (1234)	
-1208	2 $\rightarrow$ 6 (1195)	
-738 (Imp)($\sim$ 740)	1 $\rightarrow$ 3 (728)	
-611		
-600		
-577		
-340		
-309		

TAB. A.2 – Anti-trous obtenus avec la pompe entre A et B, et recoupement avec l'éclatement hyperfin issu des expériences de résonance paramagnétique électronique.

Anti-trous mesurés (MHz)	Niveaux hyperfins	
	± 10 MHz	± 20 MHz
-397 (Imp)		
-212		
-70	4 $\rightarrow$ 5 (60)	
70	4 $\rightarrow$ 5 (60)	
133	10 $\rightarrow$ 11 (128)	
477	5 $\rightarrow$ 6 (473)	

TAB. A.3 – Anti-trous obtenus avec la pompe en B et recoupement avec l'éclatement hyperfin issu des expériences de résonance paramagnétique électronique.

Anti-trous mesurés (MHz)	Niveaux hyperfins	
	± 10 MHz	± 20 MHz
-503		
-128	10→11 (128)	
128 (Imp)	10→11 (128)	

TAB. A.4 – Anti-trous obtenus avec la pompe en C et recouplement avec l'éclatement hyperfin issu des expériences de résonance paramagnétique électronique .

Anti-trous mesurés (MHz)	Niveaux hyperfins	
	± 10 MHz	± 20 MHz
-487		
-14	12→13(9)	
13	12→ 13(9)	

TAB. A.5 – Anti-trous obtenus avec la pompe en D et recouplement avec l'éclatement hyperfin issu des expériences de résonance paramagnétique électronique .

Anti-trous mesurés (MHz)	Niveaux hyperfins	
	± 10 MHz	± 20 MHz
-69	4→5 (60)	
-18 (Imp)		12→13(9)
555		9→11 (544)

TAB. A.6 – Anti-trous obtenus avec la pompe entre D et E, et recouplement avec l'éclatement hyperfin issu des expériences de résonance paramagnétique électronique .

Anti-trous mesurés (MHz)	Niveaux hyperfins	
	± 10 MHz	± 20 MHz
-68		4→5 (60)
-17 (Imp)		12→13(9)
18 (Imp)		12→13(9)
634		

TAB. A.7 – Anti-trous obtenus avec la pompe en E et recouplement avec l'éclatement hyperfin issu des expériences de résonance paramagnétique électronique.

Anti-trous mesurés (MHz)	Niveaux hyperfins	
	± 10 MHz	± 20 MHz
640		3 $\rightarrow$ 4 (658)
790		
815		
880(Imp)		5 $\rightarrow$ 7 (895) 12 $\rightarrow$ 14 (865)
1420 (Imp)		
1440 (Imp)	1 $\rightarrow$ 5 (1446)	7 $\rightarrow$ 10 (1451)
1510 (Imp)		
1690		10 $\rightarrow$ 14 (1703)
1710	10 $\rightarrow$ 14 (1703)	
1780 (Imp)		

TAB. A.8 – Anti-trous obtenus avec la pompe en G et recoupement avec l'éclatement hyperfin issu des expériences de résonance paramagnétique électronique.

Bibliographie

- [1] SE Harris. Electromagnetically induced transparency. *Phys. Today*, 50 :36, 1997.
- [2] S. E. Harris and Lene Vestergaard Hau. Nonlinear optics at low light levels. *Phys. Rev. Lett.*, 82(23) :4611–4614, Jun 1999.
- [3] Robert W. Boyd, Michael G. Raymer, Paul Narum, and Donald J. Harter. Four-wave parametric interactions in a strongly driven two-level system. *Phys. Rev. A*, 24(1) :411–423, 1981.
- [4] Murray III Sargent. Spectroscopic techniques based on lamb’s laser theory. *Phys. Rep.*, 43 :223–265, 1978.
- [5] M. S. Bigelow, N. N. Lepeshkin, and R. W. Boyd. Superluminal and slow light propagation in a room-temperature solid. *Science*, 301 :200, 2003.
- [6] Matthew S. Bigelow, Nick N. Lepeshkin, and Robert W. Boyd. Observation of ultraslow light propagation in a ruby crystal at room temperature. *Phys. Rev. Lett.*, 90(11) :113903, 2003.
- [7] Michael Fleischhauer, Atac Imamoglu, and Jonathan P. Marangos. Electromagnetically induced transparency : Optics in coherent media. *Reviews of Modern Physics*, 77(2) :633, 2005.
- [8] A. S. Zibrov, M. D. Lukin, L. Hollberg, D. E. Nikonov, M. O. Scully, H. G. Robinson, and V. L. Velichansky. Experimental demonstration of enhanced index of refraction via quantum coherence in rb. *Phys. Rev. Lett.*, 76(21) :3935–3938, 1996.
- [9] L.V. Hau, SE Harris, Z Dutton, and CH Behroozi. Light speed reduction to 17 metres per second in an ultracold atomic gas. *Nature*, 397(6720) :594–8, 1999.
- [10] M. D. Lukin. Colloquium : Trapping and manipulating photon states in atomic ensembles. *Rev. Mod. Phys.*, 75(2) :457–472, 2003.
- [11] M. Bajcsy, A. S. Zibrov, and M. D. Lukin. Stationary pulses of light in an atomic medium. *Nature*, 426 :638–641, 2003.
- [12] T. Chaneliere, D.N. Matsukevich, S.D. Jenkins, S.Y. Lan, T.A.B. Kennedy, and A. Kuzmich. Storage and retrieval of single photons transmitted between remote quantum memories. *Nature*, 438 :833, 2005.
- [13] M. D. Eisaman, A. André, F. Massou, M. Fleischhauer, A. S. Zibrov, and M. D. Lukin. Electromagnetically induced transparency with tunable single-photon pulses. *Nature*, 438 :837–841, 2005.

- [14] H. Schmidt and A. Imamoglu. Giant kerr nonlinearities obtained by electromagnetically induced transparency. *Opt. Lett.*, 21 :1936, 1996.
- [15] S. E. Harris, J. E. Field, and A. Imamoglu. Nonlinear optical processes using electromagnetically induced transparency. *Phys. Rev. Lett.*, 64(10) :1107–1110, 1990.
- [16] Min Xiao, Hai Wang, and David Goorskey. Light controlling light. *Optics and Photonics News*, page 45, 2002.
- [17] J. H. Lee, J. J. Song, M. A. F. Scarparo, and M. D. Levenson. Coherent population oscillations and hole burning observed in $\text{sm}^{2+}:\text{caf}_2$ using polarization spectroscopy. *Opt. Lett.*, 5 :196–198, 1980.
- [18] L.W. Hillman, R.W. Boyd, J. Krasinski, and C.R.Jr Stroud. Observation of a spectral hole due to population oscillations in a homogeneously broadened optical absorption line. *Opt. Comm.*, 45(6) :416, 1983.
- [19] P-C. Ku, F. Sedwick, C.J. Chang-Hasnain, P. Palinginis, H. Wang T. Li, S-W. Chang, and S-L Chuang. Slow light in semiconductor quantum wells. *Opt. Lett.*, 29 :2291, 2004.
- [20] P. Palinginis, F. Sedgwick, S. Crankshaw, M. Moewe, and C. Chang-Hasnain. Room temperature slow light in a quantum-well waveguide via coherent population oscillation. *Opt. Express*, 13 :9909–9915, 2005.
- [21] Pengfei Wu and D. V. G. L. N. Rao. Controllable snail-paced light in biological bacteriorhodopsin thin film. *Phys. Rev. Lett.*, 95(25) :253601, 2005.
- [22] B.S. Ham and M.S. Hemmer, P.R. and Shahriar. Efficient electromagnetically induced transparency in a rare-earth doped crystal. *Opt. Comm.*, 144(4) :227–230, 1997.
- [23] A. V. Turukhin, V. S. Sudarshanam, M. S. Shahriar, J. A. Musser, B. S. Ham, and P. R. Hemmer. Observation of ultraslow and stored light pulses in a solid. *Phys. Rev. Lett.*, 88(2) :023602, 2001.
- [24] J. J. Longdell, E. Fraval, M. J. Sellars, and N. B. Manson. Stopped light with storage times greater than one second using electromagnetically induced transparency in a solid. *Phys. Rev. Lett.*, 95(6) :063601, 2005.
- [25] Changjiang Wei and Neil B. Manson. Observation of the dynamic stark effect on electromagnetically induced transparency. *Phys. Rev. A*, 60(3) :2540–2546, 1999.
- [26] M. Phillips and H. Wang. Spin coherence and electromagnetically induced transparency via exciton correlations. *Phys. Rev. Lett.*, 89(18) :186401, 2002.
- [27] W. T. Carnall, G. L. Goodman, K. Rajnak, and R. S. Rana. A systematic analysis of the spectra of the lanthanides doped into single crystal laf_3 . *The Journal of Chemical Physics*, 90(7) :3443–3457, 1989.
- [28] R.M. Macfarlane. High-resolution laser spectroscopy of rare-earth doped insulators : a personal perspective. *Journal-of-Luminescence*, 100 :1–20, 2002.
- [29] Guokui Liu. *Spectroscopic properties of rare earths in optical materials*, chapter 1 - Electronic Energy Level Structure. Springer, 2005.

- [30] Neil W. Ashcroft and N. David Mermin. *Solid Stats Physics*, chapter 31- Diamagnetism and Paramagnetism, pages 650–653. Holt Saunders Edition, ?
- [31] Paul Caro. *Structure électronique des éléments de transition-l'atome dans le cristal*. Presses Universitaires de France, collection sup edition, 1976.
- [32] R.M. Macfarlane and R.M. Shelby. *Spectroscopy of solids containing rare earth ions*, chapter 3 - Coherent transient and holeburning spectroscopy of rare earth ions in solids. Elsevier Science Publications, North-Holland, Amsterdam,, 1987.
- [33] S. Hüfner. *Optical Spectra of Transparent Rare Earth Compounds*. Academic Press, London, 1978.
- [34] F. de Seze, A. Louchet, V. Crozatier, I. Lorgere, F. Bretenaker, J.-L. Le Gouet, O. Guillot-Noel, and Ph. Goldner. Experimental tailoring of a three-level lambda system in $\text{tm}^{3+}:\text{yag}$. *Phys. Rev. B*, 73(8) :085112, 2006.
- [35] A. Louchet, J.S. Habib, F. Bretenaker, F. Goldfarb, I. Lorgeré, and J.-L. Le Gouët. Coherent raman beats in $\text{tm}^{3+}:\text{yag}$. *Journal of Luminescence*, 127 :89–93, 2007.
- [36] Thomas Böttger. *Laser frequency stabilization to spectral hole burning frequency references in erbium-doped crystals : material and device optimization*. PhD thesis, Montana State University, Bozeman, Montana, 2002.
- [37] I.N. Kurkin and Chernov K. P. Epr and spin- lattice relaxation of rare-earth activates centres in y_2siO_5 single crystals. *Physica 101B*, pages 233–238, 1980.
- [38] R. W. Equall, R. L. Cone, and R. M. Macfarlane. Homogeneous broadening and hyperfine structure of optical transitions in $\text{pr}^{3+}:\text{y}_2\text{siO}_5$. *Phys. Rev. B*, 52(6) :3963–3969, 1995.
- [39] R. W. Equall, Y. Sun, R. L. Cone, and R. M. Macfarlane. Ultraslow optical dephasing in $\text{eu}^{3+}:\text{y}_2\text{siO}_5$. *Phys. Rev. Lett.*, 72(14) :2179–2182, 1994.
- [40] Felix R. Graf, Alois Renn, Gert Zumofen, and Urs P. Wild. Photon-echo attenuation by dynamical processes in rare-earth-ion-doped crystals. *Phys. Rev. B*, 58(9) :5462–5478, 1998.
- [41] Thomas Bottger, C. W. Thiel, Y. Sun, and R. L. Cone. Optical decoherence and spectral diffusion at $1.5\text{ }\mu\text{m}$ in $\text{er}^{3+}:\text{Y}_2\text{siO}_5$ versus magnetic field, temperature, and er^{3+} concentration. *Phys. Rev. B*, 73(7) :075101, 2006.
- [42] N. I. Leonyuk, E. L. Belokoneva, G. Bocelli, L. Righi, E. V. Shvanskii, R. V. Henrykhson, N. V. Kulman, and D. E. Kozhvakhteva. Crystal growth and structural refinements of the y_2siO_5 , $\text{y}_2\text{si}_2\text{O}_7$ and labsiO_5 single crystals. *Cryst. Res. Technol.*, 34 :1175–1182, 1999.
- [43] W. Y. Ching, Lizhi Ouyang, and Yong-Nian Xu. Electronic and optical properties of y_2siO_5 and $\text{y}_2\text{si}_2\text{O}_7$ with comparisons to $\alpha\text{-siO}_2$ and y_2O_3 . *Phys. Rev. B*, 67(24) :245108, 2003.
- [44] J.L. Doualan, C. Labbé, P. Le Boulanger, J. Margerie, R. Moncorgé, and H. Timonen. Energy levels of the lasers actives er^{3+} ion in each of the two crystallographic sites of yttrium orthosilicate. *Journal-of-physics-Condensed-matter*, 7(26) :5111–5126, 1995.

- [45] C. Li, C. Wyon, and R. Moncorgé. Spectroscopic properties and fluorescence dynamics of $\text{er}(3+)$ and $\text{yb}(3+)$ in y_2siO_5 . *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 28 :1209–1221, April 1992.
- [46] Y.C. Sun. *Spectroscopic properties of rare earths in optical materials*, chapter 7 - Rare Earth Materials in Optical Storage and Data Processing. Springer, 2005.
- [47] MacFarlane R.M., Harris T.L., Y. Sun, R.L. Cone, and Equall R.W. Measurement of photon echoes in $\text{er}:\text{y}_2\text{siO}_5$ at $1.5\ \mu\text{m}$ with a diode laser and an amplifier. *Opt. Lett.*, 22 :871, 1997.
- [48] Vincent Crozatier. *Developpement de lasers solides agiles ultra-satbles pour la manipulation cohérente des systèmes atomiques Application au traitement optique de signaux radiofréquences et à l'information quantique*. PhD thesis, Université Paris–XI, 2006.
- [49] C. Li, R. Moncorgé, J. C. Souriau, C. Borel, and Ch. Wyon. Room temperature cw laser action of $\text{y}_2\text{siO}_5:\text{yb}^{3+}, \text{er}^{3+}$ at $1.57\ \mu\text{m}$. *Opt. Comm.*, 107 :61–64, 1994.
- [50] T. Schweizer, T. Jensen, E. Heumann, and G. Huber. Spectroscopic properties and diode pumped $1.6\ \mu\text{m}$ laser performance in yb -codoped $\text{er}:\text{y}_3\text{al}_5\text{o}_{12}$ and $\text{er}:\text{y}_2\text{siO}_5$. *Opt. Comm.*, 118(5) :557–561, 1995.
- [51] V. Crozatier, V. Lavielle, F. Bretenaker, J.-L. Le Gouet, and I Lorgere. High-resolution radio frequency spectral analysis with photon echo chirp transform in an $\text{er}:\text{yso}$ crystal. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 40 :1450–1457, 2004.
- [52] P. B. Sellin, N. M. Strickland, T. Böttger, J. L. Carlsten, and R. L. Cone. Laser stabilization at 1536 nm using regenerative spectral hole burning. *Phys. Rev. B*, 63(15) :155111, 2001.
- [53] N. A. Kurnit, I. D. Abella, and S. R. Hartmann. Observation of a photon echo. *Phys. Rev. Lett.*, 13(19) :567–568, 1964.
- [54] I. D. Abella, N. A. Kurnit, and S. R. Hartmann. Photon echoes. *Phys. Rev.*, 141(1) :391–406, 1966.
- [55] E. L. Hahn. Spin echoes. *Phys. Rev.*, 80(4) :580–594, Nov 1950.
- [56] L. Allen and J. H. Eberly. *Optical Resonance and two level atoms*,. Dover, Publications Inc., New York, 1987.
- [57] W. R. Jr. Bennett. Hole burning effects in a he-ne optical maser. *Phys. Rev.*, 126 :580593, 1962.
- [58] Claude Fabre. Atomes et lumière, interaction matière rayonnement. cours du DEA de Physique Quantique, 2003.
- [59] Wolfgang Demtröder. *Laser spectroscopy - basic concepts and instrumentation*. Springer, 1996.
- [60] Ralf Menzel. *Photonics - Linear and Nonlinear Interactions of Laser Light and Matter*. Springer, 2000.

- [61] Brendan F. Hayward and Hans Riesen. Side-hole to anti-hole conversion in time-resolved transient spectral hole-burning of emerald : ground state level versus excited state population storage in low magnetic fields. *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 7 :2579–2586, 2005.
- [62] Claude Cohen-Tannoudji, Bernard Diu, and Franck Laloe. *Mécanique quantique II*. Herman-collection enseignement des sciences 16, 1973.
- [63] F.E Mabbs and D. Collison. *Electron paramagnetic resonance of d transition metal compounds*. Studies in inorganic chemistry. Elsevier, 1992.
- [64] O. Guillot-Noel, Ph. Goldner, Y. Le Du, E. Baldit, P. Monnier, and K. Bencheikh. Hyperfine interaction of er^{3+} ions in y_2sio_5 : An electron paramagnetic resonance spectroscopy study. *Phys. Rev. B*, 74(21) :214409, 2006.
- [65] Olivier Guillot-Noël. Etude de la structure hyperfine de l’ion er dans la matrice yso. Communication privée, 2006.
- [66] Y. Sun, C. W. Thiel, R. L. Cone, R. W. Equall, and R. L. Hutcheson. Recent progress in developing new rare earth materials for hole burning and coherent transient applications. *Journal of Luminescence*, 2002.
- [67] S. Hastings-Simon, M. Staudt, B. Lauritzen, J. Minar, H. Riedmatten, and M. Afzelius. Optical pumping in er^{3+} :yso. Workshop on Quantum information in Rare Earth systems.
- [68] T. Bottger, Y. Sun, C. W. Thiel, and R. L. Cone. Spectroscopy and dynamics of er^{3+} : Y_2sio_5 at 1.5 μm . *Phys. Rev. B*, 74(7) :075107, 2006.
- [69] M.H.L. Pryce. A modified perturbation procedure for a problem in paramagnetism. *Proc. Phys. Soc.*, 63(23) :25–29, 1950.
- [70] A. Abragam and M.H.L. Pryce. Theory of the nuclear hyperfine structure of paramagnetic resonance spectra in crystals. volume 205 of *A*, London, 1951.
- [71] Yann Le Du. Calculs d’erreurs. Technical report, LCAES, 2006.
- [72] W.H. Press, B.P. Flannery, Teukolsky S.A., and W.T. Vetterling. *Numerical Recipes in Pascal*, chapter 14. Cambridge University Press, New York, 1989.
- [73] O. Guillot-Noel. Workshop on Quantum information in Rare Earth systems.
- [74] O. Guillot-Noël, E. Goldner, Ph. and Antic-Fidancev, and J. L. Le Gouët. Analysis of magnetic interactions in rare-earth-doped crystals for quantum manipulation. *Phys. Rev. B*, 71 :174409, 2005.
- [75] K. M. Evenson, J. S. Wells, F. R. Petersen, B. L. Danielson, G. W. Day, R. L. Barger, and J. L. Hall. Speed of light from direct frequency and wavelength measurements of the methane-stabilized laser. *Phys. Rev. Lett.*, 29(19) :1346–1349, 1972.
- [76] Exposition c à paris. <http://expositions.obspm.fr/lumiere2005/experiencefizeau.html>.
- [77] Richard L. Smith. The velocities of light. *American Journal of Physics*, 38(8) :978–984, 1970.

- [78] S. C. Bloch. Eighth velocity of light. *American Journal of Physics*, 45(6) :538–549, 1977.
- [79] G.M. Gehring, A. Schweinsberg, C. Barsi, N. Kostinsli, and R.W. Boyd. Observation of backward pulse propagation through a medium with negative group velocity. *Science*, 312 :895, 2006.
- [80] L.J. Wang, A. Kuzmich, and A Dogariu. Gain-assisted superluminal light propagation. *Nature*, 406(6793) :277–279, 2000.
- [81] A. Dogariu, A. Kuzmich, and L. J. Wang. Transparent anomalous dispersion and superluminal light-pulse propagation at a negative group velocity. *Phys. Rev. A*, 63(5) :053806, 2001.
- [82] L. Brillouin. *Wave propagation and group velocity*. Academic Press, New York, 1960.
- [83] Michael D. Stenner, Daniel J. Gauthier, and Mark A. Neifeld. Fast causal information transmission in a medium with a slow group velocity. *Phys. Rev. Lett.*, 94(5) :053902, 2005.
- [84] Daniel J. Stenner, Michael D. and Gauthier and Mark A. Neifeld. The speed of information in a 'fast-light' optical medium. *Nature*, 425 :695–698, 2003.
- [85] P. Govind Agrawal. *Non linear fiber optics*. Quantum Electronics, 1989.
- [86] Walter Appel. *Mathématiques pour la physique et les physiciens*. H-K edition, 2002.
- [87] M. Scalora. *PRE*, 54(2), 1996.
- [88] Takasumi Tanabe, Masaya Notomi, Eiichi Kuramochi, kihiko ashinya, and Hideaki Taniyama. Trapping and delaying photons for one nanosecond in an ultrasmall high-q photonic-crystal nanocavity. *Nature*, 2007.
- [89] J. B. Khurgin. Optical buffers based on slow light in electromagnetically induced transparent media and coupled resonator structures : comparative analysis. *JOSA B*, 22(5), 2005.
- [90] J. Scheuer. *Optics and Photonics News*, Feb 2005.
- [91] A.Talneau, G.Aubin, A.Uddhammar, A.Berrier, M.Mulot, and S.Anand. Higly dispersive photonic crystal-based coupled cavity structures. *Appl. Phys. Lett.*, 88 :201106, 2006.
- [92] E. Podivilov, B. Sturman, A. Shumelyuk, and S. Odoulov. Light pulse slowing down up to 0.025 cm/s by photorefractive two-wave coupling. *Phys. Rev. Lett.*, 91(8) :083902, 2003.
- [93] G. S. Agarwal and Tarak Nath Dey. Slow light in doppler-broadened two-level systems. *Phys. Rev. A*, 68(6) :063816, 2003.
- [94] R. N. Shakhmuratov, A. Rebane, P. Megret, and J. Odeurs. Slow light with persistent hole burning. *Phys. Rev. A*, 71(5) :053811, 2005.
- [95] Ryan M. Camacho, Michael V. Pack, and John C. Howell. Slow light with large fractional delays by spectral hole-burning in rubidium vapor. *Phys. Rev. A*, 74(3) :033801, 2006.

- [96] Miguel Gonzalez-Herraez, Kwang-Yong Song, and Luc Thevenaz. Optically controlled slow and fast light in optical fibers using stimulated brillouin scattering. *Appl. Phys. Lett.*, 87(8) :081113, 2005.
- [97] J. Sharping, Y. Okawachi, , and A. Gaeta. Wide bandwidth slow light using a raman fiber amplifier. *Opt. Express*, 13 :6092–6098, 2005.
- [98] Chien Liu, Zachary Dutton, Cyrus H. Behroozi, and Lene Vestergaard Hau. Observation of coherent optical information storage in an atomic medium using halted light pulses. *Nature*, 2001.
- [99] Jesper Mørk, Rasmus Kjær, Mike van der Poel, and Kresten Yvind. Slow light in a semiconductor waveguide at gigahertz frequencies. *Opt. Express*, 13(20) :8136–8145, 2005.
- [100] Filip Öhman, Kresten Yvind, and Jesper Mørk. Voltage-controlled slow light in an integrated semiconductor structure with net gain. *Opt. Express*, 14(21) :9955–9962, 2006.
- [101] Ryan M. Camacho, Curtis J. Broadbent, Irfan Ali-Khan, and John C. Howell. All-optical delay of images using slow light. *Phys. Rev. Lett.*, 98(4) :043902, 2007.
- [102] S. E. Schwarz and T. Y. Tan. Wave interaction in saturable absorbers. *Appl. Phys. Lett.*, 10(1) :4–7, 1967.
- [103] E.V. Baklanov and V.P. Chebotayev. *JETP*, 33 :300, 1971.
- [104] S. Zapasskii and G. G. Kozlov. A saturable absorber, coherent population oscillations, and slow light. *Optics and Spectroscopy*, 100(3) :419–424, 2006.
- [105] G. Piredda and R. W. Boyd. Slow light by means of coherent population oscillations : laser linewidth effects. *Journal of the European Optical Society*, 2, 2007.
- [106] Meystre and Sargent. *Elements of Quantum Optics*, chapter 8 - Saturation Spectroscopy. Springer, 199x.
- [107] Robert W. Boyd. *Nonlinear optics - second edition*. Academic Press, 2003.
- [108] III Murray Sargent, Peter E. Toschek, and Hans-G. Danielmeyer. Unidirectional saturation spectroscopy, theory and short dipole lifetime limit. *Applied Physics A : Materials Science and Processing*, 11(1) :55–62, 1976.
- [109] G. S. Agarwal and T. N. Dey. Ultraslow light in inhomogeneously broadened media. *Phys. Rev. A*, 73(4) :043809, 2006.
- [110] E. Baldit, K. Bencheikh, P. Monnier, J. A. Levenson, and V. Rouget. Ultraslow light propagation in an inhomogeneously broadened rare-earth ion-doped crystal. *Phys. Rev. Lett.*, 95(14) :143601, 2005.
- [111] C. G. B. Garrett and D. E. McCumber. Propagation of a gaussian light pulse through an anomalous dispersion medium. *Phys. Rev. A*, 1(2) :305–313, 1970.
- [112] S. Chu and S. Wong. Linear pulse propagation in an absorbing medium. *Phys. Rev. Lett.*, 48 :738–741, 1982.

- [113] Robert W. Boyd, Daniel J. Gauthier, Alexander L. Gaeta, and Alan E. Willner. Maximum time delay achievable on propagation through a slow-light medium. *Phys. Rev. A*, 71(2) :023801, 2005.
- [114] N.N. Lepeshkin, A. Schweinsberg, M.S. Bigelow, G. Gehring, and R.W. Boyd. Slow and fast light propagation in erbium-doped fiber. In *Quantum Electronics and Laser Science Conference, 2005. QELS '05*, volume 1, May 2005.
- [115] A. Schweinsberg, N. N. Lepeshkin, M. S. Bigelow, R. W. Boyd, and S. Jarabo. Observation of superluminal and slow light propagation in erbium-doped optical fiber. *Europhysics Letters (EPL)*, 73(2) :218–224, 2006.
- [116] C. Moreau, F. Leplingard, L. Provost, C. Simoneau, X. Rejeaunier, P. Bousselet, L. Gasca, and D. Bayart. Patent :ep1289077 : Dual core fiber with rare earth doped ring, March 2003.
- [117] K.-J. Boller, A. Imamoglu, and S. E. Harris. Observation of electromagnetically induced transparency. *Phys. Rev. Lett.*, 66(20) :2593–2596, 1991.
- [118] Yong-qing Li and Min Xiao. Electromagnetically induced transparency in a three-level λ -type system in rubidium atoms. *Phys. Rev. A*, 51(4) :R2703–R2706, 1995.
- [119] J. E. Field, K. H. Hahn, and S. E. Harris. Observation of electromagnetically induced transparency in collisionally broadened lead vapor. *Phys. Rev. Lett.*, 67(22) :3062–3065, 1991.
- [120] P. R. Hemmer, A. V. Turukhin, M. S. Shahriar, and J. A. Musser. Raman-excited spin coherences in nitrogen-vacancy color centers in diamond,. *Opt. Lett.*, 26 :361–363, 2001.
- [121] F. Benabid, P. S. Light, F. Couny, and P. St.J. Russell. Electromagnetically-induced transparency grid in acetylene-filled hollow-core pcf. *Optics Express*, 13(15) :5694, 2005.
- [122] Saikat Ghosh, Jay E. Sharping, Dimitre G. Ouzounov, and Alexander L. Gaeta. Resonant optical interactions with molecules confined in photonic band-gap fibers. *Physical Review Letters*, 94(9) :093902, 2005.
- [123] Claude Cohen-Tannoudji. cours au collège de france – nouveaux mécanismes de refroidissement laser – 4ème cours etude générale de la configuration lambda. [http ://www.phys.ens.fr/cours/college-de-france/1991-92/1991-92.htm](http://www.phys.ens.fr/cours/college-de-france/1991-92/1991-92.htm), 1991–1992.
- [124] D.Dolfi. communication privée HBSM 2006, jun 2006.
- [125] Elena Kuznetsova, Olga Kocharovskaya, Philip Hemmer, and Marlan O. Scully. Atomic interference phenomena in solids with a long-lived spin coherence. *Phys. Rev. A*, 66(6) :063802, 2002.
- [126] Stéphan Briaudeau. communication privée, 2006.
- [127] Lars Rippe, Mattias Nilsson, Stefan Kroll, Robert Klieber, and Dieter Suter. Experimental demonstration of efficient and selective population transfer and qubit distillation in a rare-earth-metal-ion-doped crystal. *Phys. Rev. A*, 71(6) :062328, 2005.

- [128] B. S. Ham, M. S. Shahriar, M. K. Kim, and P. R. Hemmer. Frequency-selective time-domain optical data storage by electromagnetically induced transparency in a rare-earth-doped solid. *Opt. Lett.*, 22 :1849–1851, 1997.
- [129] E. Fraval, M. J. Sellars, and J. J. Longdell. Method of extending hyperfine coherence times in $\text{pr}^{3+}:\text{y}_2\text{시오}_5$. *Phys. Rev. Lett.*, 92(7) :077601, 2004.
- [130] S. Bertaina, S. Gambarelli, A. Tkachuk, I. N. Kurkin, B. Malkin, A. Stepanov, and B. Barbara. Rare-earth solid-state qubits. *Nature Nanotechnology*, 2 :39 – 42, 2007.
- [131] Aurélien Dantan. *Génération, stockage et manipulation d'états non classiques pour des ensembles atomiques et des champs électromagnétiques*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2005.
- [132] Mattias Nilsson, Lars Rippe, Stefan Kroll, Robert Klieber, and Dieter Suter. Hole-burning techniques for isolation and study of individual hyperfine transitions in inhomogeneously broadened solids demonstrated in $\text{pr}^{3+}:\text{y}_2\text{시오}_5$. *Phys. Rev. B*, 70(21) :214116, 2004.
- [133] Janus H. Wesenberg, Klaus Molmer, Lars Rippe, and Stefan Kroll. Scalable designs for quantum computing with rare-earth-ion-doped crystals. *Phys. Rev. A*, 75(1) :012304, 2007.

Abstract

Coherent and resonant interactions in an erbium doped crystal : coherent population oscillations and electromagnetically induced transparency

Resonant optical excitation of an atomic system results in an enhanced non linear response and allows to control light with light even with low optical powers. Moreover some coherent light- matter interactions can reduce or destroy the important absorption of the laser beams at resonance. Two of these coherent and resonant interactions are studied in this thesis, coherent population oscillations (CPO) and electromagnetically induced transparency (EIT), using a Y_2SiO_5 (YSO) crystal lattice doped with isotopically pure erbium 167.

CPO occurs in a two level system excited by a modulated intensity leading to a population beat. In this work, CPO is used to demonstrate ultra-slow light propagation down to 3 m/s in Er :YSO. Inhomogeneous broadening is specifically addressed in order to tuned both slowing down and transmission around $1.536 \mu\text{m}$.

EIT is obtained in a 3-level lambda-like atomic system, when excited on each leg by 2 coherent fields. The hyperfine structure of 167-erbium ions in this low symmetry crystal lattice is studied by electron spin resonance spectroscopy and optical hole-burning spectroscopy in order to identify several lambda systems. In a dedicated experimental setup a sideband of a fast-amplitude modulation is filtered out in order to create the second coherent field. EIT is demonstrated for the first time in an erbium doped solid at $1.536 \mu\text{m}$.

Keywords : erbium ions 167 isotope, hyperfine structure, hole-burning spectroscopy, electron spin resonance spectroscopy, slow light, electromagnetically induced transparency.

Résumé

L'excitation optique résonante de systèmes atomiques permet de bénéficier d'une réponse non linéaire exacerbée, qui ouvre la voie au traitement de la lumière par la lumière, même à faible intensité lumineuse. Certaines interactions lumière matière cohérentes permettent en outre de s'affranchir de la forte absorption associée à la résonance. Dans cette thèse deux effets cohérents et résonants ont été explorés dans un cristal d' Y_2SiO_5 (YSO) dopé aux ions erbium, isotope 167 : les oscillations cohérentes de populations (OCP) et la transparence induite électromagnétiquement (TIE).

Les OCP ont lieu dans un système à deux niveaux, excité par un faisceau d'intensité lentement variable. Dans cette thèse, les OCP ont notamment été utilisées pour ralentir la vitesse de propagation de la lumière dans le cristal à 3 m/s. Nous avons également démontré le bénéfice que représente l'élargissement inhomogène pour ajuster ralentissement et transmission.

La TIE est obtenue dans un système à 3 niveaux dit "en lambda" en excitant la cohérence Raman entre les 2 niveaux fondamentaux par 2 faisceaux optiques cohérents. Lors de la caractérisation de la structure hyperfine de l'erbium 167 dans YSO par spectroscopie par résonance paramagnétique électronique et creusement spectral nous avons mis en évidence plusieurs systèmes en lambda, utilisables pour la TIE. Un dispositif expérimental basé sur le filtrage d'une bande latérale issu de la modulation d'amplitude d'un faisceau laser continu a permis d'observer la TIE pour la première fois dans la matière condensée à $1.536 \mu\text{m}$.

Mots Clefs : erbium isotope 167 , structure hyperfine, creusement spectral, résonance paramagnétique électronique, oscillations cohérentes de population, lumière ultra-lente, transparence induite électromagnétiquement.