



**HAL**  
open science

# Étude de la dynamique des spins autour d'un ion erbium pour le développement de mémoires quantiques

Benjamin Car

► **To cite this version:**

Benjamin Car. Étude de la dynamique des spins autour d'un ion erbium pour le développement de mémoires quantiques. Physique Quantique [quant-ph]. Université Paris Saclay (COMUE), 2019. Français. NNT : 2019SACLS251 . tel-02339801

**HAL Id: tel-02339801**

**<https://theses.hal.science/tel-02339801>**

Submitted on 30 Oct 2019

**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.

# Étude de la dynamique des spins autour d'un ion erbium pour le développement de mémoires quantiques

Thèse de doctorat de l'Université Paris-Saclay  
préparée à Université Paris-Sud

École doctorale n°572 École doctorale Ondes et Matière (EDOM)  
Spécialité de doctorat : Milieux dilués et optique fondamentale

Thèse présentée et soutenue à Orsay, le 25 septembre 2019, par

**BENJAMIN CAR**

Composition du Jury :

Pascal Parneix Professeur, Université Paris-Sud (ISMO)	Président
Signe Seidelin Maître de conférences, Université Grenoble Alpes (Institut Néel)	Rapporteur
Wolfgang Tittel Professeur, Delft University of Technology (QuTech)	Rapporteur
Marie-Claire Schanne-Klein Directrice de recherche, École Polytechnique (LOB)	Examineur
Thierry Chanelière Chargé de Recherche, CNRS (Institut Néel)	Directeur de thèse



# Remerciements

Trois ans ... Une longue période dont la fin arrive traditionnellement trop vite. Même si avec ces quelques lignes j'achève avec joie la rédaction de mon manuscrit de thèse, ces années furent riches en apprentissages, en rencontres et en émotions.

Tout d'abord, il me semble légitime de te remercier Thierry, sans qui ces trois ans auraient forcément été différents. L'autocollant "invité" mis à l'envers sur ton tee-shirt pendant ton cours de M2 à supop ne m'a pas trompé. Tu as été très disponible tout au long de la thèse pour m'apprendre à ne pas cramer la pane du fer à souder, à modérer mes déprimés ou mes excès d'enthousiasme et tu as (à peu près) réussi à me tenir en place lorsqu'il fallait se mettre à bosser. C'est aussi grâce à toi que j'ai pu découvrir les bornes royales du plateau de Saclay ainsi que le massif de Belledonne où j'espère bien pouvoir passer plus de temps une fois la soutenance passée. Bref, merci pour tout ce que tu m'as appris et apporté!

Je ne pourrai pas non plus oublier les longues heures passées en salle de manip avec toi Lucile, toutes ces galères agrémentées par la radio reggae de FIP ou la douce voix de Janis Joplin. Je te souhaite le meilleur pour la suite même si apparemment tu me laisses seul avec le projet de vente de glaces à l'azote. Durant cette thèse, j'ai aussi compris que lorsque l'on est menacé par une terrible intégrale, la meilleure parade reste d'envoyer un petit mail à Jean-Louis. J'ai beaucoup appris des discussions avec toi et je resterai impressionné par ta maîtrise des calculs analytiques. Les repas au CESFO (que je remercie aussi pour les beignets au chocolat ou les fameux "browkies") n'auraient pas été les mêmes sans Anne et sa musique, Caroline et sa cuisine ainsi que Goulven et ses inconnus. Merci à vous trois et surtout, bon courage pour la suite!

La vie au labo ne s'arrête pas à l'équipe. Je remercie l'ensemble des doctorants du LAC pour avoir gardé une bonne ambiance, malgré certaines tensions présentes au laboratoire. Merci à toi Aurélien pour ces nombreux granolas partagés et pour le fameux week-end doctorant chez toi, parmi les vaches! J'espère que tu t'es fait à la grisaille écossaise et j'espère bien venir te voir un de ces jours. Merci aussi à Clément et Paul, pour l'organisation exemplaire des apéros, clef de voûte du lien social. Je suis aussi fier d'avoir lutté avec vous pour obtenir notre belle quatrième place au tri-relais de l'université! Et toi Kelly, j'espère vraiment que tu vas venir à mon pot de thèse pour m'aider à finir tous les gâteaux comme on en avait l'habitude. Je garde aussi un bon souvenir des moments musicaux des FLAC auxquelles j'ai eu le plaisir de participer ainsi que des quelques réunions du CLOR qui m'ont ouvert les yeux sur certains points. Et puis, merci pour ton soutien Thibault, au bureau comme à Arkose. Les journées auraient été longues sans tes playlists ou sans ce panier de basket! Du côté de Grenoble, je n'ai pas encore eu le temps de bien vous connaître mais grâce à vous, Marco, Hippolyte, Laurie et Pierre, la rédaction fut un peu moins rude. Pardonnez moi pour cette dernière place au tournoi de foot, j'espère qu'on aura l'occasion de faire des activités un peu plus proches de mes domaines de prédilection! Merci aussi à tous les autres, je ne vous oublie pas mais il ferait mauvais genre que les remerciements soient plus longs que ma conclusion.

Merci aussi à toutes les personnes du laboratoire ou de l'université avec lesquelles j'ai pu interagir. Je pense en particulier aux professeurs m'ayant donné le goût de la physique, en particulier M. Monange et M. Parneix. Merci aussi à Marie et à tous les moniteurs de Phys102. C'est avec vous que j'ai appris à réellement apprécier l'enseignement. Par ailleurs, cette thèse n'aurait pas eu lieu sans les financements accordés par l'école doctorale EDOM ainsi que l'université Paris-Sud qui m'a formé depuis la L3. Je remercie aussi Patrice, Philippe, Mikael et Sergey, collaborateurs m'ayant fait visiter leurs laboratoires ainsi que leurs doctorants pour les discussions pendant les différentes conférences auxquelles j'ai pu participer. Je pense particulièrement à toi Mansur, un guide parfait lors de mon séjour à Kazan. Et pour finir, je remercie d'avance les rapporteurs et les membres de mon jury de thèse. Vous ne savez pas encore ce pour quoi vous vous êtes engagés mais je vous souhaite bon courage pour la lecture de ce manuscrit que j'espère avoir rédigé de manière claire et intelligible.

Comme les deux tiers de la période de thèse se passent en dehors du laboratoire, elle n'aurait pas été si enrichissante sans ma maison bleue, l'inoubliable "Faisandière". J'y ai rencontré énormément de monde, passé des instants mémorables et découvert une seconde famille. Je ne peux pas ici dresser la liste de mes remerciements détaillés mais sachez que chacun d'entre vous m'a fait évoluer vers ce que je suis devenu aujourd'hui. J'espère vraiment que nous continuerons à sillonner la France pour se retrouver et faire durer l'aventure.

Je pense aussi aux amis de master, en particulier la colloc de Massy, toujours présents pour sortir et oublier les affres de la recherche en physique. Ceux de l'escalade, du cirque et de la salsa, que ce soit à Orsay ou à Grenoble, m'ont aussi permis de travailler une physique différente mais tout aussi intéressante!

Il m'est important de remercier le groupe orteil, qui m'a permis de produire plus d'un decillion de cookies lors de nombreuses acquisitions de données. Je ne peux pas non plus oublier la SNCF qui m'a permis de parcourir plus de 15000 km lors des cinq derniers mois. De nombreuses lignes de cette thèse y ont été écrites tant bien que mal.

Finalement merci aux plus proches qui ont dû supporter mes sautes d'humeur mais qui m'ont toujours rassuré dans les moments de doute. Mes pensées s'adressent en premier lieu à toi mon petit frère. Je te souhaite le meilleur pour la thèse que tu débutes et je suis certain que tu la réussiras brillamment. Je pense aussi particulièrement à mes parents, vous qui avez suivi et compris mon évolution lors de cette thèse. Ne vous inquiétez pas, avec le temps j'arriverai à faire quelque chose plus de trois ans sans me lasser! Puis Elena, j'espère que l'on continuera à se soutenir dans les moments difficiles, même lorsque ce sera au milieu de la jungle du Pérou...

Merci à tous

*"Il est temps de quitter la ville et de retrouver dans la contemplation des étoiles un peu de la sérénité indispensable à un bon travail scientifique"<sup>1</sup>*

---

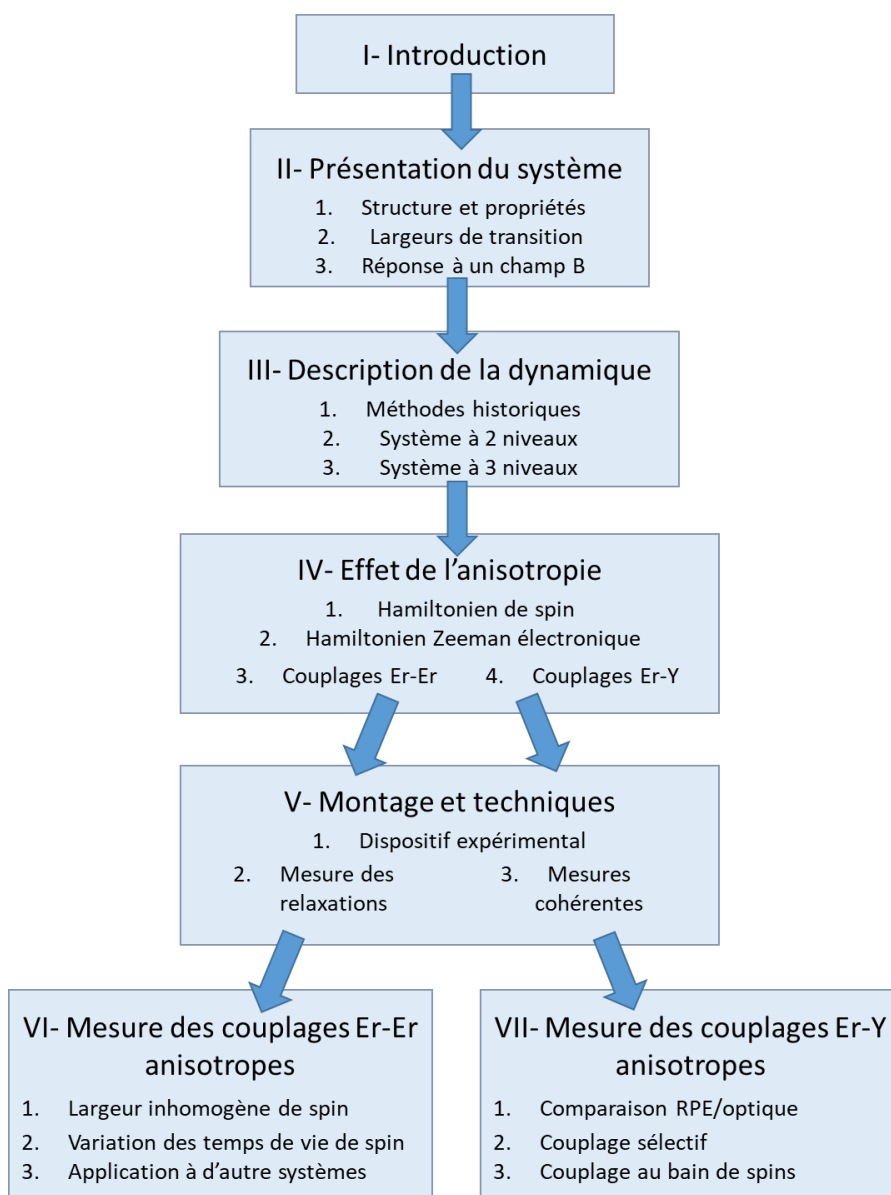
1. F.Trystram, Le Procès des étoiles

# Table des matières

<b>1</b>	<b>Introduction</b>	<b>11</b>
1.1	Mémoires quantiques et application aux communications longue distance . . . . .	12
1.2	Temps de cohérence et phénomènes de déphasage . . . . .	14
<b>2</b>	<b>Présentation du système <math>\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5</math></b>	<b>19</b>
2.1	Une matrice dopée adaptée aux télécommunications . . . . .	19
2.1.1	Propriétés des ions terre-rare . . . . .	19
2.1.2	Niveaux d'énergie de l'erbium en matrice . . . . .	20
2.1.3	Propriétés et symétries de la matrice $\text{Y}_2\text{SiO}_5$ . . . . .	22
2.2	Largeur de la transition optique . . . . .	24
2.2.1	Mesure de la transition à champ nul . . . . .	24
2.2.2	Largeurs inhomogène et homogène . . . . .	25
2.3	Réponse à un champ magnétique . . . . .	26
2.3.1	Anisotropie du spin effectif . . . . .	26
2.3.2	Anisotropie du rapport de branchement . . . . .	28
<b>3</b>	<b>Description formelle de la réponse dynamique</b>	<b>31</b>
3.1	Études historiques des couplages dipolaires . . . . .	31
3.1.1	Largeurs de transition en RMN et RPE . . . . .	31
3.1.2	Écho de spin et ESEEM . . . . .	32
3.2	Description théorique de la dynamique d'un système à deux niveaux . . . . .	33
3.2.1	Formalismes de Schrödinger et de la matrice densité . . . . .	33
3.2.2	Équations de Bloch-optique . . . . .	35
3.2.3	Limite des équations de taux . . . . .	37
3.2.4	Dynamique des cohérences . . . . .	37
3.3	Description théorique d'un système à trois niveaux . . . . .	41
3.3.1	Limite des équations de taux . . . . .	41
3.3.2	Dynamique des cohérences et battement de l'écho . . . . .	44
<b>4</b>	<b>Effet de l'anisotropie sur les couplages dipolaires magnétiques</b>	<b>49</b>
4.1	Description de l'hamiltonien de spin . . . . .	49
4.2	Hamiltonien Zeeman électronique . . . . .	50
4.2.1	Tenseurs anisotropes, repères et conventions . . . . .	50
4.2.2	Description de l'hamiltonien Zeeman électronique . . . . .	51
4.3	Couplages erbium-erbium . . . . .	54
4.3.1	Calcul général . . . . .	54
4.3.2	Variation du couplage dans $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ . . . . .	57
4.4	Couplages erbium-yttrium . . . . .	58

4.4.1	Calcul des énergies propres . . . . .	58
4.4.2	Vecteurs propres et rapport de branchement . . . . .	62
4.4.3	Effet de l'anisotropie de $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ . . . . .	63
<b>5</b>	<b>Montage et techniques expérimentales</b>	<b>65</b>
5.1	Dispositif expérimental . . . . .	65
5.1.1	Cryogénie . . . . .	65
5.1.2	Montage optique et faisceaux lasers . . . . .	66
5.1.3	Différents cristaux . . . . .	68
5.2	Mesure des relaxations de spin caractérisant les couplages erbium-erbium . . . . .	69
5.2.1	Creusement de trou spectral . . . . .	70
5.2.2	Excitation transitoire . . . . .	74
5.2.3	Mise en pratique des deux techniques . . . . .	75
5.3	Mesure cohérente caractérisant les couplages erbium-yttrium . . . . .	77
5.3.1	Décroissance de l'écho de photon . . . . .	77
5.3.2	Région d'étude des couplages super-hyperfins . . . . .	78
<b>6</b>	<b>Mesure des couplages erbium-erbium anisotropes</b>	<b>81</b>
6.1	Largeur inhomogène de spin . . . . .	81
6.1.1	Mesure par <i>hole-burning</i> . . . . .	82
6.1.2	Variations avec le champ magnétique . . . . .	83
6.2	Variations des temps de vie de spin . . . . .	85
6.2.1	Variation avec l'angle du champ magnétique . . . . .	85
6.2.2	Variation avec la concentration . . . . .	89
6.2.3	Variation avec la norme du champ magnétique . . . . .	90
6.3	Application à d'autres systèmes . . . . .	91
6.3.1	Différentes matrices . . . . .	91
6.3.2	Différents ions dopants dans $\text{Y}_2\text{SiO}_5$ . . . . .	93
6.3.3	Réduction de la concentration . . . . .	95
<b>7</b>	<b>Mesure des couplages erbium-yttrium anisotropes</b>	<b>97</b>
7.1	Une technique sensible à différents régimes de couplage . . . . .	97
7.1.1	Comparaison entre RPE et Optique . . . . .	97
7.1.2	Définition des régimes de champ fort et de champ faible . . . . .	100
7.2	Mesure d'un couplage super-hyperfin sélectif . . . . .	101
7.2.1	Conditions nécessaires au couplage sélectif . . . . .	101
7.2.2	Observation d'une modulation unique . . . . .	103
7.2.3	Variation des caractéristiques du couplage . . . . .	104
7.3	Couplage à un bain de spins . . . . .	105
	<b>Conclusion</b>	<b>107</b>
	<b>A Écho de photon pour un système à trois niveaux</b>	<b>111</b>
	<b>B Calcul de la moyenne du couplage carré entre ions erbium</b>	<b>115</b>
B.1	Moyenne radiale . . . . .	115
B.2	Moyenne angulaire . . . . .	116
B.2.1	Expression de $N$ . . . . .	116
B.2.2	Expression de $M$ . . . . .	117
B.2.3	Moyenne angulaire de $N$ . . . . .	118

B.2.4	Moyenne angulaire du carré du couplage . . . . .	118
<b>C</b>	<b>Expression du rapport de branchement superhyperfín</b>	<b>121</b>
<b>D</b>	<b>Couplages super-hyperfíns dans le régime de champ faible</b>	<b>123</b>
D.1	Contraste de modulation moyen . . . . .	123
D.2	Destruction de l'écho . . . . .	125
<b>Bibliographie</b>		<b>133</b>







# Principales notations utilisées

## Constantes

$g_Y = -0.27$  : Facteur  $g$  de l'yttrium

$h = 6.62 \times 10^{-34} \text{ J.Hz}^{-1}$  : Constante de Planck

$k = (h \times) 21 \text{ GHz.K}^{-1}$  : Constante de Boltzmann

$n_Y = 1.83 \times 10^{28} \text{ m}^{-3}$  : Densité d'yttrium dans  $\text{Y}_2\text{SiO}_5$

$\gamma_Y = (h \times) 2.1 \text{ MHz.T}^{-1}$  : Rapport gyromagnétique nucléaire des ions yttrium

$\mu_0 = 4\pi \times 10^{-7} \text{ T.m.A}^{-1}$  : Perméabilité magnétique du vide

$\mu_B = (h \times) 14 \text{ GHz.T}^{-1}$  : Magnéton de Bohr

$\mu_N = (h \times) 7.6 \text{ MHz.T}^{-1}$  : Magnéton nucléaire

## Autres grandeurs

$A$  : Aire d'une impulsion d'excitation (Eq. (3.28))

$A_1$  : Part relative de la de la décroissance exponentielle optique (Eq. (3.45))

$A_z$  : Part relative de la décroissance exponentielle de spin (Eq. (3.45))

$B$  : Champ magnétique appliqué<sup>2</sup>

$B_{eff}$  : Champ magnétique effectif au niveau d'un ion yttrium<sup>3</sup> (Eq. (4.34))

$B_{eq}$  : Champ magnétique équivalent (Eq. (4.13))

$B_{Er}$  : Champ local créé par le moment effectif de l'erbium<sup>4</sup> (Eq. (4.30))

$c$  : Concentration en ion dopant

$C$  : Contraste de modulation pour un système de trois niveaux Zeeman (Eq. (3.51))

$C_Y$  : Contraste de modulation optique pour un système de trois niveaux super-hyperfins<sup>5</sup> (Eq. (7.2))

$D_{Er}$  : Différence des champs locaux créés par l'erbium dans le fondamental et l'excité (Eq. (7.2))

$\bar{g}$  : Tenseur  $g$  caractérisant le spin effectif du milieu<sup>6</sup> (Eq. (2.7))

$H_n$  : Hamiltonien nucléaire (Eq. (4.27))

$H_{Ze}$  : Hamiltonien Zeeman électronique (Eq. (2.5))

$H_{Zn}$  : Hamiltonien Zeeman nucléaire (Eq. (4.2))

$H_{SI}$  : Hamiltonien de couplage super-hyperfin

$H_{SS}$  : Hamiltonien de couplage entre les spin des ions erbium

$I$  : Spin nucléaire des ions yttrium

$\mathcal{I}$  : Intensité de l'écho de photon (Eq. (3.31) et Eq. (3.49))

$n$  : Différence de population (Eq. (3.21))

$n_{Er}$  : Densité d'ions erbium dopants équivalents (Eq. (4.18))

---

2. Les caractères en gras correspondent aux grandeurs vectorielles.

3. Les grandeurs relatives à l'état excité sont toutes primées.

4. Les vecteurs unitaires sont surmontés d'un accent circonflexe.

5. Grandeur indexée par la lettre  $i$  pour les différents ligands.

6. Ses composantes sont indexées  $x, y, z$  dans le repère  $(D_1, D_2, b)$  et  $X, Y, Z$  dans le repère diagonal.

- $\mathcal{N}$  : Norme du champ équivalent (Eq. (4.10))  
 $P$  : Matrice de passage du repère  $(D_1, D_2, b)$ , vers le repère diagonal (Eq. (4.4))  
 $\mathbf{r}$  : Position entre deux ions erbium dans le repère diagonal (Fig. 4.4)  
 $r_Y$  : Position entre un ion erbium et un yttrium dans le repère  $(D_1, D_2, b)$  (Fig. 4.7)  
 $R$  : Rapport de branchement entre niveaux Zeeman (Eq. (2.9))  
 $R_Y$  : Rapport de branchement entre niveaux super-hyperfins (Eq. (4.33))  
 $\mathcal{R}$  : Taux de basculement réciproque (Eq. (4.15))  
 $\mathcal{S}$  : Spin électronique des ions erbium  
 $\mathbf{S}_{Er}$  : Somme des champs locaux créés par l'erbium dans le fondamental et dans l'excité (Eq. (7.2))  
 $T$  : Température du système  
 $T_1$  : Temps de vie du premier état excité (Fig. 3.5)  
 $T_2$  : Temps de cohérence de la transition optique  
 $T_z$  : Temps de vie de spin dans l'état fondamental (Fig. 3.5)  
 $W$  : Taux de pompage (Eq. (3.25))  
 $W_{ij}$  : Hamiltonien d'interaction entre deux dipôles (Eq. (1.3))  
 $Y_i$  :  $i^{\text{ème}}$  plus proche voisin yttrium  
 $x$  : Coefficient de Mims (Eq. (5.6))  
 $\alpha^{\text{abs}}$  : Coefficient d'absorption du milieu (Eq. (2.3))  
 $\alpha$  : Force de la transition optique directe (Fig. 3.5)  
 $\beta$  : Force de la transition optique croisée (Fig. 3.5)  
 $\Delta$  : Désaccord entre l'excitation laser et la transition optique (Fig. 3.2)  
 $\Delta_{sf}$  : Différence de fréquence entre deux niveaux quelconques dans l'état fondamental (Eq. (3.47))  
 $\Delta_Y$  : Différence de fréquence entre deux niveaux super-hyperfins de l'état fondamental (Eq. (4.32))  
 $\Delta_\alpha$  : Différence entre l'absorption à l'équilibre et l'absorption à résonance (Eq. (5.4))  
 $\Delta g$  : Éclatement Zeeman entre les niveaux de spin de l'état fondamental (Eq. (2.6))  
 $\Delta\nu$  : Largeur spectrale des impulsions d'excitation (Eq. (5.5))  
 $\Gamma_h$  : Élargissement homogène de la transition optique (Eq. (2.4))  
 $\Gamma_{inh}$  : Élargissement inhomogène de la transition optique (Fig. 2.6)  
 $\Gamma_{inh,s}$  : Elargissement inhomogène de la transition de spin (Fig. 5.6)  
 $\vartheta$  : Co-latitude du champ magnétique appliqué dans le repère  $(D_1, D_2, b)$  (Eq. (2.8))  
 $\theta$  : Co-latitude relative entre deux ions erbium dans le repère diagonal (Fig. 4.4)  
 $\theta_Y$  : Co-latitude relative entre un erbium et un ion yttrium dans le repère  $(D_1, D_2, b)$  (Fig. 4.7)  
 $\Theta$  : Co-latitude du champ équivalent dans le repère diagonal (Fig. 4.4)  
 $\boldsymbol{\mu}_{eff}$  : Moment magnétique effectif de l'erbium (Eq. (4.26))  
 $\boldsymbol{\mu}_{Er}$  : Moment magnétique de l'erbium exprimé dans le repère diagonal (Eq. (4.6))  
 $\langle \boldsymbol{\mu}_{Er} \rangle$  : Dipôle moyen de l'erbium (Eq. (4.12))  
 $\Xi$  : Moyenne de la partie angulaire du taux de basculement réciproque (Eq. (4.17))  
 $\rho$  : Matrice densité réduite<sup>7</sup> (Eq. (3.5))  
 $\Sigma$  : Indicateur du régime de couplage super-hyperfin (Eq. (7.3))  
 $\tau$  : Temps d'attente entre deux impulsions d'une séquence d'écho (Fig. 3.4)  
 $\varphi$  : Longitude du champ magnétique appliqué dans le repère  $(D_1, D_2, b)$  (Eq. (2.8))  
 $\phi$  : Longitude relative entre deux ions erbium dans le repère diagonal (Fig. 4.4)  
 $\phi_Y$  : Longitude relative entre un erbium et un ion yttrium dans le repère  $(D_1, D_2, b)$  (Fig. 4.7)  
 $\Phi$  : Longitude du champ équivalent dans le repère diagonal (Fig. 4.4)  
 $\Omega$  : Fréquence de Rabi (Eq. (3.13))

---

7. Les grandeurs exprimées dans le référentiel tournant sont tildées.

# Chapitre 1

## Introduction

*"It seems probable that most of the grand underlying principles have been firmly established [...]" - A. Michelson, 1894<sup>1</sup>.*

Le moins que l'on puisse dire est que le XX<sup>ème</sup> siècle s'opposa à la déclaration de cet illustre expérimentateur. Les prédictions visionnaires des scientifiques du début de ce siècle ont littéralement bouleversé notre manière d'appréhender le monde qui nous entoure. Les améliorations techniques permettent aujourd'hui de démontrer ce qui était alors indémontrable et de découvrir des pans entiers de nouvelles physiques.

L'un des exemples les plus probants est la mécanique quantique, transcription de la mécanique usuelle à l'échelle de l'atome. De notre point de vue macroscopique, les phénomènes œuvrant à cette échelle semblent souvent contre-intuitifs. Tout au long du siècle, les observations expérimentales permirent néanmoins de vérifier cette théorie et de nous familiariser avec les notions de superposition d'état, d'intrication ou de réduction du paquet d'onde [1].

Ces propriétés intrigantes sont les fondements de l'information quantique. Dans ce cadre là, l'unité d'information est une superposition d'état, aussi appelée *quantum bit* ou *qubit* par opposition aux *bits* logiques utilisés en électronique classique. Les propriétés quantiques de cette information peuvent alors être utilisées à bon escient pour optimiser la vitesse de certains calculs [2] ou pour assurer la sécurité des communications [3]. Toutefois, un élément supplémentaire est nécessaire au développement de ces applications : les mémoires quantiques.

---

1. Dedication of the University of Chicago's Ryerson Physical Laboratory.

## 1.1 Mémoires quantiques et application aux communications longue distance

Pour comprendre les enjeux du domaine de recherche dans lequel s'insère cette thèse, je vais commencer par présenter la notion de mémoire quantique. La majorité des protocoles d'information quantique met en scène des *qubits* mobiles, porteurs rapides de la superposition d'état. Les photons, quanta de lumière, en sont un exemple naturel. Des *qubits* stationnaires sont alors nécessaires pour agir sur cette superposition. Ce rôle peut être joué par la matière, capable de se coupler aux photons et d'en modifier l'information. Une mémoire quantique est définie comme l'interface permettant le transfert de l'information quantique entre lumière et matière, de manière réversible et contrôlée. Elle est caractérisée, entre autres, par son temps de stockage et son efficacité à re-émettre cette information. Depuis plus d'une vingtaine d'années, de nombreuses équipes scientifiques cherchent à réaliser des mémoires quantiques et à optimiser leurs propriétés [4, 5, 6, 7]. L'activité de ce domaine de recherche est motivée par leurs applications allant du calcul quantique à la détection de photons uniques [8].

Plusieurs protocoles permettent le transfert d'information entre lumière et matière. Ils sont généralement regroupés en deux catégories. Ceux de la première reposent sur le contrôle optique de systèmes à trois niveaux, dits en  $\Lambda$ . Lorsque le contrôle est résonant, le phénomène d'*EIT* (*Electromagnetically Induced Transparency*) permet le stockage de la superposition quantique dans des états de la matière appelés états noirs [9]. L'arrêt du contrôle rend ces états stables et l'information y est stockée jusqu'à l'envoi d'une seconde excitation. Lorsque le contrôle est non résonant, le transfert d'information est tout de même permis par diffusion Raman [10]. Le second type de protocole est basé sur la technique d'écho de photon dans un milieu à élargissement inhomogène [11]. L'émission spontanée rend cette technique trop bruitée pour le stockage quantique [12]. Il est néanmoins possible de l'adapter, après avoir transféré l'information sur une petite fraction de l'élargissement. Les protocoles de type *CRIB* (*Controlled and Reversible Inhomogeneous Broadening*) reposent sur l'application d'un déphasage réversible des cohérences du système [13]. Ce dernier peut être provoqué par un champ électrique extérieur [14], un champ magnétique [15] ou par une modification de l'accord de phase dans le cas du protocole *ROSE* (*Revival Of Silenced Echo*) [16]. La matière re-émet l'information lorsque les cohérences se retrouvent en phase, une fois le déphasage inverse appliqué. La technique de l'*AFC* (*Atomic Frequency Comb*) est tout aussi prometteuse [17, 18]. L'information y est stockée sur plusieurs modes du spectre d'absorption, préparé sous la forme d'un peigne en fréquence. Elle est alors re-émise en un temps égal à l'inverse de la période spectrale de ce peigne. Même pour cette seconde catégorie, un système en  $\Lambda$  est nécessaire à la préparation du système ainsi qu'à son contrôle.

Ces protocoles peuvent être appliqués sur des supports tout aussi variés. Cependant, l'absorption d'un photon par un atome isolé est souvent peu probable. Pour augmenter cette probabilité, il est nécessaire d'utiliser des systèmes plus complexes. La première idée a été d'augmenter le couplage lumière-matière en enfermant un atome dans une cavité optique [19]. Un raisonnement similaire a ouvert le champ de l'électrodynamique quantique sur circuits, où un atome artificiel piégé dans une cavité supraconductrice se couple à un photon micro-ondes [20]. Une autre piste consiste à utiliser un milieu composé d'un grand nombre d'atomes, pour atteindre une profondeur optique élevée. Par exemple, les vapeurs atomiques à température ambiante [21] ou froides [22], en cellule ou piégées dans un *MOT* (*Magneto-optical trap*), sont bien adaptées aux protocoles de type *EIT* ou Raman. La durée de stockage dans ces systèmes est limitée par leurs temps de cohérence, de l'ordre de quelques  $\mu\text{s}$ . Ces temps peuvent s'élever à plusieurs secondes en piégeant les atomes dans un réseau optique [23].

Ils peuvent être encore supérieurs dans des systèmes à l'état solide. Parmi eux, les matrices cristallines dopées aux ions terre-rare présentent des caractéristiques intéressantes à basses températures [24]. D'une part, elles peuvent avoir de bonnes efficacités de stockage [25] (69% dans  $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ ); d'autre part, la présence de spins nucléaires qui interagissent faiblement avec l'environnement permet d'atteindre des stabilités records. Autour de certaines valeurs de champ magnétique, le gradient en fréquence de la transition optique peut être nul (points *ZEFOZ*, pour *ZEro First-Order-Zeeman*) [26]. Ces configurations minimisent les instabilités magnétiques et les temps de cohérence peuvent alors durer plusieurs heures [27] (310 min dans  $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ ). D'autres spins nucléaires de systèmes à l'état solide sont aussi exploités en tant que *qubits* stables et ont des temps de cohérence dépassant la seconde. Ceci concerne par exemple les donneurs dans le silicium [28] ou les spins des défauts du diamant [29].

Des systèmes hybrides sont aussi en cours de développement. Ils permettent par exemple d'isoler quelques spins d'un état solide en utilisant des cavités supraconductrices [30] ou des nano-cavités optiques [31, 32]. Nous pouvons donc voir que la recherche avance en parallèle sur une multitude de systèmes. Le choix de l'un d'entre eux se fait selon les caractéristiques souhaitées de la mémoire.

Une application phare des mémoires quantiques est le transport sécurisé d'informations sur de longues distances [33]. Comme dans le cas classique, les photons porteurs de l'information sont atténués au cours de leur propagation. Dans les fibres optiques, cette atténuation est minimisée pour les longueurs d'onde de la bande C des télécommunications (1530 nm-1560 nm). Elle y vaut tout de même  $0.2 \text{ dB.km}^{-1}$  [34, chap. 1.4] et diminue de moitié (3 dB) l'intensité de l'information au bout de 15 km seulement. Le protocole du répéteur quantique [35, 36] permet théoriquement d'outrepasser cet effet et de propager une information quantique sur des distances supérieures à la centaine de km. Des mémoires sont nécessaires à la réalisation de ce protocole. Leurs temps de cohérence doivent alors être supérieurs au temps que met l'information à parcourir tout le réseau, typiquement au delà de la centaine de  $\mu\text{s}$ . Ces mémoires sont donc optimales si elles sont capables de stocker un photon aux longueurs d'onde Télécom durant un temps relativement long. Ces deux conditions limitent le choix du système à utiliser.

Parmi ceux que j'ai présentés, le système  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$  est un des seuls qui possède une transition directe dans la bande C. La première démonstration de stockage dans le régime du photon unique sur cette matrice cristalline dopée à l'erbium a été faite par le protocole *CRIB* [37]. Sa réalisation nécessite une préparation préalable, effectuée par pompage optique sur un système en  $\Lambda$ . Nous verrons que ceci requiert l'application d'un champ magnétique extérieur levant la dégénérescence des spins électroniques du système. Sous un champ de 1.5 mT, le stockage du photon unique a pu se faire durant 600 ns avec une efficacité inférieure au %. Les caractéristiques de ce système prometteur semblent bien inférieures à celles d'autres plateformes [38]. De nouvelles pistes sont donc envisagées comme le stockage sur la transition de spin [39], l'utilisation des spins nucléaires de l'erbium [40, 41] ou celle des fibres dopées à cet élément [42].

Cependant, il existe des champs magnétiques pour lesquels la transition optique de  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$  présente de meilleurs temps de cohérence. Ces temps peuvent aller jusqu'à plusieurs ms aux champs élevés [43]. Toutefois, les niveaux du système en  $\Lambda$  sont alors trop éloignés pour permettre une préparation efficace par pompage optique. Ceci n'est possible que pour des champs magnétiques faibles, allant de quelques mT à plusieurs dizaines de mT. Pour autant, cette région est encore peu étudiée et reste mal comprise. Pour illustrer ce point, je vais maintenant présenter succinctement la variation des temps de cohérence en fonction du champ magnétique.

## 1.2 Temps de cohérence et phénomènes de déphasage

Le temps de cohérence, noté  $T_2$ , correspond au temps durant lequel une information peut être conservée dans sa globalité au sein de la matière. Le déphasage de ses dipôles, aussi appelé décohérence, constitue une perte de la phase de cette information. L'origine de ces déphasages provient dans notre cas des fluctuations magnétiques qui modifient l'environnement des ions actifs (sur lesquels on stocke l'information) et décalent en fréquence leurs transitions. Ce phénomène, appelé diffusion spectrale, peut être provoqué par le basculement de n'importe quel spin du système.

La mesure du temps de cohérence d'une matrice dopée aux ions terre-rare se fait communément par écho de photon (technique que je détaillerai dans la partie 3.2.4). Pour  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ , nous observons dans Fig. 1.1 que ces temps varient fortement avec la norme du champ magnétique. Pour comprendre ces variations, il est nécessaire de s'intéresser aux interactions présentes dans ce système. Autour d'un ion erbium actif excité se trouvent principalement les spins de même nature restés dans l'état fondamental ainsi que les spins nucléaires des ions yttrium ligands. Leurs basculements et leurs interactions avec l'erbium peuvent limiter le temps de cohérence.

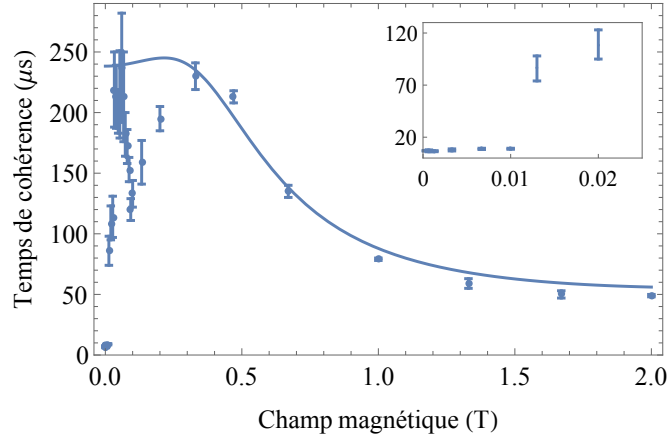


FIGURE 1.1 – Variation du temps de cohérence d'un cristal de  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$  dopé à 10 ppm en fonction de la norme du champ magnétique appliqué. L'orientation du champ est de  $225^\circ$  (défini dans la partie 2.3). Le grossissement en haut à droite permet de voir les temps de cohérence mesurés pour les champs inférieurs à 20 mT. La ligne continue représente la variation prédite par le modèle historique de T. Böttger [44]. Elle est calculée grâce à Eq. (1.1) avec  $\alpha_{\text{spin}} = 30 \text{ Hz}$ ,  $\alpha_{\text{ph}} = 5 \text{ Hz}\cdot\text{T}^{-5}$  et  $\Gamma_{\text{max}} = 100 \text{ kHz}$ .

Les vibrations de la matrice, aussi appelées phonons, sont une première cause du basculement des spins du système. Il existe différents processus d'interaction entre ces phonons et les spins. Comme nous travaillons à des températures aux alentours de 2 K, les processus à deux phonons Raman et Orbach sont négligeables [45]. Je considérerai donc uniquement le processus direct à un phonon. Le taux de ce couplage augmente avec l'écart entre les niveaux de spin. Il est proportionnel à  $B^4$  aux champs magnétiques faibles [46], lorsque l'éclatement de ces niveaux est inférieur à l'agitation thermique  $kT$  (80 GHz pour  $T = 2 \text{ K}$ ). Comme il vaut environ 500 Hz à 1 T [44], je peux estimer la variation de ce couplage direct aux faibles champs magnétiques (voir Fig. 1.2). L'interaction des phonons avec les spins nucléaires des ions yttrium est quant à elle négligeable [44]. En effet, leurs éclatements sont inférieurs au MHz, fréquences pour lesquelles la densité de phonon est très faible [47, chap. 5.3].

La deuxième cause de ces basculements est le basculement réciproque (*flip-flops* en anglais) de deux spins équivalents mais opposés [48]. Cette interaction conserve l'énergie totale, l'effet d'un basculement compensant celui de l'autre. Lorsque l'excitation thermique n'est plus suffisante pour peupler les différents niveaux de spin, le système se polarise et la probabilité de ce phénomène diminue. Ce phénomène concerne les spins de l'erbium dans l'état fondamental et les spins des ligands yttrium. L'effet de ces derniers sur la décohérence est négligeable au premier ordre [49, 44].

Afin d'en montrer les limites, je reviens ici un instant sur le modèle historique de la diffusion spectrale. Celle-ci a été étudiée en détail pour des champs supérieurs à 500 mT par le groupe de l'université de Bozeman [44, 43, 50]. Ce modèle semi-empirique inclut l'effet des basculements réciproques des ions erbium et de leur couplage direct aux phonons. Dans la limite où la diffusion spectrale domine tous les autres phénomènes de décohérence, l'équation (2) de [43] peut s'écrire

$$T_2 \approx \frac{2}{\sqrt{\pi\Gamma_{SD}\mathcal{R}}} \quad (1.1)$$

$$\text{avec } \begin{cases} \Gamma_{SD} = \Gamma_{\max} \operatorname{sech}^2\left(\frac{g\mu_B B}{2kT}\right) \\ \mathcal{R}(B) = \alpha_{\text{spin}} g^4 \operatorname{sech}^2\left(\frac{g\mu_B B}{2kT}\right) + \alpha_{\text{ph}} g^3 B^5 \coth\left(\frac{g\mu_B B}{2kT}\right). \end{cases} \quad (1.2)$$

$\mathcal{R}$  correspond au taux de basculement des spins de l'erbium tandis que  $\Gamma_{SD}$  est la variation spectrale qu'ils impliquent sur l'ion actif. Le magnéton de Bohr présent dans cette équation vaut  $\mu_B = 14 \text{ GHz}\cdot\text{T}^{-1}$ . Les sécantes hyperboliques rendent compte de la polarisation des spins aux champs forts. Les paramètres  $\Gamma_{\max}$ ,  $\alpha_{\text{ph}}$  et  $\alpha_{\text{spin}}$  sont laissés libres. Il est important de noter que ces formules sont établies pour un spin effectif isotrope, caractérisé par le facteur  $g$ . Nous verrons dans la partie 2.3 que ceci est une forte approximation.

La courbe pleine dans Fig. 1.1 correspond à l'ajustement de ce modèle à nos données expérimentales. Dans la zone des champs élevés, l'accord est satisfaisant. Un maximum est atteint vers 300 mT lorsque l'effet des phonons devient négligeable devant celui des basculements réciproques. En deçà, le modèle ne permet plus d'expliquer les variations mesurées. Les temps de cohérence ont tendance à diminuer avec le champ magnétique. Cet effet a déjà été observé dans d'autres systèmes [51]. De plus, le pic de cohérence aux alentours de 50 mT ainsi que le palier de temps très courts en deçà de 15 mT ne sont pas prédits par le modèle.

Les basculements des spins entourant un ion erbium ne suffisent pas à expliquer les mesures obtenues pour de faibles champs magnétiques. Afin de compléter le modèle de décohérence, énumérons les interactions intervenant entre les différents spins du système. Dans  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ , des couplages dipolaires peuvent intervenir entre deux dopants erbium, deux ligands yttrium ou entre un erbium et un yttrium. Les deux premiers sont des basculements réciproques tandis que le troisième est dit super-hyperfin. Les deux derniers couplages sont absents du modèle historique. Comparons l'ordre de grandeur de ces trois interactions.



De manière générale, le couplage entre deux spins  $i$  et  $j$  s'exprime en Hz comme [52, chap. 4]

$$W_{ij} = \frac{h\mu_0}{4\pi r_{ij}^3} (\boldsymbol{\mu}_i \cdot \boldsymbol{\mu}_j - 3(\boldsymbol{\mu}_i \cdot \hat{\mathbf{r}}_{ij})(\boldsymbol{\mu}_j \cdot \hat{\mathbf{r}}_{ij})). \quad (1.3)$$

Dans cette formule apparaissent les deux moments magnétiques qui interagissent,  $\boldsymbol{\mu}_i$  et  $\boldsymbol{\mu}_j$ , exprimés en  $\text{Hz} \cdot \text{T}^{-1}$ . Le vecteur unitaire noté  $\hat{\mathbf{r}}_{ij}$  correspond à l'orientation relative de ces dipôles. Les termes  $h$  et  $\mu_0$  représentent la constante de Planck et la perméabilité magnétique du vide. Le moment magnétique nucléaire des ions yttrium vaut  $\frac{1}{2}\gamma_Y$  avec le rapport gyromagnétique  $\gamma_Y = 2.1 \text{ MHz} \cdot \text{T}^{-1}$ . Dans la matrice  $\text{Y}_2\text{SiO}_5$ , la densité de ces spins vaut  $n_Y = 1.83 \times 10^{28} \text{ m}^{-3}$ , répartie sur deux sites non équivalents. Comme nous souhaitons limiter les interactions entre ions erbium, porteurs de l'information, nous travaillons avec des systèmes dilués. Supposons qu'ils se substituent aux ions yttrium avec un taux de dopage de 10 ppm (parties par million). La densité d'erbium  $n_{Er}$  est donc bien plus faible que celles des ligands yttrium. Cependant, ceci est compensé par l'exaltation du moment électronique de l'erbium. Nous verrons qu'il vaut en moyenne  $\frac{9}{2}\mu_B \sim \frac{8}{2}\mu_B$  dans l'état fondamental (voir partie 2.3). Nous pouvons donc estimer :

$$\begin{aligned} W_{Y-Y} &\rightarrow \frac{h\mu_0}{4\pi} \frac{n_Y}{2} \left(\frac{1}{2}\gamma_Y\right)^2 \approx 1 \text{ Hz} \\ W_{Er-Er} &\rightarrow \frac{h\mu_0}{4\pi} \frac{n_{Er}}{2} \left(\frac{8}{2}\mu_B\right)^2 \approx 20 \text{ kHz} \\ W_{Er-Y} &\rightarrow \frac{h\mu_0}{4\pi} \frac{n_Y}{2} \left(\frac{8}{2}\mu_B\right) \left(\frac{1}{2}\gamma_Y\right) \approx 35 \text{ kHz} \end{aligned} \quad (1.4)$$

Les ordres de grandeur des interactions à l'œuvre dans  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$  sont résumés dans Fig. 1.2. Il est clair que pour les conditions dans lesquelles nous travaillons, le couplage  $W_{Y-Y}$  peut être négligé devant les autres interactions. De plus, pour des champs magnétiques inférieurs à 500 mT, le couplage aux phonons est lui aussi négligeable. Les interactions dominantes  $W_{Er-Er}$  et  $W_{Er-Y}$  sont du même ordre de grandeur. Ces deux interactions doivent être étudiées en détail afin de mieux comprendre les variations du temps de cohérence.

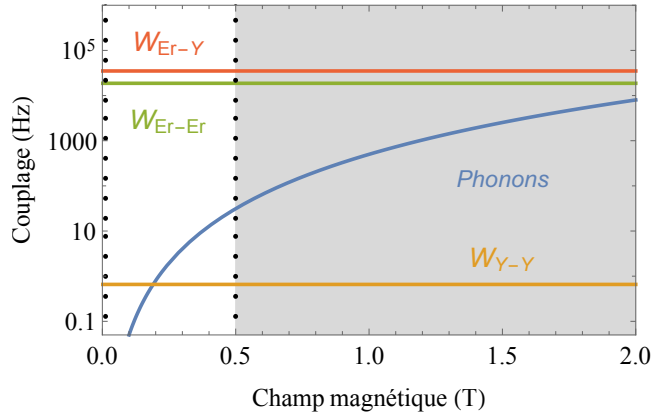


FIGURE 1.2 – Ordres de grandeur des interactions ayant lieu dans le système  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ , à  $T \simeq 2 \text{ K}$ . La zone délimitée par les lignes en pointillés correspond aux champs faibles que nous souhaitons étudier, où seules les interactions erbium-erbium et erbium-yttrium sont à considérer.

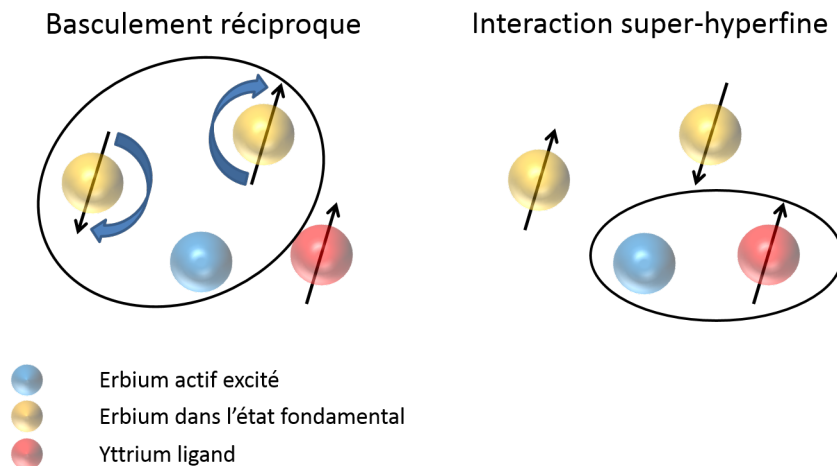


FIGURE 1.3 – Représentation schématique des deux phénomènes étudiés. Les basculements réciproques et les interactions super-hyperfines sont les deux interactions dominantes aux faibles champs magnétiques.

La zone des faibles champs magnétiques est adaptée à la réalisation de mémoires quantiques. Les phénomènes de décohérence y restent cependant mal compris. Dans cette zone, le temps de cohérence du système subit l'influence de deux couplages très différents : les basculements réciproques entre les spins électroniques des ions erbium dans l'état fondamental et l'interaction super-hyperfine de ces spins avec les spins nucléaires des ligands yttrium. De plus, les basculements réciproques y sont l'unique cause des basculements de spin de l'erbium car les phonons sont négligeables. Cette thèse est consacrée à l'étude de ces deux couplages dans  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ , pour des champs magnétiques inférieurs à 500 mT.

Nous verrons tout d'abord que  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$  est un système complexe présentant des propriétés anisotropes (chapitre 2). Les couplages erbium-erbium y seront étudiés par le biais de la dynamique des populations. L'étude des couplages erbium-yttrium se fera quant à elle en observant l'évolution des cohérences (chapitre 3). Je montrerai par le calcul que l'anisotropie du système a une grande influence sur ces couplages (chapitre 4) puis je détaillerai les techniques expérimentales spécifiques permettant de vérifier nos prédictions (chapitre 5). Nos modèles incluant l'anisotropie seront validés par l'expérience et permettront plusieurs conclusions intéressantes. D'une part, nous verrons qu'il est possible de réduire les interactions erbium-erbium dans certaines conditions particulières (chapitre 6) ; d'autre part, l'anisotropie permettra l'étude sélective d'un couplage erbium-yttrium et soulignera l'importance de ces couplages sur la cohérence du système aux faibles champs magnétiques (chapitre 7).

Au delà de l'application du répéteur quantique, ce travail est motivé par la volonté de comprendre la dynamique des spins au sein d'un système anisotrope. Les raisonnements pourront s'appliquer à la majorité des matrices dopées aux ions terre-rare mais parfois aussi à d'autres systèmes à l'état solide comme les donneurs dans le silicium [28] ou les défauts du diamant [29].



## Chapitre 2

# Présentation du système $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$

Les cristaux dopés aux ions terre-rare sont des systèmes prometteurs pour la réalisation de mémoires quantiques. Leur grande modularité est à l'origine de transitions aux longueurs d'onde variées. Dans cette partie, je vais me focaliser sur le système  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$  en particulier. La description de ses niveaux d'énergie permettra de présenter la transition optique aux longueurs d'onde Télécom étudiée tout au long de cette thèse. Je mesurerai alors sa largeur et décrirai les différents élargissements de cette transition ; puis je finirai par observer sa réponse à un champ magnétique extérieur, paramètre important pour le stockage quantique. Celle-ci révélera le caractère anisotrope du système, point clef de mon analyse.

### 2.1 Une matrice dopée adaptée aux télécommunications

#### 2.1.1 Propriétés des ions terre-rare

Le terme terre-rare englobe tous les lanthanides du tableau de Mendeleïev, auxquels s'ajoutent le scandium et l'yttrium (voir Fig. 2.1). Découverts en partie en 1794 dans les mines d'Ytterby en Suède, ces éléments mirent plus d'un siècle à être séparés, classés et purifiés. Malgré leur nom, dû à la découverte tardive des minerais les contenant, ces éléments sont généralement abondants dans la croûte terrestre.

D'après la règle de Klechkowsky, la majorité des terres-rares présente une structure électronique de la forme

$$(\text{coeur})^{46}5s^25p^64f^n5d^16s^2 \quad \text{avec} \quad 1 \leq n \leq 13, \quad (2.1)$$

en allant du cérium ( $Z=58$ ) à l'ytterbium ( $Z=70$ ). Leur forme ionique stable est majoritairement trivalente. Les niveaux auxquels on s'intéresse sont ceux de la couche  $4f$ . Celle-ci est protégée de l'environnement par les couches  $5s$  et  $5p$ , dont les distances au noyau sont supérieures. Cet isolement est à l'origine des longs temps caractéristiques que présentent ces éléments et favorise le phénomène d'inversion de population indispensable au laser [53].

Même s'ils partagent tous cette caractéristique, les différents ions terre-rare ont leurs spécificités. Ceux qui possèdent un nombre impair d'électrons de valence sont appelés ions Kramers. Ils présentent des niveaux de spin électronique dégénérés appelés doublets de Kramers [54]. Les autres ions sont dits non-Kramers et ne possèdent qu'un spin nucléaire. Ceci a une grande influence sur la dynamique de ces systèmes.

**TABLEAU PÉRIODIQUE DES ÉLÉMENTS**

NUMÉRO DU GROUPE RECOMMANDATIONS DE L'IUPAC (1985)      NUMÉRO DU GROUPE CHEMICAL ABSTRACT SERVICE (1986)

NUMÉRO ATOMIQUE      MASSE ATOMIQUE RELATIVE (1)

SYMBOLE      NOM DE L'ÉLÉMENT

Copyright © 2017 Eri General

www.periodni.com

(1) Atomic weights of the elements 2013. Pure Appl. Chem., 88, 265-291 (2016)

FIGURE 2.1 – Tableau de Mendeleïev. Les éléments appelés terre-rare sont entourés en rouge. Extrait du site [www.periodni.com](http://www.periodni.com)

### 2.1.2 Niveaux d'énergie de l'erbium en matrice

Parmi les terres-rares, l'erbium ( $Z=68$ ) se démarque par sa transition dans la bande C des télécommunications optiques. Parmi les isotopes stables de cet élément,  $^{166}\text{Er}$ ,  $^{168}\text{Er}$  et  $^{170}\text{Er}$  (respectivement 33.5%, 27.0% et 14.9% de l'abondance naturelle) ont un spin électronique mais pas de spin nucléaire. Tout au long de cette thèse, nous négligerons l'isotope impair  $^{167}\text{Er}$  (22.9%) possédant un spin nucléaire  $I = \frac{7}{2}$ . En effet, sous un champ magnétique, la population atomique est répartie sur les 16 niveaux de ses doublets de Kramers. Par conséquent, les transitions issues de ces niveaux présentent des absorptions très faibles par rapport à celles des autres isotopes. Lorsqu'un ion erbium est inséré dans une matrice cristalline, la protection par ses couches externes réduit son interaction avec l'environnement. Cette dernière peut être considérée comme une perturbation [55, chap. 1.1]. Ainsi, pour décrire les états du système, nous pouvons utiliser le formalisme de la physique atomique. Décrivons pas à pas les différents phénomènes qui induisent la structure de niveau présentée dans Fig. 2.2.

1. L'hamiltonien d'un ion erbium libre peut être résolu à l'aide de la théorie de Hartree-Fock [55, chap. 1.3]. Le niveau considéré possède onze électrons (Eq. (2.1) avec  $n = 11$ ). En utilisant la notation de Russell-Saunders, son état fondamental s'écrit  $^4I_{15/2}$  tandis que  $^4I_{13/2}$  représente le premier état excité. Cependant, pour le numéro atomique assez élevé de cet élément, le nombre quantique qui se conserve est la somme du moment cinétique orbital et du spin :  $J = L + S$ . Le niveau fondamental est donc  $(2J + 1) = 16$  fois dégénéré.

2. L'effet de la matrice est une perturbation de cet hamiltonien libre. Sa description peut se faire en utilisant le modèle du champ cristallin [56]. L'ion erbium possède un nombre impair d'électrons de valence et fait donc parti des ions Kramers. L'interaction de champ cristallin ne lève alors que partiellement la dégénérescence des niveaux de spin-orbite et est à l'origine des doublets de Kramers. De façon conventionnelle, ils seront notés  $Z_i$  dans le fondamental et  $Y_i$  dans l'état excité, avec  $i = 1$  pour les états de plus faible énergie. Distants en énergie, ils ne se mélangent quasiment pas. Les différents doublets peuvent donc être considérés comme des niveaux de spin effectif.
3. La dégénérescence de ces doublets peut être levée par interaction Zeeman, en appliquant un champ magnétique extérieur. Nous comprenons que ce champ est nécessaire à l'obtention d'un système en  $\Lambda$  basé sur des niveaux de spin électronique. L'écart entre leurs niveaux est alors le produit du champ magnétique et du facteur gyromagnétique caractérisant le spin effectif. Nous verrons dans la partie 2.3 que ce dernier varie selon l'état considéré. Les niveaux de spin, aussi appelés niveaux Zeeman seront notés  $|f, -\rangle$  et  $|f, +\rangle$  dans l'état fondamental et  $|e, -\rangle$  et  $|e, +\rangle$  dans l'état excité. Leurs écarts en énergie sont de l'ordre du GHz, il est donc possible de les résoudre optiquement.

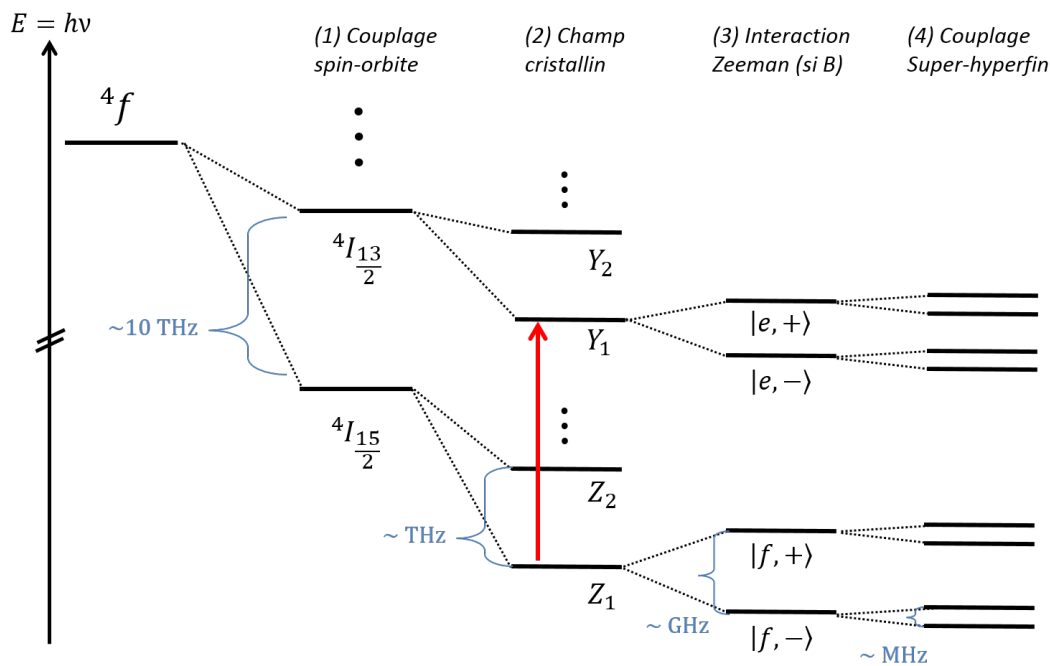


FIGURE 2.2 – Représentation schématisée des niveaux d'énergie dans une matrice cristalline dopée à l'erbium. Les levées de dégénérescence successives sont dues au couplage spin-orbite de l'ion erbium (1), au couplage à la matrice (2), à l'interaction Zeeman sous champ magnétique (3) et enfin au couplage super-hyperfin avec les spins nucléaires des ions ligands (4). La transition optique étudiée est représentée par la flèche rouge.

4. Comme nous négligeons l'isotope de l'erbium possédant un spin nucléaire, aucune interaction hyperfine ne vient lever la dégénérescence des niveaux Zeeman. Cependant, le spin électronique de l'erbium peut se coupler aux spins nucléaires des ions de la matrice. Ce couplage électro-nucléaire est aussi appelé couplage super-hyperfin.

Tout au long de cette thèse, nous nous intéresserons exclusivement à la transition reliant le premier niveau de spin de l'état fondamental au premier de l'état excité :  $^4I_{15/2} (Z_1) \rightarrow ^4I_{13/2} (Y_1)$  (représentée dans Fig. 2.2). Afin d'en connaître plus sur cette transition et de pouvoir donner quelques chiffres, il me faut maintenant présenter la matrice utilisée.

### 2.1.3 Propriétés et symétries de la matrice $Y_2SiO_5$

Parmi la multitude de matrices potentielles [55, chap. 7.5], l'ortho-silicate d'yttrium  $Y_2SiO_5$  présente plusieurs caractéristiques intéressantes. Dopée à l'erbium, son temps de cohérence peut atteindre jusqu'à 4.38 ms sur la transition optique [43] et 5.6  $\mu s$  sur la transition de spin [39]. Cet ensemble atomique stable ouvre la voie à de nombreuses applications comme le traitement de signaux radio-fréquences [57], la stabilisation laser [58] et plus récemment, la réalisation de mémoires quantiques [24].

La matrice  $Y_2SiO_5$  est composée d'yttrium, de silicium et d'oxygène. Le tableau de Fig. 2.3 présente les isotopes naturels de ces éléments possédant des spins nucléaires. Seul celui des ions yttrium est non négligeable. Comme ce dernier est faible, leurs interactions avec le spin électronique de l'erbium sont la plupart du temps limitées. Ceci explique en partie la grande stabilité du système.

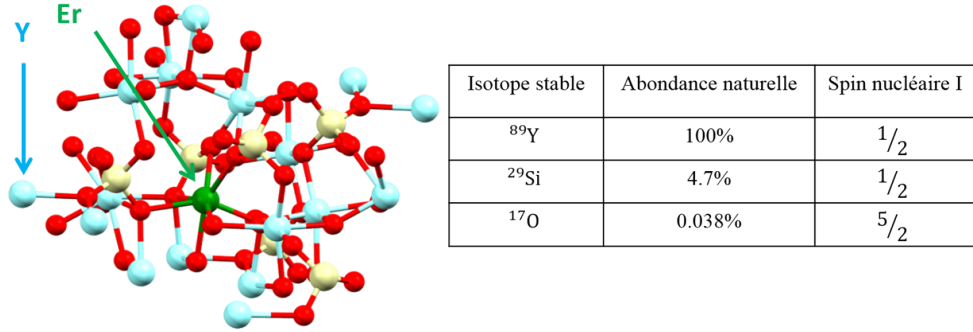


FIGURE 2.3 – Maille élémentaire de la matrice  $Y_2SiO_5$ . Les ions yttrium (bleu), silicium (jaune) et oxygène (rouge) y sont représentés. Dans ce schéma, un ion erbium (vert) remplace un yttrium. Le tableau à droite indique l'abondance naturelle des éléments de  $Y_2SiO_5$  possédant un spin nucléaire.

Cette matrice appartient au groupe monoclinique  $C_{2h}^6$  (notation de Schoenflies). Sa maille élémentaire est caractérisée par les paramètres  $\langle 100 \rangle = 10.41 \text{ \AA}$ ,  $\langle 010 \rangle = 6.72 \text{ \AA}$ ,  $\langle 001 \rangle = 12.49 \text{ \AA}$  et  $\beta = 102.39^\circ$  (voir Fig. 2.4). Par ailleurs, ce cristal est optiquement biréfringent biaxe [59]. Ses axes optiques perpendiculaires définissent le repère  $(D_1, D_2, b)$ . Seul l'axe appelé b est parallèle

à l'axe  $\langle 010 \rangle$  de la maille. L'angle entre les axes  $D_1$  et  $\langle 001 \rangle$  est de  $23.8^\circ$  [60]. Dans cette matrice, la densité d'ions yttrium vaut  $n_Y = 1.83 \times 10^{28} \text{ m}^{-3}$ . L'erbium vient se substituer à ces ions sur deux sites dépourvus d'éléments de symétrie ( $C_1$ ). Ces deux sites sont eux aussi divisés en deux orientations magnétiquement non équivalentes que nous noterons A et B. Elles sont reliées par une symétrie  $C_2$ , rotation de  $180^\circ$  par rapport à l'axe b. Lorsqu'un champ magnétique est appliqué dans le plan  $(D_1, D_2)$ , ces deux orientations ressentent un champ opposé (voir schéma à droite de Fig. 2.4). Comme le signe du champ n'a pas d'influence sur les états d'énergie des niveaux de spin, ces deux orientations seront alors magnétiquement équivalentes. Afin de simplifier le système et de maximiser l'absorption, nous essayerons toujours d'être dans cette situation là.

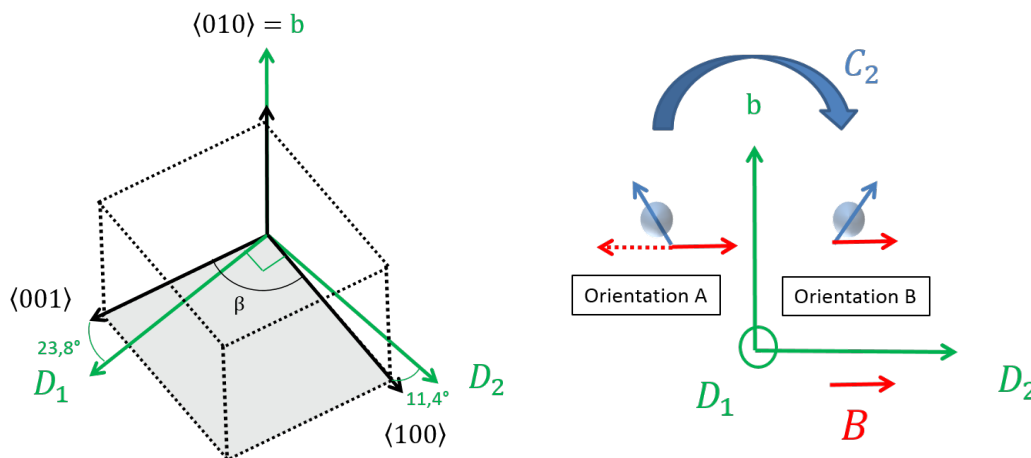


FIGURE 2.4 – À gauche, schéma superposant la maille cristalline et les axes optiques de la biréfringence. Par la suite, le repère orthonormé  $(D_1, D_2, b)$  sera aussi appelé repère du cristal. À droite, illustration de l'équivalence magnétique des orientations A et B lorsqu'un champ est appliqué dans le plan  $(D_1, D_2)$ .

Dans  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ , les niveaux supérieurs de champ cristallin sont distants de plus d'un THz [61], leur effet est ici négligeable. À champ nul, la longueur d'onde de la transition étudiée est de 1536,478 nm pour le site de substitution appelé site 1 et 1538,903 nm pour le site 2 [62]. Nous nous focaliserons sur le site 1 de substitution pour lequel l'absorption est maximale. L'absorption dépend aussi de la polarisation de l'excitation. Nous travaillerons toujours avec une polarisation orientée selon l'axe  $D_2$ , pour laquelle le coefficient d'absorption est deux fois plus élevé que selon  $D_1$  [62].

Après avoir compris d'où venait la stabilité des ions terre-rare, nous nous sommes penchés sur le système particulier  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ . La matrice utilisée est complexe mais la faiblesse de ses spins nucléaires limite leurs interactions avec les ions erbium dopants. Étudions maintenant l'élargissement de sa transition optique, ceci étant une source d'information sur les phénomènes à l'œuvre dans notre système.



## 2.2 Largeur de la transition optique

Une matrice solide est un environnement complexe. Elle induit différents élargissements de la transition optique présentée dans la partie 2.1.1 précédente. Après avoir analysé le spectre d'absorption de la transition à champ nul, je définirai les notions de largeurs inhomogène et homogène.

### 2.2.1 Mesure de la transition à champ nul

L'étude des transitions optiques d'un système peut se faire par spectroscopie en transmission. Cette technique repose sur la loi de Bouguer-Beer-Lambert qui caractérise macroscopiquement la transmission d'un faisceau laser passant au travers d'un milieu. La quantité transmise s'écrit

$$\mathcal{T} = e^{-\alpha^{\text{abs}}L} \quad (2.2)$$

où  $\alpha^{\text{abs}}$  représente le coefficient d'absorption et  $L$  est la longueur du milieu absorbant. Nous pouvons aussi définir l'épaisseur optique du système comme

$$\alpha^{\text{abs}}L = -\ln(\mathcal{T}). \quad (2.3)$$

Étudier l'absorption par le cristal d'un laser balayé en fréquence renseigne sur la largeur des transitions optiques permises.

Pour un champ magnétique nul, nous effectuons les mesures de spectroscopie en envoyant un faisceau laser à 1536,478 nm, selon l'axe b du repère du cristal ( $D_1, D_2, b$ ). Nous balayons la fréquence du laser sur plusieurs GHz pour obtenir le spectre d'absorption de Fig. 2.5. La hauteur de ce pic nous informe que la profondeur optique du cristal étudié est de  $\alpha^{\text{abs}}L = 3.1$  à résonance. La largeur à mi-hauteur du spectre d'émission, qui est ici une lorentzienne, vaut  $\approx 320$  MHz pour une température de 2 K. Cette largeur est aussi appelée largeur inhomogène. Elle est assez faible comparée à d'autres systèmes à l'état solide, celles des verres dopés pouvant par exemple atteindre quelques THz [63]. Commençons par expliquer son origine.

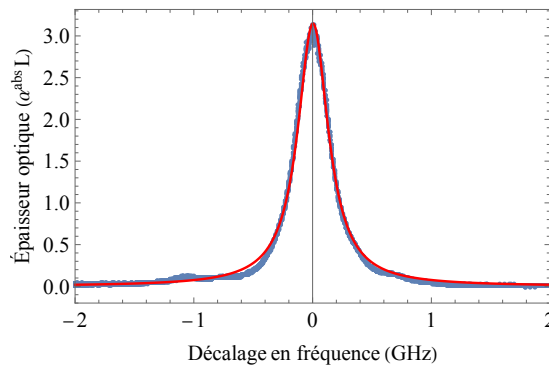


FIGURE 2.5 – Exemple de spectre d'absorption à champ magnétique nul. Le cristal étudié est dopé à 50 ppm. La hauteur et la largeur du pic représentent respectivement la profondeur optique du milieu et sa largeur inhomogène. Ces caractéristiques sont extraites à l'aide d'un ajustement lorentzien (courbe rouge).

### 2.2.2 Largeurs inhomogène et homogène

La largeur observée dans le spectre de Fig. 2.5 résulte d'élargissements dont les origines sont différentes.

Les défauts de la matrice, les dislocations et les contraintes induites par le dopage modifient le voisinage des différents ions erbium du système [64]. Ceux dont l'environnement est identique sont regroupés sous la dénomination de classe d'ion. Les différentes classes sont donc décalées en fréquence. La transition subit un élargissement statique dit inhomogène noté  $\Gamma_{inh}$  (voir Fig. 2.6). Dans notre cas, la transition observée dans Fig. 2.5 est de forme lorentzienne. Les défauts ponctuels dus au dopage sont donc la cause principale de l'élargissement. Des techniques de spectroscopie non-linéaire permettent de s'affranchir de cet élargissement. Dans la partie 5.2, nous présenterons par exemple la méthode de creusement spectral (*Spectral Hole-Burning* ou *SHB* en anglais). Celle-ci permet alors l'étude de la largeur d'une unique classe d'ions, appelée largeur homogène.

Pour une transition optique, cette largeur homogène s'exprime en Hz comme

$$\Gamma_h = \frac{1}{\pi T_2} = \frac{1}{2\pi T_t} + \Gamma_{SD}. \quad (2.4)$$

La grandeur  $T_t$  représente le temps de vie de la transition. Si l'on suppose que l'état fondamental est stable, elle correspond au temps de vie de l'état excité, noté  $T_1$ . Pour  ${}^4I_{13/2}$ , ce temps est assez long et vaut  $T_1 = 11$  ms [62]. Lorsque l'on applique un champ magnétique, le temps de vie des niveaux de spin de l'état fondamental, aussi appelé temps de vie Zeeman, est noté  $T_z$ . Dans le chapitre 6 nous verrons que les basculements réciproques peuvent diminuer le temps de vie de cette transition dans certaines conditions, lorsque  $T_z < T_1$ .

$\Gamma_{SD}$  matérialise l'élargissement dû aux phénomènes de décohérence présentés dans la partie 1.2 de l'introduction. Pour les conditions dans lesquelles nous travaillons, cet élargissement est principalement dû aux basculements réciproques des spins des ions erbium.

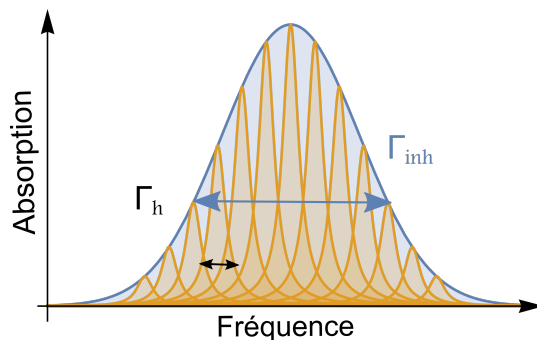


FIGURE 2.6 – La transition optique d'un ion isolé a une largeur homogène notée  $\Gamma_h$ . En matrice cristalline, la transition de cet ion subit l'effet de l'élargissement inhomogène noté  $\Gamma_{inh}$ .

Le stockage d'information est principalement limité par le temps de cohérence d'un système. La largeur homogène d'une transition optique en est le témoin direct. Pour l'étudier en détail, il faut tout d'abord s'affranchir de l'élargissement inhomogène provoqué par les défauts de la matrice. Par ailleurs, l'application d'un champ magnétique complexifie l'étude de cette transition.

## 2.3 Réponse à un champ magnétique

Appliquer un champ magnétique dédouble les niveaux de spin effectif sur lesquels la transition optique est basée. Nous les avons notés  $|f, -\rangle, |f, +\rangle$  dans l'état fondamental et  $|e, -\rangle, |e, +\rangle$  dans l'état excité. Comme la symétrie de la matrice  $\text{Y}_2\text{SiO}_5$  est basse, nous nous attendons à ce que la réponse du système au champ magnétique soit anisotrope. Grâce à une étude spectroscopique, je vais montrer qu'en effet l'écart en fréquence de ces niveaux dépend de l'angle du champ appliqué. Par ailleurs, nous verrons que cette anisotropie se répercute aussi sur le rapport de branchement entre les transitions du système à quatre niveaux considéré.

### 2.3.1 Anisotropie du spin effectif

Mesurons les spin effectifs des niveaux de champ cristallin concernés par la transition,  $Z_1$  et  $Y_1$ . Lorsque l'on applique un champ magnétique sur notre système, la dégénérescence de ces niveaux est levée par l'hamiltonien Zeeman électronique

$$H_{Ze} = -h\mu_B \mathbf{S} \cdot \bar{\bar{g}} \cdot \mathbf{B}. \quad (2.5)$$

Le magnéton de Bohr qui apparaît dans cette expression vaut  $\mu_B = 14 \text{ GHz.T}^{-1}$ .  $\mathbf{B}$  et  $\mathbf{S}$  représentent respectivement le champ magnétique appliqué et le spin électronique de l'erbium. Les tenseurs  $g$  caractérisant les spins effectifs sont notés  $\bar{\bar{g}}$  dans le fondamental et  $\bar{\bar{g}}'$  dans l'état excité. Nous les appelons aussi facteurs  $g$  lorsqu'ils sont projetés selon une direction de l'espace. Les écarts entre les niveaux de spin de l'état fondamental et de l'état excité s'écrivent alors

$$\Delta g = \mu_B \|\bar{\bar{g}} \cdot \mathbf{B}\| \quad \text{et} \quad \Delta g' = \mu_B \|\bar{\bar{g}}' \cdot \mathbf{B}\|. \quad (2.6)$$

Le document de référence mesurant les tenseurs  $\bar{\bar{g}}$  et  $\bar{\bar{g}}'$  du matériau  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$  est la thèse de Thomas Böttger [58]. Il les déduit de mesures spectroscopiques réalisées dans les 3 plans du repère  $(D_1, D_2, b)$ . Leurs valeurs respectives sont les suivantes [65]

$$\bar{\bar{g}}_{D_1 D_2 b} = \begin{pmatrix} 3.07 & -3.13 & 3.40 \\ -3.13 & 8.16 & -5.76 \\ 3.40 & -5.76 & 5.78 \end{pmatrix} \quad \text{et} \quad \bar{\bar{g}}'_{D_1 D_2 b} = \begin{pmatrix} 1.95 & -2.21 & 3.58 \\ -2.12 & 4.23 & -4.99 \\ 3.58 & -4.99 & 7.89 \end{pmatrix} \quad (2.7)$$

Le système à quatre niveaux présente deux transitions directes (sans basculement de spin),  $|f, -\rangle \rightarrow |e, -\rangle$  et  $|f, +\rangle \rightarrow |e, +\rangle$  et deux transitions croisées (avec basculement de spin),  $|f, -\rangle \rightarrow |e, +\rangle$  et  $|f, +\rangle \rightarrow |e, -\rangle$ . Ces transitions sont schématisées dans la partie gauche de Fig. 2.7. Elles ont toutes des fréquences différentes étant donnée la différence des facteurs  $g$  dans les deux états. Le spectre d'absorption présente donc quatre pics. Les pics dus aux transitions directes présentent un décalage de  $\pm \frac{\Delta g - \Delta g'}{2}$  par rapport à la fréquence de résonance à champ nul. Ceux dus aux transitions croisées sont décalés de  $\pm \frac{\Delta g + \Delta g'}{2}$  [62].

Dans le repère  $(D_1, D_2, b)$ , l'orientation du champ magnétique peut être décrite par sa longitude et sa co-latitude notées respectivement  $\varphi$  et  $\vartheta$  (voir Fig. 4.1). Comme nous travaillons dans le plan  $(D_1, D_2)$ , il peut s'écrire

$$\mathbf{B} = B \begin{pmatrix} \cos \varphi \sin \vartheta \\ \sin \varphi \sin \vartheta \\ \cos \vartheta \end{pmatrix} = B \begin{pmatrix} \cos \varphi \\ \sin \varphi \\ 0 \end{pmatrix}. \quad (2.8)$$

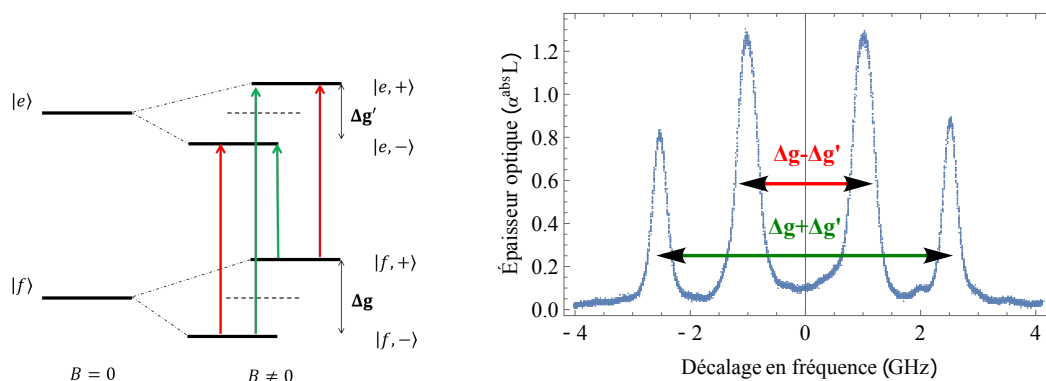


FIGURE 2.7 – À gauche, schéma du système à quatre niveaux lorsqu'un champ magnétique extérieur est appliqué. Les transitions directes, sans basculement de spin, sont représentées en rouge tandis que les croisées sont en vert. À droite, lien avec l'espacement entre les différents pics d'un spectre d'absorption typique, pour  $\varphi = 30^\circ$  et  $B = 133$  mT.

En faisant varier l'angle  $\varphi$  du champ appliqué, j'ai pu extraire les différents facteurs  $g$  de la distance entre les pics d'absorption. La variation de ces facteurs est présentée dans Fig. 2.8. Trois points importants méritent d'être relevés. Le premier est que, dans l'état fondamental comme dans l'excité, les facteurs  $g$  sont très anisotropes. Leurs valeurs varient fortement en fonction de l'angle du champ magnétique. Ces facteurs valent en moyenne  $g \simeq 8$  et  $g' \simeq 5$ . Deuxièmement, l'écart entre les facteurs des deux états est lui aussi variable. Pour un angle de  $20^\circ$ , l'écart est quasiment nul tandis qu'il atteint la valeur de 4 pour  $\varphi = 100^\circ$ . Pour finir, il faut noter que la valeur maximale  $g = 13.5$  dans le fondamental est obtenue pour un angle de  $130^\circ$ .

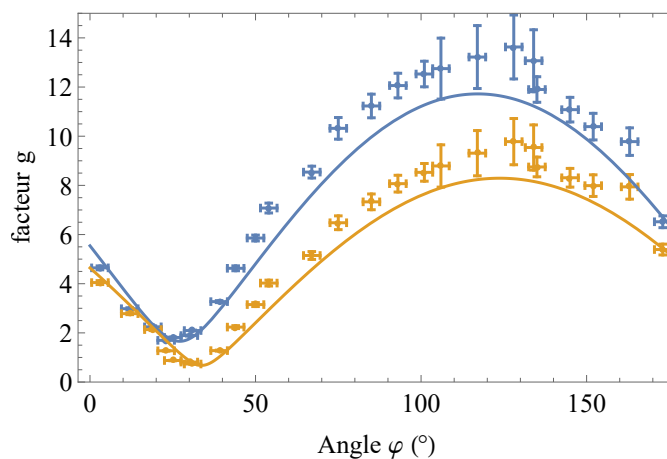


FIGURE 2.8 – Variation des facteurs  $g$  dans l'état fondamental (en bleu) et excité (en orange), lorsque le champ appliqué balaye le plan ( $D_1, D_2$ ). Avec les mesures faites sur notre échantillon dopé à 50 ppm, nous retrouvons quasiment la variation mesurée par T.Böttger (lignes continues).

Dans Fig. 2.8 apparaissent aussi des lignes continues représentant les facteurs  $g$  attendus dans ce plan pour les valeurs explicitées en Eq. (2.7). Celles-ci sont extraites des mesures de T. Böttger [58], elles présentent donc aussi une incertitude. Le faible décalage observé avec nos propres mesures peut être expliqué par l'existence d'un champ rémanent dans les bobines supraconductrices que nous utilisons. Celui-ci induirait en effet une erreur systématique sur la valeur de notre champ magnétique.

Nous comprenons maintenant l'importance de l'angle avec lequel on applique le champ magnétique. Tout au long de cette thèse, nous verrons l'influence que ce dernier aura sur la physique du système.

### 2.3.2 Anisotropie du rapport de branchement

La position des différents pics observés par spectroscopie est maintenant comprise et s'accorde avec les observations antérieures. Nous remarquons cependant que, dans le spectre à droite de Fig. 2.7, les pics issus des transitions directes et croisées n'ont pas la même hauteur. La probabilité de ces transitions est donc différente. Lorsque l'on modifie l'angle du champ appliqué, il apparaît que cette asymétrie est elle aussi variable. Par exemple, pour un champ à  $\varphi = 135^\circ$  de  $D_1$ , les pics d'absorption correspondant aux transitions croisées ont quasiment disparu (voir Fig. 2.9).

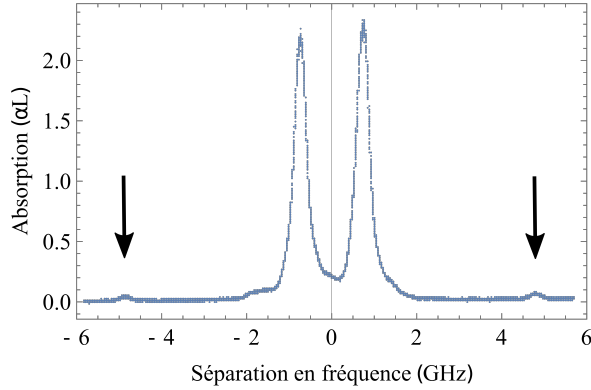


FIGURE 2.9 – Spectre d'absorption d'un cristal dopé à 50 ppm, où un champ magnétique de 33 mT est appliqué avec un angle  $\varphi = 135^\circ$ . La probabilité d'avoir des transitions croisées (pointées par les flèches noires) est très faible dans ces conditions.

Notons  $\alpha^2$  et  $\beta^2$  la probabilité de transition directe ou de transition croisée respectivement, avec la relation  $\alpha^2 + \beta^2 = 1$ . La hauteur de ces transitions est proportionnelle à leurs probabilités. Définissons aussi le rapport de branchement  $R$  comme

$$R = \frac{\beta^2}{\alpha^2}. \quad (2.9)$$

$R$  est nul lorsque la transition croisée n'est pas permise et vaut 1 lorsque les deux transitions sont équivalentes. En faisant le rapport entre les hauteurs des transitions croisées et directes données par les spectres d'absorption, nous obtenons une mesure de ce rapport de branchement.

Ce faisant, j'ai pu mesurer la variation de ce rapport en fonction de l'angle  $\varphi$  du champ magnétique appliqué. Nous pouvons voir dans Fig. 2.10 qu'il est aussi très sensible à l'orientation du champ. Le rapport de branchement est très faible sur une large zone ( $R \approx 0.05$ ), de  $60^\circ$  à  $180^\circ$  environ. Sa valeur augmente fortement, et de manière piquée, autour de  $30^\circ$ . Dans cette zone, les relaxations avec basculement de spin sont donc assez probables.

Dans cette même figure, la ligne continue représente la valeur du rapport de branchement attendue théoriquement pour un transition dipolaire électrique basée sur des niveaux de spin effectif. Son expression finale, généralisable quelle que soit la nature des niveaux considérés, est donnée dans l'annexe C (Eq. (C.8)). Cependant, la variation mesurée ne présente qu'un accord qualitatif avec cette prédiction théorique. Ceci nous montre que la force d'oscillateur ne peut être déduite d'un simple modèle de spin effectif. Le potentiel mélange entre les différents niveaux de champ cristallin et le fait que la transition magnétique est aussi autorisée par les règles de sélection (ici  $\Delta J = \pm 1$ ) [60] sont des causes possibles de cette divergence.

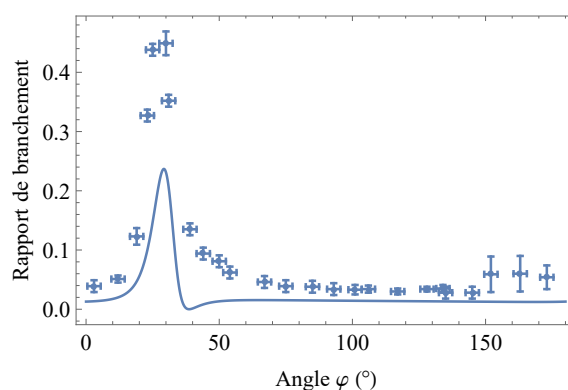


FIGURE 2.10 – Variation du rapport de branchement  $R$  extrait des spectres d'absorption, en fonction de l'angle  $\varphi$  du champ magnétique. La ligne continue représente la variation du rapport de branchement attendue par la théorie.

Ces premières études spectroscopiques nous permettent de mieux comprendre la réponse de  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$  à un champ magnétique extérieur. Les écarts en fréquence entre ses niveaux de spin effectif ainsi que leurs rapports de branchement varient avec l'orientation du champ magnétique. Dans le chapitre 4, nous calculerons l'effet de cette anisotropie sur les deux interactions que nous souhaitons étudier. Mais avant cela, il est nécessaire de rappeler comment les dynamiques du système permettent l'étude de ces deux types de couplages.

#### Résumé du chapitre

- La transition aux longueurs d'onde Télécom étudiée est basée sur des niveaux de spin effectif de l'erbium :  ${}^4\text{I}_{15/2} (Z_1) \rightarrow {}^4\text{I}_{13/2} (Y_1)$ .
- Sa largeur homogène, inverse du temps de cohérence, augmente avec le taux des couplages erbium-erbium.
- La basse symétrie de la matrice  $\text{Y}_2\text{SiO}_5$  conduit à une forte variation du tenseur  $g$  et du rapport de branchement en fonction de l'angle du champ magnétique appliqué. L'effet de cette anisotropie sera étudié dans le chapitre 4.



## Chapitre 3

# Description formelle de la réponse dynamique aux excitations optiques

Étudier les basculements réciproques et les interactions super-hyperfines est crucial pour comprendre les variations du temps de cohérence à bas champ magnétique. Dans ce chapitre je présenterai tout d'abord les techniques de résonance magnétique qui permirent les premières observations de ces couplages. Observer la dynamique du système après excitation optique mène à des résultats analogues. Je poserai donc les bases permettant la description de la réponse d'un système à deux niveaux à une telle excitation. Je prolongerai ensuite cette étude aux systèmes à trois niveaux. Nous verrons que cette présentation formelle présente l'avantage de décrire aussi bien des niveaux Zeeman que des niveaux super-hyperfins.

### 3.1 Études historiques des couplages dipolaires

Les largeurs homogènes des transitions optiques dépendent des mécanismes de décohérence à l'œuvre dans le système (voir partie 2.2). Ceci est aussi vrai pour les largeurs des transitions de spin. Les premières études des basculements réciproques se firent dans ce cadre là. C'est aussi sur ces transitions que se développa la technique d'écho de spin permettant de mesurer la cohérence. Nous verrons dans un second temps qu'une variante de cette méthode permet l'observation des couplages super-hyperfins avec les ions ligands.

#### 3.1.1 Largeurs de transition en RMN et RPE

Les transitions de spin nucléaire ont été observées dès 1936 par I. Rabi [66] grâce à la technique de résonance magnétique nucléaire (RMN). La réponse dynamique d'un système soumis à cette excitation magnétique fut alors théorisée par les équations de Bloch [67]. Parallèlement à cela, I.Zavoisky développa en 1944 une technique similaire pour visualiser les transitions de spin électronique, la résonance paramagnétique électronique (RPE).

Ces deux techniques permettent d'exciter les transitions de spin nucléaire ou électronique du système au moyen de champs magnétiques perpendiculaires (voir Fig. 3.1). Les largeurs de ces transitions renseignent sur la force des interactions entre les différents composants. C'est dans



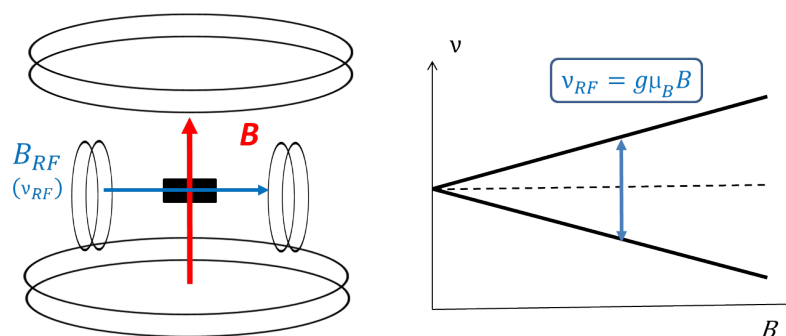


FIGURE 3.1 – Schéma représentant le fonctionnement des techniques de RMN et de RPE. Des champs magnétiques perpendiculaires  $\mathbf{B}$  et  $\mathbf{B}_{RF}$  (ici créés par des bobines Helmholtz) sont appliqués sur un système de spins. Le champ statique  $\mathbf{B}$  lève la dégénérescence de spin. La résonance magnétique a lieu lorsque la fréquence du champ oscillant  $\mathbf{B}_{RF}$  correspond à l'écart entre les niveaux de spin pour un champ  $\mathbf{B}$  donné (à droite).

ce cadre là que se développa l'étude des couplages entre spins dans des cristaux magnétiques [68, 69]. La méthode des moments développée par J.H. Van-vleck estime l'élargissement induit par les couplages dipolaires de premier ordre. Cela ouvrit le champ à une vaste bibliographie traitant de leurs effets sur les largeurs de transition [70, chap. 3]. L'importance particulière des basculements réciproques entre deux spins, couplages du second ordre, n'a été comprise que plus tardivement [48]. En parallèle à ces travaux, l'apparition des techniques d'écho permit d'étudier le problème de la cohérence sous un angle différent.

### 3.1.2 Écho de spin et ESEEM

La première observation d'un écho de spin nucléaire, aussi appelé écho de Hahn [71], confirme la dynamique des cohérences prédite par les équations de Bloch. Huit ans après cette observation, le même phénomène est identifié pour des spins électroniques [72, 73]. Leur analogue optique, l'écho de photon, est lui aussi observé quelques années plus tard [74]. Il sera présenté en détail dans la partie 3.2.4. L'étude des différents échos est devenue la méthode de choix pour la mesure des temps de cohérence de leurs transitions respectives.

Grâce à l'avancée des technologies, il fut ensuite possible de réduire la durée des excitations micro-ondes dont les longueurs d'onde correspondent aux transitions de spin électronique. Ceci permit au physicien W.B. Mims d'utiliser l'écho de spin pour étudier les couplages super-hyperfins. Il développa en particulier la technique *Electron Spin Echo Envelope Modulation* (ESEEM) [75]. Rappelons que plus une impulsion est courte temporellement, plus sa largeur spectrale est importante. Ainsi, une séquence d'écho de spin basée sur des impulsions courtes peut agir conjointement sur des niveaux proches en énergie. Quelques  $\mu\text{s}$  permettent alors d'exciter de manière simultanée les niveaux super-hyperfins séparés d'une centaine de kHz. Dans cette situation, la décroissance de l'aire de l'écho est modulée. La période et l'amplitude des modulations qui apparaissent nous renseignent sur les niveaux super-hyperfins et la force des couplages avec les différents ligands. Une application de l'ESEEM est donc par exemple la cartographie de structures moléculaires [76]. Le principe est identique en optique, dans le cas de l'écho de photon (voir partie 3.3.2).

Dans  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ , chaque ion erbium est entouré par une multitude d'ions yttrium. Le couplage électro-nucléaire avec un ligand engendre un système à quatre niveaux dont les éclatements dépendent de ses caractéristiques. Chaque yttrium est donc à l'origine d'un système qui lui est propre. Comme déjà observé par ESEEM [77], en excitant le milieu avec des impulsions optiques courtes, nous nous attendons à ce qu'une modulation complexe vienne perturber la décroissance d'un signal d'écho de photon.

Le calcul de la modulation d'intensité de l'écho pour un système à 4 niveaux a été faite de manière complète dans le cadre de la RPE [78, 79]. Dans le cas de l'optique, cette modulation a quant à elle été estimée par approche perturbative [80]. C'est cette méthode que nous suivrons dans la dernière partie de ce chapitre.

Que ce soit par l'observation des largeurs de transitions magnétiques ou par excitation cohérente du spin, les couplages dipolaires ont été largement étudiés dans les systèmes à l'état solide. Ceux présents dans notre système  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$  peuvent quant à eux être mesurés par des méthodes optiques analogues. Nous verrons dans la partie 7.1.1 que ces dernières permettent de relaxer certaines contraintes par rapport aux techniques de RPE.

## 3.2 Description théorique de la dynamique d'un système à deux niveaux

Je vais ici poser les bases d'une description formelle de la dynamique du système une fois soumis à une excitation optique. Pour ce faire, je vais m'intéresser dans un premier temps à l'évolution d'un système à deux niveaux, composé d'un état fondamental noté  $|f\rangle$  et d'un état excité noté  $|e\rangle$ . Deux formalismes peuvent permettre de traiter le problème. Je choisirai d'utiliser la matrice densité, adaptée à la prise en compte des interactions avec l'environnement. J'établirai alors les équations de Bloch-optique, analogues aux équations de Bloch pour une excitation optique. J'utiliserai ensuite ces équations pour comprendre la dynamique des populations et des cohérences.

### 3.2.1 Formalismes de Schrödinger et de la matrice densité

Supposons tout d'abord que le système à deux niveaux étudié est isolé de son environnement. Il est caractérisé par la fonction d'onde

$$|\phi(t)\rangle = a(t)|f\rangle + b(t)|e\rangle. \quad (3.1)$$

$a$  et  $b$  sont des coefficients normalisés et dépendants du temps. La variation de ces coefficients peut être déduite de l'équation de Schrödinger :

$$i\hbar \frac{d|\phi\rangle}{dt} = H(t)|\phi(t)\rangle. \quad (3.2)$$

Dans cette équation,  $H(t)$  représente l'hamiltonien du système au temps  $t$ . Connaître la variation de cet opérateur revient donc à connaître la variation de la fonction d'onde. Pour notre système isolé, l'hamiltonien s'écrit dans la base  $\{|f\rangle, |e\rangle\}$  comme

$$H(t) = H_0 = h \begin{pmatrix} \nu_f & 0 \\ 0 & \nu_e \end{pmatrix}. \quad (3.3)$$

$h\nu_f$  et  $h\nu_e$  représentent les énergies de l'état fondamental et de l'état excité respectivement. La fréquence de la transition peut alors s'écrire  $\nu_0 = \nu_e - \nu_f$ .

Pour un système réel, ces deux niveaux interagissent avec un environnement complexe. La dynamique doit alors être étudiée en utilisant le formalisme de la matrice densité. Celle-ci est définie comme

$$\rho_{tot} = |\psi\rangle\langle\psi| \quad (3.4)$$

avec  $|\psi\rangle = |\phi\rangle_{env} \otimes |\phi\rangle$ . Nous ne nous intéressons qu'à la variation du système à deux niveaux et oublions celle de l'environnement. Nous pouvons donc utiliser la trace partielle et considérer la matrice densité réduite

$$\rho = \text{Tr}_{env} [\rho_{tot}] = |\phi\rangle\langle\phi|. \quad (3.5)$$

Elle se développe sous la forme

$$\rho = \begin{pmatrix} a(t)a^*(t) & a(t)b^*(t) \\ b(t)a^*(t) & b(t)b^*(t) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \rho_{ff} & \rho_{fe} \\ \rho_{ef} & \rho_{ee} \end{pmatrix}. \quad (3.6)$$

Les termes  $\rho_{ff}$  et  $\rho_{ee}$  représentent les populations des niveaux  $|f\rangle$  et  $|e\rangle$  tandis que  $\rho_{fe}$  et  $\rho_{ef}$  représentent leurs cohérences. Pour étudier l'évolution de cette matrice, utilisons la définition donné en Eq. (3.5) :

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{d\rho}{dt} &= i\hbar \left( \frac{d|\phi\rangle}{dt} \langle\phi| + |\phi\rangle \frac{d\langle\phi|}{dt} \right) \\ &= H(t) |\phi\rangle\langle\phi| - |\phi\rangle\langle\phi| H(t). \end{aligned} \quad (3.7)$$

La matrice densité évoluera donc en suivant l'équation de Von Neumann :

$$i\hbar \frac{d\rho}{dt} = [H(t), \rho]. \quad (3.8)$$

Par ailleurs, il est important de remarquer que dans ce formalisme, la valeur moyenne d'un opérateur quelconque noté  $\hat{A}$  s'écrit

$$\langle\hat{A}\rangle = \langle\phi|\hat{A}|\phi\rangle = \text{Tr} [\rho\hat{A}]. \quad (3.9)$$

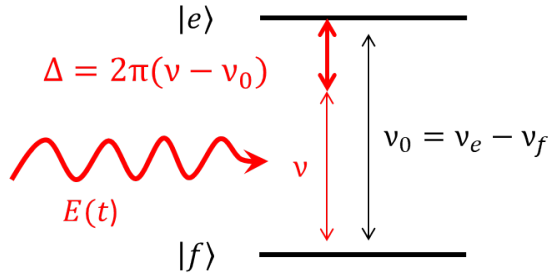


FIGURE 3.2 – Schéma d'un système à deux niveaux excité par un faisceau laser oscillant  $E(t)$ . Le désaccord entre le laser et la transition est noté  $\Delta$ .

### 3.2.2 Équations de Bloch-optique

À ce stade, étudions l'effet d'une excitation optique sur le système à deux niveaux présenté dans la partie précédente. Dans ce cas, les interactions avec l'environnement de notre système ne peuvent plus être négligées. Je travaillerai donc en utilisant le formalisme de la matrice densité. Considérons l'excitation du système par un champ laser oscillant

$$\mathbf{E} = E_0 \cos(2\pi\nu t) = \frac{E_0}{2} (e^{i2\pi\nu t} + e^{-i2\pi\nu t}). \quad (3.10)$$

Cette excitation est schématisée dans Fig. 3.2 et son hamiltonien s'écrit

$$H_E(t) = \mathbf{D} \cdot \mathbf{E}(t). \quad (3.11)$$

$\mathbf{D}$  représente le moment dipolaire électrique qui couple les états  $|f\rangle$  et  $|e\rangle$ . Il n'a pas de composante diagonale. Nous noterons la force de transition  $d = \langle f | D | e \rangle = \langle e | D | f \rangle$ . L'hamiltonien total correspond à la somme de l'hamiltonien libre  $H_0$  et du couplage au champ  $H_E$ , définis par Eq. (3.3) et Eq. (3.11). Il s'écrit donc sous la forme

$$H(t) = H_0 + H_E(t) = \begin{pmatrix} h\nu_f & \langle f | D | e \rangle E(t) \\ \langle e | D | f \rangle E(t) & h\nu_e \end{pmatrix}. \quad (3.12)$$

Introduisons la fréquence de Rabi exprimée en radians par seconde, définie comme

$$\Omega(t) = \frac{d E(t)}{\hbar}. \quad (3.13)$$

L'équation de Von Neumann (Eq. (3.8)) devient alors

$$\frac{d\rho}{dt} = -i \left[ \begin{pmatrix} 2\pi\nu_f & \Omega(t) \\ \Omega(t) & 2\pi\nu_e \end{pmatrix}, \begin{pmatrix} \rho_{ff} & \rho_{fe} \\ \rho_{ef} & \rho_{ee} \end{pmatrix} \right]. \quad (3.14)$$

En développant le commutateur, nous obtenons le système d'équations suivant

$$\begin{cases} \frac{d\rho_{ff}}{dt} = i\Omega(\rho_{fe} - \rho_{ef}) \\ \frac{d\rho_{ee}}{dt} = i\Omega(\rho_{ef} - \rho_{fe}) \\ \frac{d\rho_{fe}}{dt} = i\Omega(\rho_{ff} - \rho_{ee}) + i2\pi\nu_0\rho_{fe} \\ \frac{d\rho_{ef}}{dt} = i\Omega(\rho_{ee} - \rho_{ff}) - i2\pi\nu_0\rho_{ef}. \end{cases} \quad (3.15)$$

Nous pouvons encore simplifier ces équations en les exprimant dans le référentiel tournant avec le champ. Les enveloppes lentement variables des différents termes de la matrice densité y sont définies comme

$$\begin{array}{l} \tilde{\rho}_{ff} = \rho_{ff} \\ \tilde{\rho}_{ee} = \rho_{ee} \\ \tilde{\rho}_{fe} = \rho_{fe} e^{-2i\pi\nu t} \\ \tilde{\rho}_{ef} = \rho_{ef} e^{2i\pi\nu t} \end{array} \quad (3.16)$$

Effectuons l'approximation de l'onde tournante [81, chap. 2.4] qui consiste à négliger les termes rapides  $e^{4i\pi\nu t}$ . Nous obtenons alors les équations de Bloch-optique sans relaxation :

$$\begin{cases} \frac{d\tilde{\rho}_{ff}}{dt} = i\frac{\tilde{\Omega}}{2}(\tilde{\rho}_{fe} - \tilde{\rho}_{ef}) \\ \frac{d\tilde{\rho}_{ee}}{dt} = i\frac{\tilde{\Omega}}{2}(\tilde{\rho}_{ef} - \tilde{\rho}_{fe}) \\ \frac{d\tilde{\rho}_{fe}}{dt} = i\frac{\tilde{\Omega}}{2}(\tilde{\rho}_{ff} - \tilde{\rho}_{ee}) - i\Delta\tilde{\rho}_{fe} \\ \frac{d\tilde{\rho}_{ef}}{dt} = i\frac{\tilde{\Omega}}{2}(\tilde{\rho}_{ee} - \tilde{\rho}_{ff}) + i\Delta\tilde{\rho}_{ef}. \end{cases} \quad (3.17)$$

Dans ce système d'équations apparaissent la fréquence de Rabi lentement variable et le désaccord entre le laser et la transition (voir figure Fig. 3.2). Ces deux grandeurs sont exprimées en radians par seconde comme

$$\tilde{\Omega} = \frac{d E_0}{\hbar} \quad \text{et} \quad \Delta = 2\pi \times (\nu - \nu_0). \quad (3.18)$$

### Termes de relaxation

Les équations de Bloch-optique énoncées ci-dessus représentent le cas idéal où le système à deux niveaux interagit uniquement avec le champ laser exciteur. En réalité, en raison des interactions avec son environnement, l'état excité  $|e\rangle$  a une durée de vie finie. Eq. (3.8) est alors modifiée par l'ajout des termes de relaxation suivants [81, chap. 3.4]

$$i\hbar \frac{d\rho}{dt} = [H(t), \rho] - i\hbar \begin{pmatrix} \frac{1}{T_1}\rho_{ee} & \frac{1}{T_2}\rho_{fe} \\ \frac{1}{T_2}\rho_{ef} & -\frac{1}{T_1}\rho_{ee} \end{pmatrix}. \quad (3.19)$$

$T_1$  et  $T_2$  correspondent toujours au temps de vie de l'état excité et au temps de cohérence de la transition. Les équations de Bloch-optique avec relaxation s'écrivent alors

$$\begin{cases} \frac{d\tilde{\rho}_{ff}}{dt} = i\frac{\tilde{\Omega}}{2}(\tilde{\rho}_{fe} - \tilde{\rho}_{ef}) + \frac{\tilde{\rho}_{ee}}{T_1} \\ \frac{d\tilde{\rho}_{ee}}{dt} = i\frac{\tilde{\Omega}}{2}(\tilde{\rho}_{ef} - \tilde{\rho}_{fe}) - \frac{\tilde{\rho}_{ee}}{T_1} \\ \frac{d\tilde{\rho}_{fe}}{dt} = i\frac{\tilde{\Omega}}{2}(\tilde{\rho}_{ff} - \tilde{\rho}_{ee}) - i\Delta\tilde{\rho}_{fe} - \frac{\tilde{\rho}_{fe}}{T_2} \\ \frac{d\tilde{\rho}_{ef}}{dt} = i\frac{\tilde{\Omega}}{2}(\tilde{\rho}_{ee} - \tilde{\rho}_{ff}) + i\Delta\tilde{\rho}_{ef} - \frac{\tilde{\rho}_{ef}}{T_2}. \end{cases} \quad (3.20)$$

Définissons aussi la différence de population

$$n = \tilde{\rho}_{ff} - \tilde{\rho}_{ee}. \quad (3.21)$$

En supposant que les populations se conservent ( $\tilde{\rho}_{ff} + \tilde{\rho}_{ee} = 1$ ), leur différence peut aussi s'écrire  $n = 1 - 2\tilde{\rho}_{ee}$ . De plus, en réalisant que les évolutions des cohérences sont conjuguées, le système se réduit finalement aux deux équations

$$\begin{cases} \frac{dn}{dt} = i\tilde{\Omega}(\tilde{\rho}_{fe} - \tilde{\rho}_{ef}) + \frac{1 - n(t)}{T_1} \\ \frac{d\tilde{\rho}_{fe}}{dt} = \left(\frac{d\tilde{\rho}_{ef}}{dt}\right)^* = i\frac{\tilde{\Omega}}{2}n(t) - \left(i\Delta + \frac{1}{T_2}\right)\tilde{\rho}_{fe} \end{cases} \quad (3.22)$$

### 3.2.3 Limite des équations de taux

Les équations de taux décrivent l'évolution des populations de l'état fondamental et de l'état excité. Elles correspondent aux équations de Bloch-optique (Eq. (3.22)) dans le cas limite où l'excitation est longue devant le temps de cohérence du système. Nous pouvons alors supposer que les cohérences sont dans un régime stationnaire. En faisant cette hypothèse, la dernière équation de Eq. (3.22) mène à

$$\frac{d\tilde{\rho}_{fe}}{dt} = \left( \frac{d\tilde{\rho}_{ef}}{dt} \right)^* = 0 \quad \rightarrow \quad \tilde{\rho}_{fe} = (\tilde{\rho}_{ef})^* = \frac{i\frac{\tilde{\Omega}}{2}}{i\Delta + \frac{1}{T_2}} n \quad (3.23)$$

En remplaçant les cohérences par leurs expressions stationnaires dans les premières lignes de Eq. (3.20), nous obtenons les équations de taux

$$\frac{d\tilde{\rho}_{ff}}{dt} = -\frac{d\tilde{\rho}_{ee}}{dt} = -W n(t) + \frac{1 - n(t)}{2T_1} \quad (3.24)$$

Nous avons ici introduit le taux de pompage  $W$ , défini comme

$$W = \left( \frac{\tilde{\Omega}}{2} \right)^2 \left( \frac{2T_2}{1 + \Delta^2 T_2^2} \right). \quad (3.25)$$

Ce taux est proportionnel au carré de la fréquence de Rabi et donc à la puissance de l'excitation. Eq. (3.24) peut être re-écrite sous la forme d'une équation différentielle en  $n(t)$ . La résoudre permet de décrire l'évolution de la différence de population en fonction du taux de pompage [81, chap. 6.4]

$$n(t) = \frac{1}{1 + 2T_1 W} + \left( n(0) - \frac{1}{1 + 2T_1 W} \right) e^{-(2W + \frac{1}{T_1})t}. \quad (3.26)$$

La saturation d'une transition correspond à l'égalité de ces populations ( $n = 0$ ). La rapidité de cette saturation dépend donc du taux de pompage  $W$  et par conséquent, du déphasage  $\Delta$ . Ainsi, les différentes classes de l'élargissement inhomogène ne seront pas saturées pour un même temps de pompage. Il est donc possible de ne saturer qu'une seule classe d'atomes. Cet effet est à la base de la technique de creusement de trou spectral (*SHB*). Elle sera présentée en détail dans la partie 5.2.1. Par ailleurs, le taux de pompage dépend aussi du dipôle de transition par le biais de la fréquence de Rabi (définie en Eq. (3.18)). Les transitions optiques directes ( $|f, -\rangle \rightarrow |e, -\rangle$ ) et croisées ( $|f, +\rangle \rightarrow |e, -\rangle$ ) n'auront donc pas non plus les mêmes vitesses de saturation.

Les équations établies dans cette partie permettent de comprendre la dynamique d'un système soumis à une excitation de longue durée. Des informations supplémentaires sur les phénomènes de décohérence sont accessibles lorsque le système est soumis à une excitation courte. Dans cette situation, en effet, la dynamique des cohérences n'est plus négligeable.

### 3.2.4 Dynamique des cohérences

Intéressons-nous maintenant à la dynamique des cohérences du système. Dans cette partie, les temps que nous considérons sont petits devant les temps de relaxation des populations. Je négligerai donc ces phénomènes en posant  $T_1 \rightarrow +\infty$ . Je vais ici décrire séparément l'évolution libre des cohérences puis l'effet d'une excitation courte sur leurs variations. Combiner ces deux résultats nous permettra alors de comprendre le mécanisme d'écho de photon.

### Évolution libre

En l'absence d'excitation, poser  $\tilde{\Omega} = 0$  dans les équations de Bloch-optique (Eq. (3.22)) permet de décrire l'évolution libre du système. La différence de population n'évolue pas tandis que l'évolution des cohérences est une simple équation différentielle du premier ordre. Sa résolution conduit au système

$$\begin{cases} n(t) = n(0) \\ \tilde{\rho}_{fe}(t) = \tilde{\rho}_{fe}(0) \times e^{-i\Delta t} e^{-\frac{t}{T_2}} \end{cases} \quad (3.27)$$

Lorsqu'elles évoluent librement, les cohérences se déphasent à la fréquence  $\Delta$ , désaccord entre l'excitation et la fréquence de transition. La vitesse de ce déphasage est donc différente pour chaque classe d'ions de l'élargissement inhomogène. Simultanément à cela, les cohérences relaxent de manière exponentielle au temps caractéristique  $T_2$ .

### Problème de Rabi

Étudions dorénavant l'effet de l'excitation seule. Nous supposons ici que son désaccord est nul et que sa durée est courte devant la relaxation des cohérences. Ce cas de figure porte aussi le nom de problème de Rabi.

L'aire d'une impulsion d'excitation est définie comme

$$\mathcal{A} = \int \tilde{\Omega}(t) dt. \quad (3.28)$$

L'intégrale se fait sur la durée de cette impulsion. Cherchons la solution du système sous la forme  $n(t) = \lambda \cos(\mathcal{A}) + \mu \sin(\mathcal{A})$ . En insérant cette expression dans la deuxième ligne de Eq. (3.22), nous obtenons

$$\begin{aligned} \tilde{\rho}_{fe}(t) &= i\lambda \int_0^t \frac{\dot{\mathcal{A}}}{2} \cos(\mathcal{A}) + i\mu \int_0^t \frac{\dot{\mathcal{A}}}{2} \sin(\mathcal{A}) \\ &= i\frac{\lambda}{2} \sin(\mathcal{A}) - i\frac{\mu}{2} \cos(\mathcal{A}). \end{aligned} \quad (3.29)$$

Remarquons que  $\tilde{\rho}_{fe} - \tilde{\rho}_{ef} = 2i \operatorname{Im} [\tilde{\rho}_{fe}]$ . En utilisant les conditions initiales  $n(0)$  et  $\operatorname{Im} [\tilde{\rho}_{fe}](0)$  pour trouver les valeurs des constantes  $\lambda$  et  $\mu$ , nous obtenons une solution pour les équations de Bloch-optique sans relaxation :

$$\begin{cases} n(t) = n(0) \cos(\mathcal{A}) - 2\operatorname{Im} [\tilde{\rho}_{fe}](0) \sin(\mathcal{A}) \\ \operatorname{Im} [\tilde{\rho}_{fe}](t) = \operatorname{Im} [\tilde{\rho}_{fe}](0) \cos(\mathcal{A}) + \frac{n(0)}{2} \sin(\mathcal{A}). \end{cases} \quad (3.30)$$

L'excitation d'un système à deux niveaux fait osciller les populations entre ses deux états. Ce sont les oscillations de Rabi. La partie gauche de Fig. 3.3 représente la variation de la différence de population en fonction de l'aire de l'impulsion excitatrice. La valeur de cette aire a une importance majeure pour connaître l'effet de l'excitation sur l'état du système. Par exemple, le cas particulier où  $\mathcal{A} = \frac{\pi}{2}$  conduit au transfert des populations sur la partie imaginaire des cohérences, et inversement. Le cas où  $\mathcal{A} = \pi$  correspond quant à lui à une inversion des populations et à la conjugaison des cohérences, la partie réelle étant inchangée. Par ailleurs, inclure la relaxation des cohérences est équivalent à amortir exponentiellement les oscillations de Rabi. Le temps caractéristique de cet amortissement est encore une fois égal au temps de cohérence  $T_2$ . Son effet perdure jusqu'à l'annulation de la différence de population (voir figure droite de Fig. 3.3).

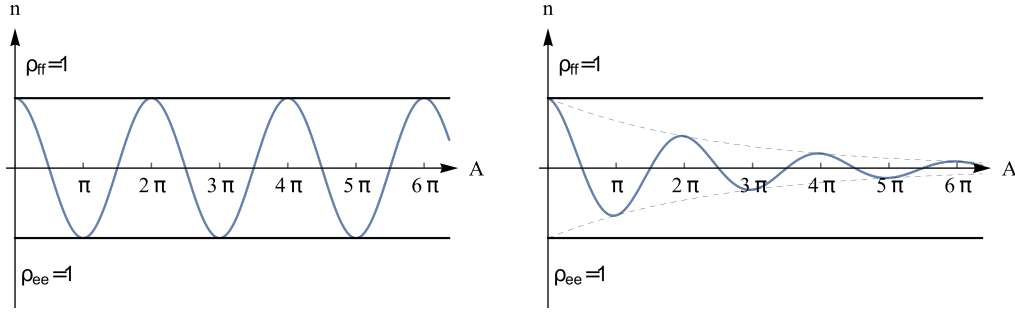


FIGURE 3.3 – À gauche, oscillations de Rabi d'un système à deux niveaux idéal, sans relaxation ni désaccord. À droite, les oscillations sont amorties lorsque l'on rajoute les relaxations dues à l'environnement.

### Écho de photon en régime perturbatif

Dans un système présentant un élargissement inhomogène, le temps de vie des cohérences est communément mesuré par écho de photon. Un écho est produit par une séquence comprenant deux excitations d'aires  $\frac{\pi}{2}$  et  $\pi$ , séparées par un temps d'attente  $\tau$ . L'effet de cette séquence est entièrement résoluble et connu pour un système à deux niveaux en régime non-perturbatif. Afin de donner les éléments nécessaires pour l'extrapolation à trois niveaux ou plus, nous allons ici résoudre ce problème de manière perturbative.

Avant toute chose, il faut noter que l'intensité émise par le système correspond à la norme carrée de la somme des émissions de chaque classe d'ions. Supposons que l'impulsion envoyée sur le système est spectralement étroite devant l'élargissement inhomogène. Dans ce cas, la distribution des ions participant à l'émission peut être considérée uniforme et indépendante de  $\Delta$ . Par ailleurs, l'émission d'un atome seul est égale à la moyenne de son opérateur dipolaire. Nous écrirons cette moyenne grâce à la matrice densité (Eq. (3.9)). Comme cet opérateur est antidiagonal, son émission est proportionnelle à la somme des cohérences du système. L'intensité du système global s'écrit donc

$$\mathcal{I}(t) = \left\| \int_{\Delta} \text{Tr}[\rho d] d\Delta \right\|^2 \propto \left\| \int_{\Delta} \rho_{fe} + \rho_{ef} d\Delta \right\|^2. \quad (3.31)$$

Considérons une séquence de deux excitations d'aires faibles notées respectivement  $\mathcal{A}_1$  et  $\mathcal{A}_2$  (voir Fig. 3.4). Dans nos conditions expérimentales, ces excitations étroites devant l'élargissement inhomogène restent néanmoins larges devant l'élargissement homogène. Elles sont donc courtes temporellement devant l'évolution des cohérences. Ainsi, nous pourrions les assimiler à deux pics de Dirac. Nous noterons  $\tau^-$  et  $\tau^+$  les temps infinitésimalement proches correspondant au début et à la fin de la seconde impulsion. Dans le régime perturbatif, nous pouvons écrire les solutions des équations de Bloch-optique (Eq. (3.22)) grâce à leurs développements de Taylor à l'ordre 2 :

$$\begin{cases} n(t) = n(0) + i\mathcal{A}(\tilde{\rho}_{fe} - \tilde{\rho}_{ef})(0) - \frac{\mathcal{A}^2}{2}n(0) + \mathcal{O}(\mathcal{A}^2) \\ \tilde{\rho}_{fe}(t) = \rho_{fe}(0) + i\frac{\mathcal{A}}{2}n(0) - \frac{\mathcal{A}^2}{4}(\tilde{\rho}_{fe} - \tilde{\rho}_{ef})(0) + \mathcal{O}(\mathcal{A}^2). \end{cases} \quad (3.32)$$

Dans ces expressions,  $\mathcal{A}$  représente l'aire de l'impulsion considérée. Supposons qu'à l'instant initial, le système soit dans son état fondamental ( $n(0) = 1$ ) et que ses cohérences soient nulles. La première impulsion d'aire  $\mathcal{A}_1$  agit alors sur le système. Après un temps d'évolution libre



$t$  quelconque, grâce à Eq. (3.32) et aux conditions initiales, nous pouvons écrire que son état devient

$$\begin{cases} n(t) = 1 - \frac{\mathcal{A}_1^2}{2} \\ \tilde{\rho}_{fe}(t) = i \frac{\mathcal{A}_1}{2} e^{-\left(i\Delta + \frac{1}{T_2}\right)t}. \end{cases} \quad (3.33)$$

Après un temps  $t = \tau$ , nous appliquons la seconde impulsion d'aire  $\mathcal{A}_2$ . En remplaçant les valeurs initiales de Eq. (3.32) par celles trouvées ci-dessus avec  $t = \tau^-$ , nous obtenons l'état du système immédiatement après la seconde impulsion

$$\begin{cases} n(t = \tau^+) = \left(1 - \frac{\mathcal{A}_1^2}{2}\right) \left(1 - \frac{\mathcal{A}_2^2}{2}\right) - \frac{\mathcal{A}_2 \mathcal{A}_1}{2} \left(e^{-\left(i\Delta + \frac{1}{T_2}\right)\tau} + e^{\left(i\Delta - \frac{1}{T_2}\right)\tau}\right) \\ \tilde{\rho}_{fe}(t = \tau^+) = i \frac{\mathcal{A}_1}{2} e^{-\left(i\Delta + \frac{1}{T_2}\right)\tau} + i \frac{\mathcal{A}_2}{2} \left(1 - \frac{\mathcal{A}_1^2}{2}\right) - i \frac{\mathcal{A}_2^2 \mathcal{A}_1}{8} \left(e^{-\left(i\Delta + \frac{1}{T_2}\right)\tau} + e^{\left(i\Delta - \frac{1}{T_2}\right)\tau}\right). \end{cases} \quad (3.34)$$

L'évolution libre des cohérences doit alors être incluse en multipliant cette équation par le facteur  $e^{-\left(i\Delta + \frac{1}{T_2}\right)(t-\tau)}$ . Pour un temps  $t$  quelconque, la cohérence s'écrit

$$\begin{aligned} \tilde{\rho}_{fe}(t) &= i \frac{\mathcal{A}_1}{2} e^{-\left(i\Delta + \frac{1}{T_2}\right)\tau} e^{-\left(i\Delta + \frac{1}{T_2}\right)(t-\tau)} + i \frac{\mathcal{A}_2}{2} \left(1 - \frac{\mathcal{A}_1^2}{2}\right) e^{-\left(i\Delta + \frac{1}{T_2}\right)(t-\tau)} \\ &\quad - i \frac{\mathcal{A}_2^2 \mathcal{A}_1}{8} \left(e^{-\left(i\Delta + \frac{1}{T_2}\right)\tau} + e^{\left(i\Delta - \frac{1}{T_2}\right)\tau}\right) e^{-\left(i\Delta + \frac{1}{T_2}\right)(t-\tau)} \\ &= i \frac{\mathcal{A}_1}{2} \left(1 - \frac{\mathcal{A}_2^2}{4}\right) e^{-\left(i\Delta + \frac{1}{T_2}\right)t} + i \frac{\mathcal{A}_2}{2} \left(1 - \frac{\mathcal{A}_1^2}{2}\right) e^{\left(i\Delta + \frac{1}{T_2}\right)(\tau-t)} - i \frac{\mathcal{A}_2^2 \mathcal{A}_1}{8} e^{i\Delta(2\tau-t)} e^{-\frac{t}{T_2}}. \end{aligned} \quad (3.35)$$

Parmi ces trois termes, seul le dernier contribue à l'émission de l'écho au temps  $t = 2\tau$ . En effet, il devient indépendant du déphasage  $\Delta$ . Tous les dipôles émettent en phase à cet instant précis. Contrairement aux autres termes, son émission n'est pas annulée par l'intégrale sur l'élargissement inhomogène (voir Eq. (3.31)). L'intensité de l'écho s'écrit alors

$$\mathcal{I}(t) \propto (\mathcal{A}_2^2 \mathcal{A}_1)^2 \int_{\Delta} e^{i(2\pi\Delta)(2\tau-t)} d\Delta e^{-\frac{4t}{T_2}}. \quad (3.36)$$

L'intégrale sur l'élargissement inhomogène est donc un pic de Dirac en  $t = 2\tau$ . Nous pouvons finalement écrire

$$\mathcal{I}(2\tau) \propto (\mathcal{A}_2^2 \mathcal{A}_1)^2 e^{-\frac{4\tau}{T_2}}. \quad (3.37)$$

Cette expression illustre le fait que l'écho de photon émis au temps  $t = 2\tau$  est un phénomène non-linéaire. Il dépend plus fortement de la seconde impulsion que de la première. Son intensité décroît de manière exponentielle avec le temps  $\tau$ . De plus, le temps caractéristique de cette décroissance permet de mesurer le temps de cohérence du système,  $T_2$ .

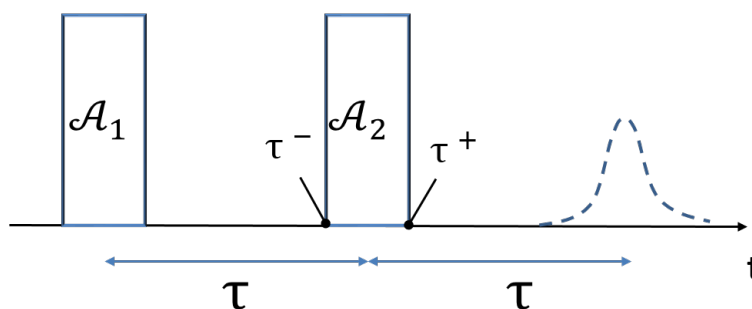


FIGURE 3.4 – Séquence d'écho de photon dans un régime où les aires sont faibles. Elle est constituée d'une excitation courte d'aire  $\mathcal{A}_1$  suivie, après un temps d'attente  $\tau$  variable, d'une excitation d'aire  $\mathcal{A}_2$ . Les temps  $\tau^-$  et  $\tau^+$  sont de simples intermédiaires de calcul représentant le début et la fin de la seconde impulsion. Les cohérences de l'ensemble de l'élargissement inhomogène émettent en phase au temps  $t = 2\tau$  : c'est l'écho de photon.

### 3.3 Description théorique d'un système à trois niveaux

Lorsqu'un champ magnétique extérieur est appliqué sur  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ , la dégénérescence des doublets de Kramers est levée. En observant les relaxations du système (partie 5.2), je montrerai que le système réel peut être assimilé à un système à trois niveaux. Dans cette partie, nous allons tout d'abord comprendre comment les basculements réciproques modifient la dynamique des populations de ce système. L'hypothèse d'un système à trois niveaux n'est plus valable pour l'étude des niveaux super-hyperfins. Il est néanmoins intéressant de calculer les modifications qu'apporte l'inclusion d'un troisième niveau Zeeman à la dynamique des cohérences. J'extrapolerai ensuite ce résultat pour comprendre l'effet d'un système de quatre niveaux super-hyperfins sur la cohérence du système.

Dans tous les cas, la dynamique du système à trois niveaux peut être déduite des équations de Bloch-optique obtenues en Eq. (3.20). La matrice densité est alors une matrice de dimension trois exprimée dans la base construite sur les états de spin  $\{|f, -\rangle, |f, +\rangle, |e, -\rangle\}$ . Tout au long de cette partie, je soulignerai les différences avec le système à deux niveaux présenté dans la partie précédente.

#### 3.3.1 Limite des équations de taux

Dans cette partie, je vais établir les équations de taux pour un système à trois niveaux. Grâce à elles, nous pourrions étudier l'effet d'une excitation prolongée du système puis comprendre son évolution libre.

Les équations de taux se déduisent de celles obtenues pour un système à deux niveaux (Eq. (3.24)). Afin de différencier les populations des deux niveaux de spin de l'état fondamental, je les noterai dorénavant  $\rho_{ff}$  et  $\rho_{ss}$  pour les états  $|f, -\rangle$  et  $|f, +\rangle$  respectivement. Si l'on excite la transition directe entre  $|f, -\rangle$  et  $|e, -\rangle$  (schéma à gauche de Fig. 3.5), les populations  $\rho_{ff}$  et  $\rho_{ee}$  vont s'équilibrer. Le temps d'établissement de l'état stationnaire dépend du taux de pompage  $W$ , défini par Eq. (3.25).

Comme pour le système précédent, les interactions avec l'environnement limitent la durée de vie de tous les niveaux d'énergie. Les relaxations possibles et leurs taux respectifs sont schématisés à droite de Fig. 3.5. Les populations de l'état excité relaxent vers les deux niveaux de l'état

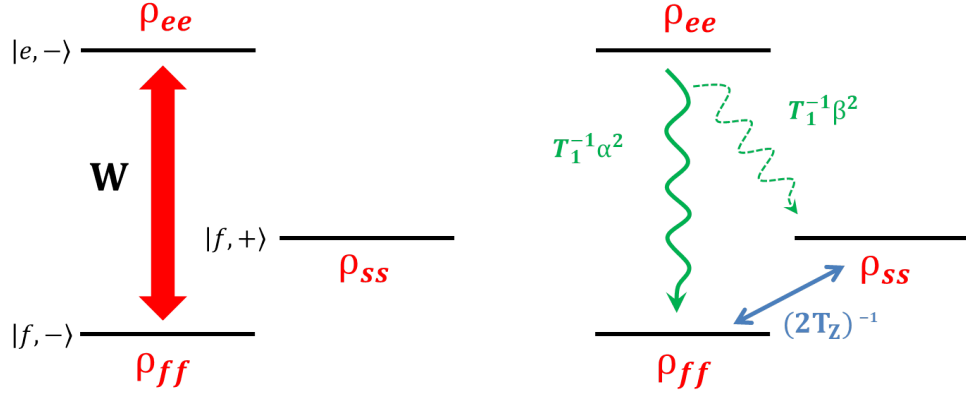


FIGURE 3.5 – Schéma du système à trois niveaux étudié. À gauche, la transition pompée correspond aux niveaux dont les populations sont notées  $\rho_{ff}$  et  $\rho_{ee}$ . À droite, représentation des relaxations possibles dans ce système.  $\alpha$  et  $\beta$  représentent la force des transitions directe et croisée respectivement.

fondamental au temps  $T_1$ . Cependant, il nous faut prendre en compte l'asymétrie observée dans la partie 2.3.2, entre les relaxations directes et croisées. Pour ce faire, nous multiplions le taux de relaxation par la probabilité des différentes transitions,  $\alpha^2$  ou  $\beta^2$ . De plus, nous avons vu dans l'introduction (partie 1.2) que les spins du système peuvent changer d'état par basculement réciproque. Pour les faibles champs considérés, l'éclatement Zeeman est très faible devant l'énergie thermique. Nous pouvons donc supposer que le taux de ces basculements est identique dans un sens ou dans l'autre. Nous écrirons donc que ce taux est égal à  $(2T_z)^{-1}$  [82].

En suivant le raisonnement utilisé pour le système à deux niveaux, tout en prenant en compte ces nouveaux éléments, nous pouvons écrire les équations de taux pour un système à trois niveaux :

$$\begin{cases} \frac{d\rho_{ff}}{dt} = -W(\rho_{ff} - \rho_{ee}) + \alpha^2 \frac{\rho_{ee}}{T_1} - \frac{1}{2T_z}(\rho_{ff} - \rho_{ss}) \\ \frac{d\rho_{ss}}{dt} = \beta^2 \frac{\rho_{ee}}{T_1} + \frac{1}{2T_z}(\rho_{ff} - \rho_{ss}) \\ \frac{d\rho_{ee}}{dt} = W(\rho_{ff} - \rho_{ee}) - \frac{\rho_{ee}}{T_1} \end{cases} \quad (3.38)$$

Quel que soit l'instant, nous pouvons aussi écrire la relation de conservation des populations

$$\rho_{ff} + \rho_{ss} + \rho_{ee} = 1. \quad (3.39)$$

Étudier expérimentalement la dynamique des populations revient à exciter le système puis observer ses relaxations. Les longs temps d'excitation nécessaires à la technique du creusement spectral (voir partie 5.2) conduisent le système dans un état stationnaire. Pour notre système à trois niveaux, décrivons donc les caractéristiques de cet état ainsi que celles de l'évolution libre permettant un retour à l'équilibre.

### État stationnaire

Il est aisé de résoudre les équations de taux en supposant que l'excitation est suffisamment intense pour que le taux de pompage domine les termes de relaxation ( $W \gg \frac{1}{T_1}, \frac{1}{2T_z}$ ). Le système est alors saturé ( $\rho_{ff} = \rho_{ee}$ ) et la relation de conservation (Eq. (3.39)) peut s'écrire  $\rho_{ff} = \frac{1-\rho_{ss}}{2}$ . Ainsi, l'évolution du système se résume à l'équation

$$\frac{d\rho_{ss}}{dt} = \frac{1}{2} \left( \frac{\beta^2}{T_1} + \frac{1}{2T_z} \right) - \left( \frac{\beta^2}{T_1} + \frac{3}{2T_z} \right) \frac{\rho_{ss}}{2}. \quad (3.40)$$

Sa solution stationnaire vaut

$$\rho_{ss,sat} = \frac{1 + \frac{2T_z\beta^2}{T_1}}{3 + \frac{2T_z\beta^2}{T_1}}. \quad (3.41)$$

Nous avons alors tous les éléments pour connaître l'état du système saturé par une excitation intense. Dans cet état stationnaire, le rapport entre les populations des niveaux de l'état fondamental peut s'écrire

$$\frac{\rho_{ss,sat}}{\rho_{ff,sat}} = 1 + \frac{2T_z\beta^2}{T_1} = 1 + \frac{R}{1+R} \frac{2T_z}{T_1}. \quad (3.42)$$

Nous comprenons que l'état stationnaire dépend du rapport de branchement  $R$  défini par Eq. (2.9), ainsi que du temps de vie de spin. Pour un branchement nul ou pour un temps de vie de spin très court, les populations des trois niveaux du système y sont égales. En revanche, lorsque la transition croisée est probable ou que le temps de vie de spin est long, les atomes vont s'accumuler dans le niveau  $|f, +\rangle$ . Ce rapport caractérise donc l'efficacité de pompage optique.

### Évolution libre

Regardons maintenant l'évolution libre des populations du système qui survient une fois l'excitation terminée. Sans excitation, le système Eq. (3.38) devient le suivant

$$\begin{cases} \frac{d\rho_{ff}}{dt} = \alpha^2 \frac{\rho_{ee}}{T_1} - \frac{1}{2T_z} (\rho_{ff} - \rho_{ss}) \\ \frac{d\rho_{ss}}{dt} = \beta^2 \frac{\rho_{ee}}{T_1} + \frac{1}{2T_z} (\rho_{ff} - \rho_{ss}) \\ \frac{d\rho_{ee}}{dt} = -\frac{\rho_{ee}}{T_1} \end{cases} \rightarrow \rho_{ee}(t) = \rho_{ee}(0) e^{-\frac{t}{T_1}} \quad (3.43)$$

L'évolution des populations de l'état excité est triviale. En soustrayant les deux premières équations, la différence de population de l'état fondamental peut s'écrire

$$\frac{d(\rho_{ff} - \rho_{ss})}{dt} = \frac{\alpha^2 - \beta^2}{T_1} \rho_{ee}(0) e^{-\frac{t}{T_1}} - \frac{\rho_{ff} - \rho_{ss}}{T_z}. \quad (3.44)$$

Cette équation est résoluble en utilisant la conservation des populations (Eq. (3.39)) ainsi que les conditions initiales notées  $\rho_{ff}(0)$  ou  $\rho_{ee}(0)$ . Nous obtenons alors l'évolution libre de la différence de population

$$\begin{aligned} (\rho_{ff} - \rho_{ee})(t) &= \frac{1}{2} + \left( (\rho_{ff} - \rho_{ee})(0) - \frac{1}{2} + \frac{\rho_{ee}}{2} \left( 3 - \frac{\alpha^2 - \beta^2}{\frac{T_1}{T_z} - 1} \right) \right) e^{-\frac{t}{T_z}} \\ &\quad + \left( (\rho_{ff} - \rho_{ee})(0) - \frac{1}{2} \right) e^{-\frac{t}{T_1}} \\ &= \frac{1}{2} + A_1 e^{-\frac{t}{T_1}} + A_2 e^{-\frac{t}{T_z}}. \end{aligned} \quad (3.45)$$

Il est important de remarquer que l'absorption du système est proportionnelle à cette quantité. Elle est forte lorsque la différence de population est grande et au contraire, les atomes n'absorbent plus de lumière lorsque ces populations sont égales. L'évolution de l'absorption présente donc deux décroissances exponentielles avec des temps caractéristiques égaux aux différents temps de relaxation. Les coefficients  $A_1$  et  $A_z$  représentent respectivement le poids de la relaxation optique et de la relaxation de spin. Leurs parts relatives dans le signal dépendent donc du rapport entre les temps de vie  $T_1$  et  $T_2$ , de la force des transitions ainsi que des conditions initiales.

Grâce aux équations de taux, nous avons pu établir formellement les différentes évolutions d'un système à trois niveaux de spin, avec ou sans excitation. Il est possible d'extraire les temps de vie de spin en observant la relaxation du système après excitation optique. Pour des champs magnétiques faibles, les basculements réciproques sont la principale limite de ces temps. Les calculs de cette partie seront donc utilisés dans le chapitre 6, consacré à l'étude expérimentale de ces basculements de spin.

### 3.3.2 Dynamique des cohérences et battement de l'écho

Pour terminer ce chapitre, je vais finalement décrire la dynamique des cohérences d'un système à trois niveaux. Le rôle de cette partie est de faire comprendre d'où vient la modulation de l'écho de photon observée et utilisée dans le chapitre 7. Je rappelle que même si cette étude est faite en considérant des niveaux Zeeman, elle est aussi applicable aux niveaux super-hyperfins. Dans ce cas, un quatrième niveau devrait être ajouté pour décrire le système réel. Trois niveaux permettent néanmoins de comprendre le mécanisme à l'origine de la modulation.

La levée de dégénérescence des niveaux de spin ne change pas directement les phénomènes d'évolution libre ou d'oscillation de Rabi. En effet, nous supposons toujours que les temps étudiés sont très courts devant les différents temps de relaxation. Cependant, une différence majeure intervient lorsque plusieurs niveaux sont excités simultanément. Supposons que les impulsions d'excitation soient assez larges spectralement pour agir sur les deux niveaux de spin de l'état fondamental de notre système (voir Fig. 3.6). Regardons comment est modifié l'écho de photon dans ce cas de figure. Dans la base  $\{|f, -\rangle, |f, +\rangle, |e, -\rangle\}$ , l'hamiltonien de couplage s'écrit

$$H_0 + H_e(t) = h \begin{pmatrix} 0 & 0 & \alpha\Omega \\ 0 & \Delta_{sf} & \beta\Omega \\ \alpha\Omega^* & \beta\Omega^* & \nu_0 \end{pmatrix}. \quad (3.46)$$

De la même manière que dans la partie précédente,  $\alpha^2$  et  $\beta^2$  représentent les probabilités des transitions directe ( $|f, -\rangle \rightarrow |e, -\rangle$ ) et croisée ( $|f, +\rangle \rightarrow |e, -\rangle$ ). La différence de fréquence angulaire entre les niveaux  $|f, -\rangle$  et  $|f, +\rangle$  est notée

$$\Delta_{sf} = 2\pi \times (\nu_s - \nu_f). \quad (3.47)$$

Les autres notations sont identiques à celles utilisées pour le système à deux niveaux.

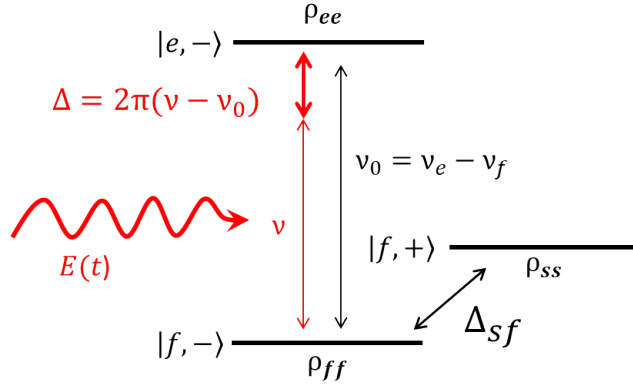


FIGURE 3.6 – Schéma du système à trois niveaux excité par un faisceau laser oscillant  $E(t)$ . Cette excitation est désaccordée de  $\Delta$  par rapport à la transition directe. Elle est supposé assez large spectralement pour exciter les deux niveaux de l'état fondamental. Ceux-ci sont distants de la fréquence  $\Delta_{sf}$ .

Une fois inséré dans l'équation de Von Neuman (Eq. (3.8)), cet hamiltonien permet d'obtenir les équations de Bloch-optique pour un système à trois niveaux

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{d\tilde{\rho}_{ff}}{dt} = i\frac{\tilde{\Omega}}{2}\alpha(\tilde{\rho}_{fe} - \tilde{\rho}_{ef})(t) \\ \frac{d\tilde{\rho}_{ss}}{dt} = i\frac{\tilde{\Omega}}{2}\beta(\tilde{\rho}_{se} - \tilde{\rho}_{es})(t) \\ \frac{d\tilde{\rho}_{ee}}{dt} = -i\frac{\tilde{\Omega}}{2}[\alpha(\tilde{\rho}_{fe} - \tilde{\rho}_{ef})(t) + \beta(\tilde{\rho}_{se} - \tilde{\rho}_{es})(t)] \\ \frac{d\tilde{\rho}_{fe}}{dt} = -\left(i\Delta + \frac{1}{T_2}\right)\tilde{\rho}_{fe}(t) + i\frac{\tilde{\Omega}}{2}[\alpha(\tilde{\rho}_{ff} - \tilde{\rho}_{ee})(t) + \beta\tilde{\rho}_{fs}(t)] \\ \frac{d\tilde{\rho}_{se}}{dt} = -\left(i(\Delta + \Delta_{sf}) + \frac{1}{T_2}\right)\tilde{\rho}_{se}(t) + i\frac{\tilde{\Omega}}{2}[\beta(\tilde{\rho}_{ss} - \tilde{\rho}_{ee})(t) + \alpha\tilde{\rho}_{sf}(t)] \\ \frac{d\tilde{\rho}_{fs}}{dt} = i\Delta_{sf}\tilde{\rho}_{fs}(t) + i\frac{\tilde{\Omega}}{2}[\beta\tilde{\rho}_{fe}(t) - \alpha\tilde{\rho}_{es}(t)]. \end{array} \right. \quad (3.48)$$

Nous pouvons alors faire les mêmes hypothèses que pour le système à deux niveaux et obtenir les équations dans le cas perturbatif. En raisonnant de manière similaire, nous pouvons aussi calculer l'état du système après les deux impulsions d'une séquence d'écho de photon. Ce calcul est détaillé dans l'annexe A.

Contrairement au système à deux niveaux, l'émission d'un seul atome correspond à la somme de l'émission des deux transitions du système. L'intensité totale s'écrit dans ce cas

$$\mathcal{I}(t) = \left\| \int_{\Delta} \alpha(\rho_{fe} + \rho_{ef}) + \beta(\rho_{se} + \rho_{es}) d\Delta \right\|^2. \quad (3.49)$$

Au temps  $t = 2\tau$ , lorsque les deux niveaux de l'état fondamental sont excités simultanément, le calcul en annexe conclut qu'elle vaut

$$\mathcal{I}(t = 2\tau) \propto (\mathcal{A}_2^2 \mathcal{A}_1)^2 \left[ 1 - \frac{\mathcal{C}}{2} (1 - \cos(\Delta_{sf}\tau)) \right]^2 \times e^{-\frac{4\tau}{T_2}}. \quad (3.50)$$

Le battement de l'émission des cohérences  $\rho_{fe}$  et  $\rho_{se}$  est à l'origine d'une modulation de l'intensité de l'écho de photon. Dans cette expression apparaît ce que nous appelons le contraste de modulation  $\mathcal{C}$ . Il dépend du rapport de branchement et est défini comme

$$\mathcal{C} = \frac{4R}{(1+R)^2}. \quad (3.51)$$

L'expression obtenue explicite la réponse d'un système à trois niveaux à une séquence d'écho. Lorsque  $\tau$  augmente, en plus de la décroissance exponentielle caractérisée par le temps de cohérence  $T_2$ , l'aire de l'écho subit un battement. La fréquence de ce battement correspond à l'écart entre les deux niveaux de l'état fondamental. Son contraste dépend de leur rapport de branchement. Plus ce rapport se rapproche de 1 (deux transitions aux probabilités identiques), plus la modulation sera forte. Fig. 3.7 présente des exemples de cette modulation en posant  $\mathcal{C} = 1$  (obtenu pour  $R = 1$ ) ou  $\mathcal{C} = 0.2$  (pour  $R = 0.05$ ) dans la formule Eq. (3.50).

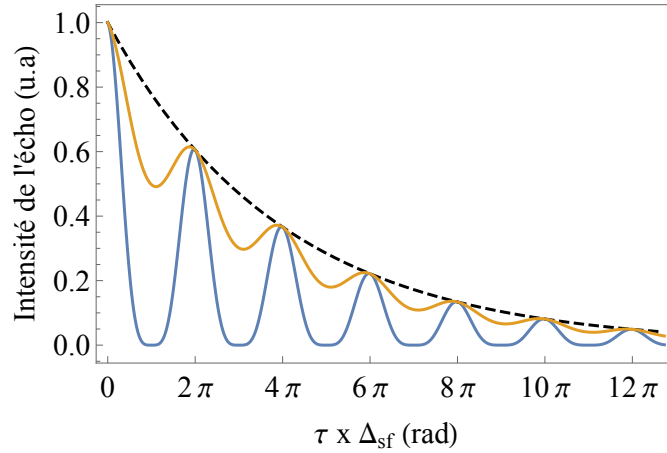


FIGURE 3.7 – Exemples de modulations de l'écho de photon en fonction du paramètre  $\Delta_{sf} \times \tau$ . Les courbes sont calculées d'après Eq. (3.50) avec  $\mathcal{C} = 1$  (en bleu) et  $\mathcal{C} = 0.2$  (en orange). Le temps de cohérence est ici fixé à  $T_2 = \frac{50}{\Delta_{sf}}$ . La courbe en pointillés représente le cas où  $\mathcal{C} = 0$ .

Étudions alors le cas de niveaux super-hyperfins. J'utiliserai la notation  $R_Y$  pour désigner leurs rapports de branchement. Le contraste de modulation associé est noté  $\mathcal{C}_Y$  et est défini de manière analogue à Eq. (3.51). De plus, le quatrième niveau de spin est ici non négligeable. Il est à l'origine d'un nouveau système à trois niveaux et ajoute donc une seconde modulation à la décroissance de l'écho. Les rapports de branchement de ces deux systèmes à trois niveaux complémentaires sont identiques. Ils induisent tous deux des modulations au contraste  $\mathcal{C}_Y$ . Cependant, la fréquence de cette nouvelle modulation est égale à l'éclatement  $\Delta'_Y$  entre les deux niveaux super-hyperfins de l'état excité (nous noterons  $\Delta_Y$  celui de l'état fondamental, voir Fig. 4.6). L'intensité de l'écho de photon s'exprime alors comme

$$\mathcal{I}(2\tau) \propto \left[ 1 - \frac{\mathcal{C}}{2} (1 - \cos(\Delta_Y \tau)) (1 - \cos(\Delta'_Y \tau)) \right]^2 \times e^{-\frac{4\tau}{T_2}}. \quad (3.52)$$

Dans un système réel, une multitude de ligands peuvent se coupler à l'ion actif. Chacun est à l'origine d'un tel système à quatre niveaux. L'intensité finale de l'écho correspond au produit du terme entre crochets de Eq. (3.52), calculé pour chaque ligand [78]. En indexant par l'indice  $i$  les caractéristiques relatives aux différents ligands, nous pouvons finalement écrire

$$\mathcal{I}(2\tau) \propto \prod_i \left[ 1 - \frac{C_{Y,i}}{2} (1 - \cos(\Delta_{Y,i}\tau)) (1 - \cos(\Delta'_{Y,i}\tau)) \right]^2 \times e^{-\frac{4\tau}{T_2}}. \quad (3.53)$$

Dans cette partie, nous avons étudié formellement l'effet d'une séquence d'écho de photon excitant un système à trois niveaux. Ceci nous a permis de comprendre l'origine du battement de l'intensité de l'écho. L'idée est généralisable à une séquence excitant simultanément quatre niveaux super-hyperfins. Les modulations qui en résultent seront étudiées expérimentalement dans le chapitre 7. Elles permettront d'étudier les couplages super-hyperfins entre les ions erbium et les dopants yttrium.

### Résumé du chapitre

- Après excitation optique, la relaxation d'un système à trois niveaux dépend des temps de vie de spin. Pour des champs magnétiques faibles, son étude permet de mesurer l'effet des basculements réciproques.
- Le signal d'un écho de photon diminue exponentiellement avec le temps d'attente entre les impulsions d'excitation. Le temps caractéristique de cette décroissance permet la mesure du temps de cohérence  $T_2$ .
- La décroissance de l'intensité de l'écho est modulée lorsque la séquence excite simultanément trois niveaux ou plus. Dans le cas de niveaux super-hyperfin, la modulation dépend de leur rapport de branchement ainsi que de leurs éclatements.

Dans le chapitre 5, nous verrons comment réaliser ces études en pratique.





## Chapitre 4

# Effet de l'anisotropie sur les couplages dipolaires magnétiques

Dans le chapitre 3, j'ai présenté la réponse du système  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$  soumis à une excitation optique. Nous avons compris comment les basculements réciproques entre les spins des ions erbium (*flip-flops*) et leurs couplages super-hyperfins avec les dopants yttrium agissent sur la dynamique du système. Nous allons maintenant nous intéresser à l'effet de l'anisotropie observée dans la partie 2.3 sur ces deux interactions. Les calculs menés dans cette partie sont applicables aux systèmes possédant un spin effectif anisotrope.

Je décrirai dans un premier temps l'hamiltonien de spin total puis l'hamiltonien Zeeman électronique, celui-ci dominant toutes les interactions magnétiques dans nos conditions expérimentales. Ceci fait, je présenterai le calcul du couplage moyen entre deux spins électroniques d'ions erbium. Pour terminer ce chapitre, j'étudierai aussi le couplage super-hyperfin entre un erbium et le spin nucléaire d'un yttrium de son environnement. Les calculs présentés dans cette partie ont été menés conjointement avec J-L. Le Gouët.

### 4.1 Description de l'hamiltonien de spin

Le choix de la matrice  $\text{Y}_2\text{SiO}_5$  a été fait de manière à minimiser les interactions de ses spins avec les ions dopants. Nous avons déjà vu que seuls les spins nucléaires de l'yttrium interagissent avec les ions erbium (Fig. 2.3). Les ordres de grandeur calculés en introduction montrent bien que le couplage entre deux spins nucléaires est totalement négligeable. Comme nous négligeons aussi le spin nucléaire de l'isotope impair de l'erbium, nous pouvons écrire l'hamiltonien de spin comme

$$H_s = H_{Ze} + H_{SS} + H_{SI} + H_{Zn}. \quad (4.1)$$

$H_{Ze}$  et  $H_{Zn}$  représentent les interactions Zeeman électronique et Zeeman nucléaire en présence d'un champ magnétique externe.  $H_{SS}$  et  $H_{SI}$  correspondent respectivement à l'ensemble des interactions erbium-erbium et erbium-yttrium du système. Chaque couplage entre deux spins est un couplage dipolaire décrit par Eq. (1.3).

L'hamiltonien Zeeman électronique  $H_{Ze}$  a déjà été présenté dans Eq. (2.5). L'hamiltonien Zeeman subi par les ions yttrium s'exprime quant à lui de la manière suivante [77]

$$H_{Zn} = -h\mu_N g_Y \mathbf{I} \cdot \mathbf{B}. \quad (4.2)$$

Dans ce cas, le facteur  $g_Y$  qui caractérise le spin nucléaire effectif des ions yttrium est scalaire. Les autres grandeurs qui apparaissent dans cette expression sont le magnéton nucléaire  $\mu_N = 7.6 \text{ MHz}\cdot\text{T}^{-1}$  et le spin nucléaire  $I$ . Nous utiliserons dorénavant le facteur gyromagnétique nucléaire de l'yttrium défini comme

$$\gamma_Y = g_Y \mu_N = 2.1 \text{ MHz}\cdot\text{T}^{-1}. \quad (4.3)$$

Pour un champ magnétique  $B = 1 \text{ mT}$ , l'hamiltonien Zeeman électronique est de l'ordre de la dizaine de MHz. Son homologue nucléaire atteint seulement le kHz. Comme présenté en introduction, les couplages  $H_{SS}$  et  $H_{SI}$  sont de quelques dizaines de kHz (voir Fig. 1.2). L'hamiltonien Zeeman électronique est donc largement dominant, même pour ces faibles champs magnétiques. Pour décrire l'hamiltonien de spin, nous commencerons par calculer les états propres de l'hamiltonien Zeeman électronique pris isolément. Nous ajouterons ensuite l'effet des autres couplages, considérés comme des perturbations.

## 4.2 Hamiltonien Zeeman électronique

Dans cette partie, étudions l'hamiltonien Zeeman électronique. Ceci revient à comprendre comment réagit le spin d'un ion erbium à un champ magnétique  $\mathbf{B}$  que nous appliquons sur le cristal. Les propriétés anisotropes du système complexifient le calcul des différents couplages. Je vais tout d'abord présenter les deux référentiels utiles aux calculs qui vont suivre puis je diagonaliserai l'hamiltonien Zeeman électronique dominant. Les raisonnements sont identiques dans l'état fondamental  $^4I_{15/2}$  et dans l'état excité  $^4I_{13/2}$ . Cependant, comme leurs valeurs diffèrent, toutes les grandeurs relatives à l'état excité seront primées.

### 4.2.1 Tenseurs anisotropes, repères et conventions

Les tenseurs  $\bar{g}$  de l'état fondamental et  $\bar{g}'$  de l'état excité ont été présentés en Eq. (2.7) dans le repère  $(D_1, D_2, b)$ . Lors du calcul des couplages, il sera souvent commode de passer dans le repère où ces tenseurs sont diagonaux. Pour réaliser le changement de repère présenté dans Fig. 4.1, il faut utiliser la matrice de passage suivante

$$P(\alpha, \beta, \gamma) = \begin{pmatrix} \cos \gamma & \sin \gamma & 0 \\ -\sin \gamma & \cos \gamma & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos \beta & 0 & -\sin \beta \\ 0 & 1 & 0 \\ \sin \beta & 0 & \cos \beta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos \alpha & \sin \alpha & 0 \\ -\sin \alpha & \cos \alpha & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}. \quad (4.4)$$

Cette matrice est construite sur les rotations d'Euler en convention zyz. Les angles d'Euler  $\alpha$ ,  $\beta$  et  $\gamma$  sont rapportés dans Tab. (4.1).

état	$\alpha$	$\beta$	$\gamma$
fondamental	-62.61	53.05	23.95
excité	-56.04	39.65	38.77

TABLE 4.1 – Valeurs des angles d'Euler en degré dans l'état fondamental et excité [65].

L'expression de ces tenseurs dans les repères où ils sont diagonaux s'écrit alors :

$$\begin{aligned} \bar{g} &= P(\alpha, \beta, \gamma) \cdot \bar{g}_{D_1 D_2 b} \cdot P^{-1}(\alpha, \beta, \gamma) \quad \text{et} \quad \bar{g}' = P(\alpha', \beta', \gamma') \cdot \bar{g}'_{D_1 D_2 b} \cdot P^{-1}(\alpha', \beta', \gamma') \\ &= \begin{pmatrix} 0.560 & 0 & 0 \\ 0 & 1.798 & 0 \\ 0 & 0 & 14.654 \end{pmatrix} \quad = \begin{pmatrix} 0.247 & 0 & 0 \\ 0 & 0.848 & 0 \\ 0 & 0 & 12.974 \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (4.5)$$

Il est important de noter que dans les deux états, les valeurs varient fortement selon l'axe considéré. Par définition, la composante dominante est selon l'axe  $O_Z$ . Les deux autres sont portées par les axes  $O_Y$  et  $O_X$ , dans l'ordre décroissant. Leurs valeurs sont faibles par rapport à celles de l'axe  $O_Z$ . Il faut aussi remarquer que les composantes des tenseurs et les angles d'Euler sont différents que l'on soit dans l'état fondamental ou dans l'état excité. Les tenseur  $\bar{g}$  et  $\bar{g}'$  ne sont donc pas diagonaux dans le même repère.

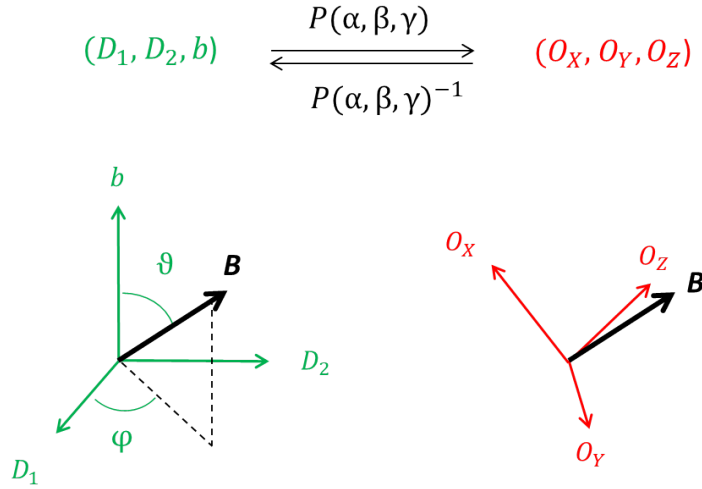


FIGURE 4.1 – Présentation du changement de repère entre celui du cristal  $(D_1, D_2, b)$  (en vert) et le repère  $(O_X, O_Y, O_Z)$  où le tenseur est diagonal (en rouge). Le passage d'un repère à l'autre se fait au moyen de la matrice de passage  $P$  dépendant des angles d'Euler donnés dans Tab. (4.1). Dans le repère du cristal, la co-latitude et la longitude du champ magnétique appliqué sont notées  $\vartheta$  et  $\varphi$  (voir Eq. (2.8)).

#### 4.2.2 Description de l'hamiltonien Zeeman électronique

Nous connaissons maintenant l'expression des tenseurs  $g$  dans leurs repères diagonaux. Dans cette partie, intéressons nous à la résolution de l'hamiltonien Zeeman électronique dans l'état fondamental. Je calculerai tout d'abord les énergies et les vecteurs propres de cet hamiltonien puis définirai les notions de dipôle moyen et de champ équivalent.

##### Dipôle magnétique moyen

Considérons ici un ion erbium unique dans son état fondamental. Le champ magnétique  $\mathbf{B}$  lève la dégénérescence et conduit aux deux états de spin  $|f, -\rangle$  et  $|f, +\rangle$ . Le calcul est mené dans le repère  $(O_X, O_Y, O_Z)$  où le tenseur  $g$  de l'état fondamental est diagonal. La quantification du spin peut être faite selon l'axe  $O_Z$ . Si l'on note  $g_X$ ,  $g_Y$  et  $g_Z$  les composantes du tenseur diagonal, le moment magnétique de l'ion erbium s'écrit

$$\boldsymbol{\mu}_{Er} = \mu_B \begin{pmatrix} g_X S_X \\ g_Y S_Y \\ g_Z S_Z \end{pmatrix}, \quad (4.6)$$

D'après la définition de l'hamiltonien Zeeman électronique (Eq. (2.5)), en utilisant les opérateurs d'échelle  $S_+$  et  $S_-$  définis comme

$$\begin{cases} S_+ = S_X + iS_Y \\ S_- = S_X - iS_Y, \end{cases} \quad (4.7)$$

nous obtenons

$$H_{Ze} = -h\mu_B \left( \frac{(g_X B_X - ig_Y B_Y)}{2} S_+ + \frac{(g_X B_X + ig_Y B_Y)}{2} S_- + g_Z B_Z S_Z \right). \quad (4.8)$$

Les termes  $B_X$ ,  $B_Y$  et  $B_Z$  sont les coordonnées du champ extérieur exprimées dans le repère diagonal. Ce système peut être résolu simplement dans la base  $\{|f, +\rangle, |f, -\rangle\}$ . Les valeurs propres du système sont

$$\lambda_{\pm} = \pm \frac{h\mu_B}{2} \mathcal{N} \quad (4.9)$$

où  $\mathcal{N}$  est définie par

$$\mathcal{N} = \sqrt{g_X^2 B_X^2 + g_Y^2 B_Y^2 + g_Z^2 B_Z^2}. \quad (4.10)$$

Les vecteurs propres associés s'écrivent

$$\begin{aligned} |+\rangle &= u |f, +\rangle + v |f, -\rangle \\ |-\rangle &= -v^* |f, +\rangle + u^* |f, -\rangle \end{aligned} \quad \text{avec} \quad \begin{aligned} u &= \frac{\sqrt{\mathcal{N} + g_Z B_Z}}{\sqrt{2\mathcal{N}}} \\ v &= \frac{g_X B_X + ig_Y B_Y}{\sqrt{2\mathcal{N}(\mathcal{N} + g_Z B_Z)}}. \end{aligned} \quad (4.11)$$

L'espérance quantique du moment magnétique électronique sur les niveaux Zeeman, aussi appelé dipôle moyen, s'écrit alors

$$\langle \boldsymbol{\mu}_{Er} \rangle = \langle \pm | \boldsymbol{\mu}_{Er} | \pm \rangle = \pm \frac{\mu_B}{2\mathcal{N}} \begin{pmatrix} g_X^2 B_X \\ g_Y^2 B_Y \\ g_Z^2 B_Z \end{pmatrix}. \quad (4.12)$$

Cette expression sera utilisée dans les calculs de la partie 4.4. Nous pouvons remarquer que le dipôle moyen de l'ion erbium n'est pas orienté selon le champ magnétique appliqué. Nous comprenons ici que ce décalage est dû au caractère anisotrope du tenseur  $g$ .

### Champ équivalent

Dans certains cas, utiliser la notion de champ équivalent facilite les calculs. Ce champ serait celui à appliquer à un système isotrope de spin  $\frac{1}{2}$  pour avoir des propriétés équivalentes. Nous pouvons alors écrire  $H_{Ze} = -h\mathbf{S} \cdot \mathbf{B}_{eq}$  avec

$$\mathbf{B}_{eq} = \mu_B \begin{pmatrix} g_X B_X \\ g_Y B_Y \\ g_Z B_Z \end{pmatrix} = \mu_B \mathcal{N} \begin{pmatrix} \sin \Theta \cos \Phi \\ \sin \Theta \sin \Phi \\ \cos \Theta \end{pmatrix}. \quad (4.13)$$

$\Theta$  et  $\Phi$  représentent respectivement la co-latitude et la longitude du champ équivalent dans le repère diagonal (voir Fig. 4.4).  $\mathcal{N}$  est la norme de ce champ, toujours définie par Eq. (4.10). L'utilisation du champ équivalent permet donc de reporter l'anisotropie du tenseur  $g$  sur le champ magnétique extérieur. Il sera utilisé dans les calculs de l'annexe B.2 menant à Eq. (4.20).

Nous retrouvons bien les valeurs propres données en Eq. (4.9) et les vecteurs propres peuvent s'écrire en fonction des coordonnées sphériques du champ équivalent

$$\begin{aligned} |+\rangle &= \cos \frac{\Theta}{2} |f, +\rangle + \sin \frac{\Theta}{2} e^{i\Phi} |f, -\rangle \\ |-\rangle &= -\sin \frac{\Theta}{2} e^{-i\Phi} |f, +\rangle + \cos \frac{\Theta}{2} |f, -\rangle \end{aligned} \quad (4.14)$$

Il est clair que la direction de ce champ est encore une fois différente de celle du champ magnétique appliqué. Ce vecteur n'est pas non plus aligné au dipôle moyen. Les directions de ces différents vecteurs et les effets physiques qui en découlent dépendent fortement de l'angle du champ appliqué. Nous pouvons voir dans Fig. 4.2 deux situations bien différentes, lorsque l'on modifie l'angle  $\varphi$  entre le champ magnétique extérieur et l'axe  $D_1$  du cristal.

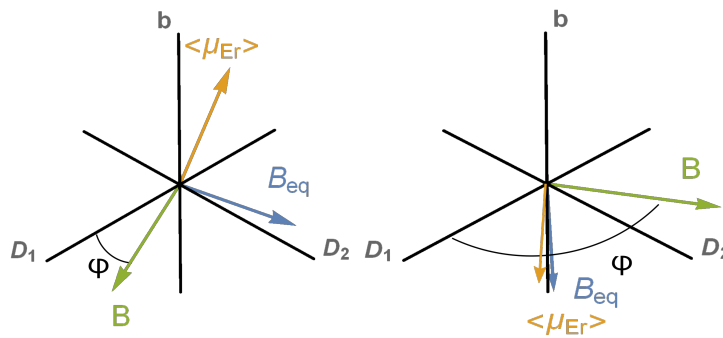


FIGURE 4.2 – Représentation des vecteurs  $B$ ,  $B_{eq}$  et  $\langle \mu_{Er} \rangle$  dans le repère  $(D_1, D_2, b)$ . Les deux situations correspondent respectivement à un champ externe appliqué à  $25^\circ$  et  $120^\circ$  de l'axe  $D_1$ . Nous remarquons que les trois vecteurs ne sont pas alignés et que leurs orientations relatives varient fortement avec celle du champ extérieur.

En choisissant le repère adéquat, nous avons pu évaluer l'influence de l'anisotropie du système sur l'hamiltonien Zeeman électronique. Le dipôle moyen et le champ équivalent subissent son effet. Ils ne sont pas alignés au champ magnétique appliqué mais varient avec son orientation. Nous allons voir que ceci a des effets importants sur la dynamique des spins du système (partie 4.3). Par ailleurs, les tenseurs  $g$  de l'état fondamental et de l'état excité ont des valeurs différentes et ne sont pas diagonaux dans les mêmes repères. Ceci jouera un rôle majeur lors de l'étude des couplages super-hyperfins (partie 4.4).

### 4.3 Couplages erbium-erbium

Après avoir étudié l'hamiltonien dominant  $H_{Ze}$ , intéressons nous aux phénomènes d'ordre inférieur, traités comme des perturbations. Dans un premier temps, décrivons l'hamiltonien  $H_{SS}$  qui regroupe l'ensemble des basculements réciproques entre les spins électroniques des ions erbium. Malgré les faibles concentrations de dopage utilisées, ces ions restent nombreux dans le système que nous étudions. Chacun subit l'effet du champ magnétique appliqué, comme étudié dans la partie précédente. Nous calculons ici plus précisément le taux de couplage moyen du spin d'un erbium de l'état fondamental couplé aux spins identiques de son entourage. J'appliquerai ensuite ce calcul à  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ . Nous pourrions alors observer l'effet de l'anisotropie sur la force de ces couplages.

Le calcul du couplage moyen peut être réalisé dans le cadre de la théorie des perturbations dépendantes du temps à l'ordre 1 [83]. De plus, nous verrons dans la partie 6.1 que les niveaux de spin subissent eux aussi un élargissement inhomogène. Un spin peut alors se coupler à l'ensemble de ses semblables répartis sur une large bande de fréquence. Dans ce cas, le taux de couplage peut être estimé en utilisant la règle d'or de Fermi [70, 84].

#### 4.3.1 Calcul général

Soit un système de  $N$  spins électroniques à l'équilibre, dans leur état fondamental. Pour les faibles champs que nous considérons, l'éclatement Zeeman électronique est plus faible que l'énergie thermique. Une excitation est nécessaire pour rompre l'équilibre entre le nombre de spins présents dans les états propres  $|+\rangle$  et  $|-\rangle$  (définis en Eq. (4.14)). En optique, elle ne touche qu'une fraction de l'élargissement inhomogène. Cela crée alors un petit groupe  $W_+$  de spins hors équilibre dans l'état  $|+\rangle$  et permet la mesure des relaxations de spin. Ce faible déséquilibre est une des grandes différences entre notre étude optique et celles effectuées par résonances magnétiques. Considérons alors le couplage dipolaire  $W_{ij}$  (explicité dans Eq. (1.3)) entre un spin  $i$  appartenant à  $W_+$  et un spin  $j$  dans l'état  $|-\rangle$ . L'état initial de ces deux dipôles est représenté par le produit tensoriel  $|+\rangle_i \otimes |-\rangle_j = |+-\rangle$ . Le taux de basculement du spin  $i$  correspond à la somme des couplages  $W_{ij}$  avec tous les spins  $j$  de son entourage. Ceci doit ensuite être moyenné sur l'ensemble des spins  $i$  du système. Le taux moyen final de ces basculements réciproques peut être estimé à l'aide de la règle d'or de Fermi [70, p. 294] et s'écrit

$$\mathcal{R} = \frac{2\pi}{\hbar} \left\{ \sum_{j \in \{|-\rangle\}} |\langle -+ | W_{ij} | +- \rangle|^2 \right\}_{i \in W_+} \frac{1}{\hbar \Gamma_{inh,s}}. \quad (4.15)$$

Le terme entre crochets correspond à la moyenne sur tous les ions hors équilibre de  $W_+$ .  $\Gamma_{inh,s}$  est la largeur inhomogène de spin exprimée en Hz. Dans notre système dilué, la distance entre deux ions erbium est grande devant la taille de la maille cristalline. Les positions des spins  $j$  de l'environnement peuvent donc être considérées comme des variables aléatoires indépendantes. Ainsi, nous pouvons remplacer la somme discrète par une intégrale continue. En observant l'expression de  $W_{ij}$ , nous remarquons aussi que la dépendance radiale se limite au terme  $\frac{1}{r_{i,j}^3}$ , en facteur des termes dépendant de l'angle du champ. Ces deux dépendances sont donc séparables. La somme peut être décomposée en une moyenne angulaire continue et une moyenne radiale. Toutefois, une moyenne continue de cette dernière divergerait pour les plus faibles distances. Nous choisissons donc d'estimer sa valeur de manière discrète par le biais d'un réseau de spins fictifs. Nous pouvons alors écrire

$$\mathcal{R} = \frac{2\pi}{\hbar} \left( \frac{\mu_0}{4\pi} \hbar^2 \right)^2 \frac{1}{\hbar \Gamma_{inh,s}} \times \Xi(\bar{g}, \mathbf{B}) \times \sum_{j \in \{|-\rangle\}} \frac{1}{r_{ij}^6}, \quad (4.16)$$

avec la moyenne angulaire

$$\Xi(\bar{g}, \mathbf{B}) = \frac{1}{4\pi} \int |\langle -+ | (\boldsymbol{\mu}_{Er,i} \cdot \boldsymbol{\mu}_{Er,j} - 3(\boldsymbol{\mu}_{Er,i} \cdot \hat{\mathbf{r}}_{ij})(\boldsymbol{\mu}_{Er,j} \cdot \hat{\mathbf{r}}_{ij})) | +- \rangle|^2 d\hat{\mathbf{r}}_{ij}. \quad (4.17)$$

Dans ces expressions,  $\hat{\mathbf{r}}_{ij}$  représente le vecteur unitaire décrivant la position relative entre les spins  $i$  et  $j$ , dans le repère diagonal (voir Fig. 4.4). Ces deux spins sont alors séparés par la distance  $r_{ij}$ .

### Somme radiale

Calculons en premier lieu la somme sur les distances. Pour cela, nous faisons l'hypothèse que chaque spin de  $W_+$  est entouré par un réseau cubique d'ions erbium dans l'état  $|-\rangle$  (voir Fig. 4.3). En faisant le calcul pour ce réseau fictif, la somme converge rapidement vers la valeur  $8.4 n_{Er}^2$ . (calcul présenté dans l'annexe B.1).  $n_{Er}$  représente la densité des ions erbium équivalents, pouvant induire un basculement réciproque.

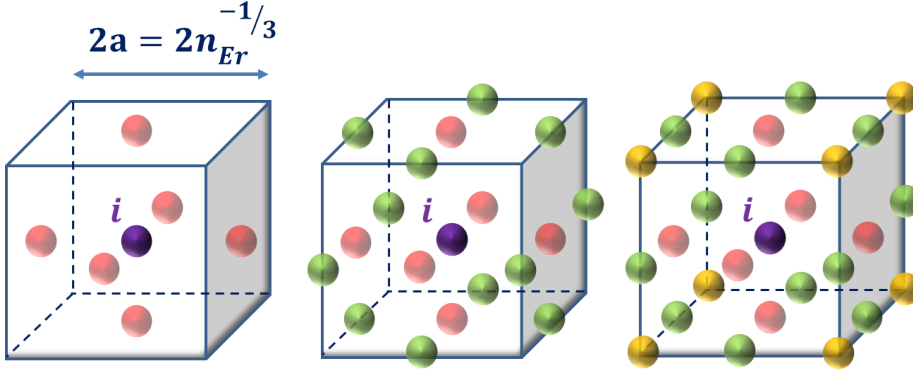


FIGURE 4.3 – Représentation schématique du réseau cubique fictif des spins électroniques  $j$  entourant le spin d'intérêt  $i$  (violet). Les 6 plus proches voisins (rouge) sont au milieu de chaque face d'un cube d'arête  $2a = 2n_{Er}^{-1/3}$ . Les seconds et troisièmes voisins sont représentés en vert et jaune respectivement.

La densité de spin  $n_{Er}$  peut être reliée à la densité d'ions yttrium de la matrice  $Y_2SiO_5$  par la relation

$$n_{Er} = 0.77 \times \frac{1}{2} \times \frac{1}{2} \times c n_Y. \quad (4.18)$$

Dans cette formule,  $c$  représente la concentration d'ions erbium dopants. Différents facteurs réduisent la densité des spins qui peuvent interagir par basculement réciproque. Le premier facteur correspond au pourcentage naturel des isotopes pairs de l'erbium. En effet, les niveaux de spin des isotopes impairs sont décalés en fréquence par interaction hyperfine. Ils ne sont donc pas résonants avec les spins électroniques. Le deuxième facteur vient du fait que les spins appartenant à des niveaux Zeeman différents ne peuvent pas se coupler car ils ne sont pas non plus résonants. Il en va de même pour les deux sites de substitution de l'erbium dans  $Y_2SiO_5$ , à l'origine du troisième facteur. Nous pouvons donc finalement remplacer la somme radiale dans Eq. (4.16) et obtenir

$$\mathcal{R} = \frac{2\pi}{\hbar} \left( \frac{\mu_0}{4\pi} \hbar^2 \right)^2 \frac{1}{\hbar \Gamma_{inh}^{spin}} \times \Xi(\bar{g}, \mathbf{B}) \times 8.4 \left( \frac{0.77 c n_Y}{4} \right)^2. \quad (4.19)$$



### Moyenne angulaire

Il nous faut maintenant faire le calcul de la moyenne angulaire du carré du terme de couplage. Ce calcul est entièrement développé dans l'annexe B.2. Je vais ici présenter uniquement le cadre et le résultat de ce calcul. Nous souhaitons étudier le couplage entre un spin hors équilibre  $i$  de  $W_+$  et tous les spins dans l'état  $|-\rangle$  de son entourage. Encore une fois, comme nous travaillons avec une faible concentration en erbium ( $c = 10$  ppm), il est équivalent de traiter cette multitude de spins comme la moyenne d'un seul spin  $j$  balayant un continuum de positions angulaires. Le calcul est fait dans le repère  $(O_X, O_Y, O_Z)$  où le tenseur  $g$  de l'état fondamental de l'erbium est diagonal. Le champ magnétique que nous appliquons sur le système impose la direction du champ équivalent ressenti par le spin  $i$  (Eq. (4.13)). Celui-ci est dirigé selon les coordonnées sphériques  $\Theta$  et  $\Phi$  (voir Fig. 4.4). Les coordonnées  $\theta$  et  $\phi$  représentent quant à elles la position relative entre le spin  $i$  et le spin  $j$  avec lequel il interagit.

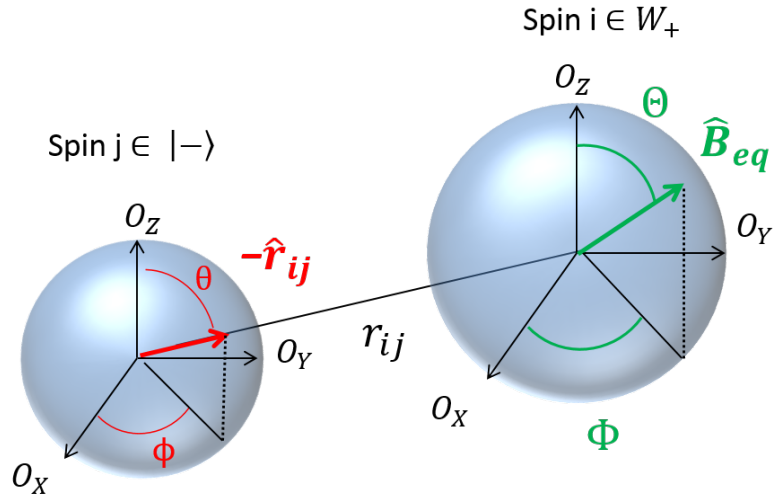


FIGURE 4.4 – Schéma de l'interaction entre les spins  $i$  et  $j$ . Les coordonnées sphériques  $\Theta$  et  $\Phi$  sont celles du champ équivalent ressenti par le spin  $i$  que nous considérons.  $\theta$  et  $\phi$  portent quant à elles le vecteur  $\hat{r}_{ij}$  qui caractérise l'orientation relative entre les deux spins couplés. Ces coordonnées sont exprimées dans le repère  $(O_X, O_Y, O_Z)$  où le tenseur  $g$  de l'état fondamental est diagonal.

Finalement, le calcul de cette moyenne angulaire permet de l'exprimer comme suit

$$\begin{aligned} \Xi(\bar{g}, \mathbf{B}) \mu_B^{-4} = & \frac{9}{80} \left\{ \left[ \frac{2}{3} \mathcal{S} - \sin^2 \Theta \frac{\Delta_1}{2} + \left( \cos^2 \Theta - \frac{1}{3} \right) \cos(2\Phi) \frac{\Delta_2}{2} \right]^2 \right. \\ & \left. + \frac{2}{9} (\mathcal{S} - \cos(2\Phi) \Delta_2)^2 + \cos^2 \Theta \sin^2(2\Phi) \frac{\Delta_2^2}{2} \right\} \\ & - \frac{1}{64} [2\mathcal{S} - \sin^2 \Theta \Delta_1 - \sin^2 \Theta \cos(2\Phi) \Delta_2]^2 \end{aligned} \quad (4.20)$$

$$\text{avec } \begin{cases} \mathcal{S} = g_X^2 + g_Y^2, \\ \Delta_1 = g_X^2 + g_Y^2 - 2g_Z^2 \\ \Delta_2 = g_X^2 - g_Y^2. \end{cases}$$

Cette expression complexe peut être grandement simplifiée selon le choix de l'orientation du champ magnétique. Par exemple, pour  $\Theta = 0^\circ$  ( $\mathbf{B}$  selon  $O_Z$ ), la moyenne angulaire est indépendante de  $\Phi$  et de  $g_Z$  :

$$\Xi(\bar{g}, \mathbf{B}) = \frac{\mu_B^4}{20} (g_X^4 + g_Y^4 - g_X^2 g_Y^2). \quad (4.21)$$

De la même façon, pour  $\Theta = 90^\circ$  ( $\mathbf{B}$  dans le plan  $(O_X, O_Y)$ ), la moyenne angulaire s'exprime comme

$$\Xi(\bar{g}, \mathbf{B}) = \frac{\mu_B^4}{20} (g_Z^4 + g_\perp^4 - g_Z^2 g_\perp^2). \quad (4.22)$$

Le facteur  $g$  perpendiculaire qui apparaît dans cette équation est défini par

$$\frac{1}{g_\perp} = \frac{1}{B^2} \left( \frac{B_X^2}{g_Y^2} + \frac{B_Y^2}{g_X^2} \right). \quad (4.23)$$

A travers ces deux exemples, nous comprenons que la moyenne angulaire ne dépend que des composantes du tenseur  $g$  perpendiculaires à l'orientation du champ appliqué. Le taux de basculement réciproque est donc nécessairement sensible à l'orientation du champ magnétique. Selon l'expression du tenseur  $g$  du matériau étudié, la variation de ce taux sera plus ou moins marquée.

### 4.3.2 Variation du couplage dans $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$

Appliquons maintenant ce calcul au cas de notre système où le tenseur  $g$  est très anisotrope. Le point important est de remarquer que dans le fondamental, ce dernier possède une grande composante selon l'axe  $O_Z$  ( $g_Z = 14.654$ ) et des composantes bien plus faibles selon les autres axes (voir Eq. (4.5)). Nous avons compris que le taux des basculements réciproques est proportionnel à la puissance 4 des valeurs du tenseur perpendiculaires à l'orientation du champ extérieur. Nous pouvons donc supposer que ce taux variera fortement selon l'angle appliqué. En effet, sa valeur est bien plus élevée lorsque le champ est dans le plan  $(O_X, O_Y)$ , perpendiculaire à l'axe principal du tenseur, que lorsque qu'il est selon l'axe  $O_Z$ . En négligeant la contribution de la composante  $g_X$ , le rapport entre le maximum et le minimum du taux de basculement est donc

$$\frac{\mathcal{R}_{max}}{\mathcal{R}_{min}} \propto \frac{g_Z^4}{g_Y^4} \approx 5.10^3. \quad (4.24)$$

Ceci souligne le fait que le taux de basculement réciproque doit être très anisotrope. Le résultat du calcul analytique de la moyenne angulaire (Eq. (4.20)) est donné dans Fig. 4.5. La variation du champ magnétique dans le repère  $(D_1, D_2, b)$  y est exprimée par l'angle  $\varphi$ . Les basculements réciproques sont donc très probables dans la région où apparaît un maximum piqué, autour de  $\varphi \approx 27^\circ$ . Au contraire, ils sont minimisés sur une plus large zone, autour de  $\varphi = 133^\circ$ .

Il est maintenant clair que l'anisotropie du tenseur  $g$  a un effet considérable sur la dynamique des spins électroniques. Ceci est particulièrement vrai pour le système  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ . L'expression de son tenseur conduit à une variation du taux de basculement réciproque de plus de trois ordres de grandeur en fonction de l'orientation du champ appliqué. Nous chercherons à vérifier expérimentalement ceci dans le chapitre 6. Cependant, nous allons voir que l'influence de l'anisotropie ne s'arrête pas aux niveaux de spin électronique.

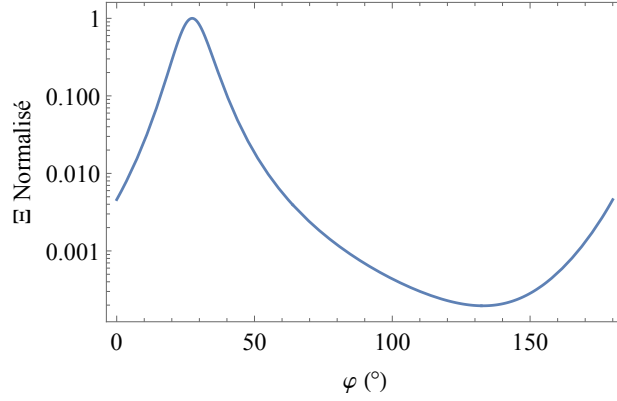


FIGURE 4.5 – Variation de la moyenne angulaire du couplage carré en fonction de l’angle  $\varphi$  du champ magnétique extérieur. L’échelle logarithmique nous permet de voir que l’effet de l’anisotropie du tenseur  $g$  est exacerbée. Il y a plus de trois ordres de grandeur entre la valeur maximale du couplage (pour  $\varphi = 27^\circ$ ) et sa valeur minimale (pour  $\varphi = 133^\circ$ ).

## 4.4 Couplages erbium-yttrium

Les couplages super-hyperfins avec les spins nucléaires des ions yttrium sont à l’origine du dédoublement des niveaux Zeeman. Comme présenté dans la partie 3.3.2, ils peuvent être la cause de modulations d’un signal d’écho de photon. Ces modulations dépendent alors des caractéristiques du couplage. L’ajout des perturbations nucléaires à l’hamiltonien  $H_{Ze}$  va nous permettre de déterminer les quatre états propres de ce système électro-nucléaire couplé. Après avoir calculé l’expression du rapport de branchement entre ces niveaux, nous comprendrons que l’anisotropie de  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$  a aussi un effet très important sur les modulations d’écho.

Étudions l’effet des termes nucléaires dans l’hamiltonien Eq. (4.1). Nous considérerons simultanément l’interaction Zeeman nucléaire et le couplage super-hyperfin sous la forme  $H_n = H_{Zn} + H_{SI}$ . Ces deux interactions ont des ordres de grandeur comparables pour les champs magnétiques que nous étudions (environ 100 kHz pour 100 mT d’après Eq. (1.4) et Eq. (4.2)). L’étude sera limitée à un seul ion erbium entouré d’une multitude d’yttrium. En effet, deux arguments nous permettent de négliger les basculements de l’erbium. D’une part, les temps observés dans cette partie sont courts devant leur taux de basculement réciproque ; d’autre part, comme le magnéton nucléaire est bien plus faible que le magnéton de Bohr ( $\mu_n \approx 0.001 \mu_B$ ), le spin de l’erbium est insensible aux basculements des ions yttrium. Par conséquent, cette étude se limite à la considération du terme  $H_n$  comme perturbation de l’hamiltonien Zeeman électronique  $H_{Ze}$  [78].

### 4.4.1 Calcul des énergies propres

Réduisons encore le calcul à l’interaction entre le spin électronique de l’erbium et un unique ion yttrium de son entourage, situé à une distance  $r_Y$  quelconque (voir Fig. 4.7). Dans cette partie, la position de cet yttrium fictif pourra balayer tout l’espace. Les contraintes réelles de la matrice sur ces positions ne seront considérées que lors de l’étude expérimentale du chapitre 7. D’après les arguments énoncés ci-dessus, nous supposerons que le spin de l’erbium reste dans l’état propre de l’hamiltonien Zeeman  $|-\rangle$  pour l’état fondamental (défini en Eq. (4.11)) ou  $|-\rangle'$  dans l’excité. Les calculs pourraient bien évidemment se faire de manière similaire pour les deux autres états propres. Le dipôle de l’erbium est alors égal au dipôle moyen  $\langle \mu_{Er} \rangle$  (Eq. (4.12)). Les différents états propres de ce système de deux spins définissent la base dans laquelle nous

effectuons le calcul :  $\{|-\rangle_Y, |+\rangle_Y, |-\rangle'_Y, |+\rangle'_Y\}$  (voir Fig. 4.6).

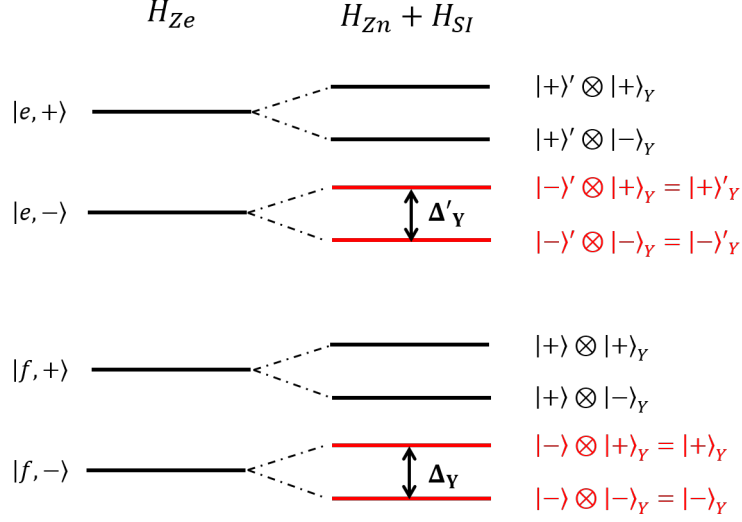


FIGURE 4.6 – Schéma de niveau représentant la levée de dégénérescence due au couplage super-hyperfin entre un erbium et un yttrium voisin. Les niveaux représentés en rouge sont ceux considérés dans le calcul de cette partie. Leurs écarts en fréquence sont notés  $\Delta_Y$  et  $\Delta'_Y$  dans l'état fondamental et dans l'état excité respectivement.

Calculons les états propres de l'état fondamental dans la base  $\{|+\rangle_Y, |-\rangle_Y\}$ . Plaçons nous dans le repère  $(D_1, D_2, b)$  où les composantes seront indicées par  $x, y$  et  $z$  (par opposition aux indices majuscules décrivant celles dans le repère diagonal). Le dipôle moyen de l'erbium est exprimé dans le référentiel où le tenseur  $g$  est diagonal. Nous devons donc effectuer le changement de repère suivant

$$\langle \boldsymbol{\mu}_{Er} \rangle_{xyz} = P^{-1}(\alpha, \beta, \gamma) \langle \boldsymbol{\mu}_{Er} \rangle. \quad (4.25)$$

$P$  représente la matrice de passage entre ces repères (Eq. (4.4)) et les angles  $\alpha, \beta$  et  $\gamma$  sont les angles d'Euler donnés dans Tab. (4.1). Nous définissons aussi le moment effectif

$$\boldsymbol{\mu}_{eff} = 3(\langle \boldsymbol{\mu}_{Er} \rangle_{xyz} \cdot \hat{\mathbf{r}}_Y) \hat{\mathbf{r}}_Y - \langle \boldsymbol{\mu}_{Er} \rangle_{xyz}. \quad (4.26)$$

$\hat{\mathbf{r}}_Y$  représente l'orientation de l'yttrium dans  $(D_1, D_2, b)$ . Sa longitude et sa co-latitude sont notées  $\theta_Y$  et  $\phi_Y$  (voir Fig. 4.9). Grâce à ce changement de repère, nous pouvons écrire

$$H_n = H_{Zn} + H_{SI} = -h\gamma_Y \mathbf{I} \cdot \mathbf{B} - \frac{\mu_0 \hbar^2 \gamma_Y}{4\pi r_Y^3} (I_x \mu_{eff,x} + I_y \mu_{eff,y} + I_z \mu_{eff,z}) \quad (4.27)$$

Fixons l'axe de quantification selon la direction  $I_z$ . Nous pouvons alors séparer les parties dia-

gonale et non diagonale de cet hamiltonien

$$\begin{aligned}
 H_n = & -h\gamma_Y I_z \left( \frac{\mu_0 \hbar}{4\pi r_Y^3} \mu_{eff,z} \right) & \Rightarrow & H_{diag} \\
 & \left. \begin{aligned}
 & -h\gamma_Y \frac{I_+}{2} \left( B(\cos \varphi - i \sin \varphi) - \frac{\mu_0 \hbar}{4\pi r_Y^3} (\mu_{eff,x} - i\mu_{eff,y}) \right) \\
 & -h\gamma_Y \frac{I_-}{2} \left( B(\cos \varphi + i \sin \varphi) - \frac{\mu_0 \hbar}{4\pi r_Y^3} (\mu_{eff,x} + i\mu_{eff,y}) \right)
 \end{aligned} \right\} & \Rightarrow & H_{nondiag}
 \end{aligned} \quad (4.28)$$

$I_+$  et  $I_-$  sont les opérateurs d'échelle du spin nucléaire (équivalents définis dans Eq. (4.7)). En analysant l'équation précédente, nous réalisons que nous pouvons écrire l'hamiltonien nucléaire sous la forme

$$H_n = -\frac{h\gamma_Y}{2} \begin{pmatrix} B_{\parallel} & B e^{-i\varphi} + B_{\perp} e^{-iK} \\ B e^{i\varphi} + B_{\perp} e^{iK} & -B_{\parallel} \end{pmatrix} \quad (4.29)$$

où l'on définit les champs suivants

$$\left. \begin{aligned}
 B_{\parallel} &= \frac{\mu_0 \hbar}{4\pi r_Y^3} \mu_{eff,z} \\
 B_{\perp} &= \frac{\mu_0 \hbar}{4\pi r_Y^3} \sqrt{\mu_{eff,x}^2 + \mu_{eff,y}^2}
 \end{aligned} \right\} \mathbf{B}_{Er} = \frac{\mu_0 \hbar}{4\pi r_Y^3} \begin{pmatrix} \mu_{eff,x} \\ \mu_{eff,y} \\ \mu_{eff,z} \end{pmatrix}. \quad (4.30)$$

et  $K = \arg(\mu_{eff,x} + i\mu_{eff,y})$

Il est important de noter que le vecteur  $\mathbf{B}_{Er}$  correspond au champ local créé par le dipôle effectif de l'erbium sur l'ion yttrium (voir Fig. 4.7). Le terme non-diagonal sera donc une compétition entre le champ externe  $\mathbf{B}$  et la partie perpendiculaire de ce champ, notée  $B_{\perp}$ .

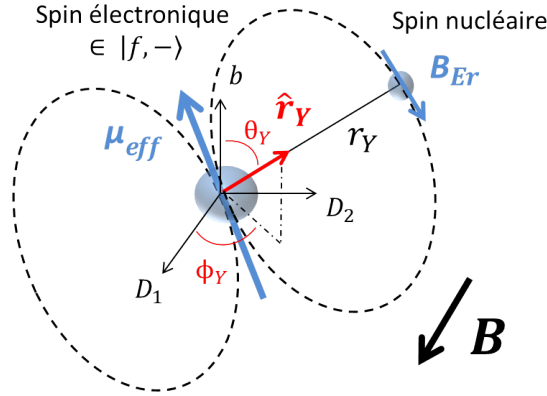


FIGURE 4.7 – Représentation du couplage entre le spin électronique de l'erbium et un spin nucléaire de son entourage, à une distance  $r_Y$ . La position angulaire de ces deux spins est donnée par  $\hat{\mathbf{r}}_Y$  dans  $(D_1, D_2, b)$ . Les lignes en pointillés sont deux lignes de champ émises par le dipôle effectif de l'erbium  $\mu_{eff}$ . Le spin nucléaire ressent un champ  $\mathbf{B}_{Er}$  variable selon sa position. Celui-ci doit être comparé au champ magnétique extérieur  $\mathbf{B}$ , ici appliqué selon  $D_1$ .

Les énergies propres associées aux deux niveaux super-hyperfins  $|+\rangle_Y$  et  $|-\rangle_Y$  sont

$$\Lambda_{\pm} = \pm \frac{\gamma_Y}{2} \sqrt{B_{\parallel}^2 + \|B e^{i\varphi} + B_{\perp} e^{iK}\|^2} = \pm \frac{\gamma_Y}{2} \|\mathbf{B} + \mathbf{B}_{Er}\|. \quad (4.31)$$

Notons  $\Delta_Y$  l'écart entre ces niveaux. Il peut être exprimé en Hz comme

$$\Delta_Y = 2\Lambda = \gamma_Y \|\mathbf{B} + \mathbf{B}_{Er}\|. \quad (4.32)$$

Cette expression souligne le fait que l'écart entre les états propres du système dépend des différents champs ressentis par l'yttrium. Cet écart est minimal lorsque le champ local créé par l'erbium s'oppose au champ magnétique extérieur. Comme  $\mathbf{B}$  est dans le plan  $(D_1, D_2)$ , ceci revient à annuler la partie non diagonale de l'hamiltonien donné en Eq. (4.29), lorsque  $B = -B_{\perp}$ . Pour ce champ particulier, l'écart est uniquement déterminé par la partie diagonale de l'hamiltonien ; il vaut alors  $\Delta_Y = \gamma_Y B_{\parallel}$ . Le raisonnement est encore une fois identique dans l'état excité. Dans les deux états, les niveaux super-hyperfins présentent donc une situation de croisement évité comme représenté dans Fig. 4.8. Comme les champs parallèles  $B_{\parallel}$  et perpendiculaires  $B_{\perp}$  créés par l'erbium dépendent du tenseur  $g$ , les caractéristiques de ces croisements évités dépendent aussi de l'orientation du champ magnétique extérieur. De plus, elles sont différentes entre l'état fondamental et l'état excité du système. Nous allons voir que ceci a une influence cruciale sur le rapport de branchement entre ces différents niveaux.

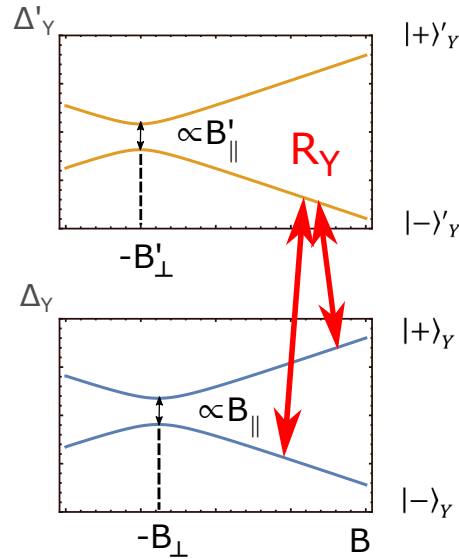


FIGURE 4.8 – Schéma des états propres super-hyperfins du système considéré. Ces niveaux présentent une structure de croisement évité dont la position et l'écart en fréquence minimal dépendent de l'angle du champ appliqué. Ces valeurs sont différentes pour l'état excité (en jaune) et le fondamental (en bleu). Les flèches rouges entre les états  $|-\rangle_Y$ ,  $|+\rangle_Y$  et  $|-\rangle'_Y$  relient les niveaux considérés lors du calcul du rapport de branchement de la partie suivante. Les états d'énergie présentés correspondent au plus proche voisin yttrium sous un champ orienté à  $\varphi = 225^\circ$ . Pour cette orientation, nos calculs donnent  $-B_{\perp} = 183$  mT et  $-B'_{\perp} = 153$  mT.

#### 4.4.2 Vecteurs propres et rapport de branchement

Calculons maintenant le rapport de branchement qu'il y aurait entre deux niveaux super-hyperfins lors d'un passage par la transition optique (voir Fig. 4.8). Par définition ce rapport s'écrit

$$R_Y = \left\| \frac{Y \langle + | - \rangle'_Y}{Y \langle - | - \rangle'_Y} \right\|^2. \quad (4.33)$$

L'expression des états propres qui apparaissent dans cette formule peut être trouvée facilement en posant

$$\mathbf{B}_{eff} = \mathbf{B} + \mathbf{B}_{Er} \quad \text{et} \quad \mathbf{B}'_{eff} = \mathbf{B} + \mathbf{B}'_{Er}. \quad (4.34)$$

Ces champs correspondent aux champs effectifs ressentis par le système dans l'état fondamental et dans l'état excité. Ils sont égaux à la somme du champ externe et du champ créé par l'erbium au point de l'espace considéré (voir Fig. 4.9). Dans ces deux états, l'hamiltonien nucléaire peut s'écrire simplement

$$H_n = -h\gamma_Y \mathbf{I} \cdot \mathbf{B}_{eff} \quad \text{et} \quad H'_n = -h\gamma_Y \mathbf{I} \cdot \mathbf{B}'_{eff}. \quad (4.35)$$

La description de ces hamiltoniens et l'expression de leurs états propres est développée dans l'annexe C.

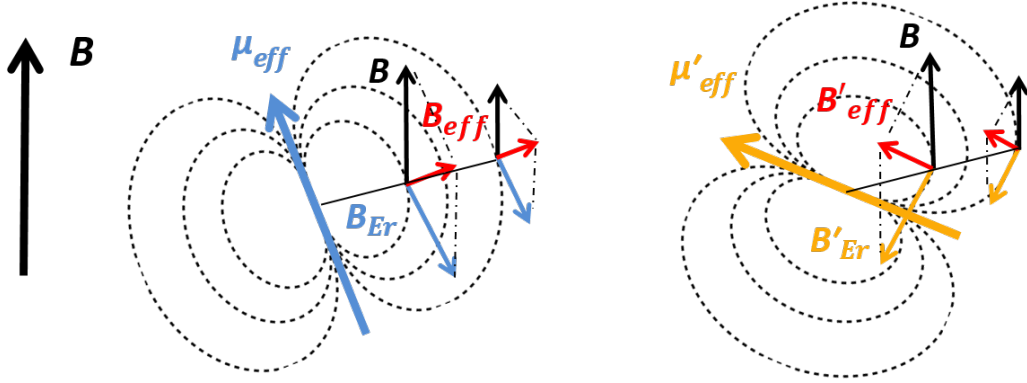


FIGURE 4.9 – Représentation schématique des champs ressentis par un yttrium à une position angulaire donnée, pour deux distances  $r_Y$  différentes. Pour aider à la compréhension, les moments effectifs sont représentés dans le plan  $(D_1, D_2)$ . À gauche, l'erbium est dans son état fondamental et le champ effectif  $\mathbf{B}_{eff}$  au niveau de l'yttrium est représenté en rouge. À droite, l'erbium est dans son état excité. Le champ effectif  $\mathbf{B}'_{eff}$  au niveau du même yttrium y est orienté de manière différente. Lorsque la distance à l'erbium augmente, diminuer la norme  $B$  permet de retrouver un angle identique entre les champs effectifs.

Dans cette annexe, nous démontrerons aussi que, comme tout rapport de branchement [85, chap. 3.3], le rapport super-hyperfin peut s'exprimer sous la forme

$$R_Y = \frac{1 - \hat{\mathbf{B}}_{eff} \cdot \hat{\mathbf{B}}'_{eff}}{1 + \hat{\mathbf{B}}_{eff} \cdot \hat{\mathbf{B}}'_{eff}}. \quad (4.36)$$

Ce que nous avons appelé contraste de modulation dans le chapitre précédent (Eq. (3.51)) peut alors s'écrire

$$\mathcal{C}_Y = \frac{4R_Y}{(1 + R_Y)^2} = 1 - (\hat{\mathbf{B}}_{eff} \cdot \hat{\mathbf{B}}'_{eff})^2. \quad (4.37)$$

Les deux expressions obtenues sont très intéressantes de par leur simplicité. Ces grandeurs ne dépendent que de l'angle relatif entre les champs effectifs ressentis par l'ion yttrium, lorsque l'erbium est dans l'état fondamental ou dans l'état excité. Nous comprenons aussi que la différence de l'orientation des moments effectifs dans les deux états est essentielle pour qu'elles puissent être non nulles. Le contraste de modulation tend vers sa valeur maximale de 1 lorsque l'angle entre les champs effectifs des deux états se rapproche de  $90^\circ$ .

#### 4.4.3 Effet de l'anisotropie de $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$

Étudions finalement l'effet de l'anisotropie du système sur ce contraste de modulation. Considérons dans un premier temps que l'orientation du champ magnétique extérieur est fixe. Le contraste de la modulation provoquée par un yttrium dépend des champs effectifs que cet ion ressent. Or, les champs locaux créés par l'erbium varient selon la position du ligand. La distance et la position angulaire de ce dernier modifient donc la valeur du contraste. Pour une position donnée, seule la norme du champ magnétique extérieur peut alors changer cette valeur. Lorsque ce champ maximise l'angle entre les champs effectifs de l'état fondamental et de l'état excité, le contraste de modulation est maximal. Il est important de réaliser que ce contraste maximal varie en fonction de la position angulaire de l'yttrium mais qu'il est indépendant de sa position radiale. Ceci est représenté schématiquement par l'exemple donné dans Fig. 4.9. Lorsque la distance relative entre l'erbium et un yttrium augmente, les champs locaux  $B_{Er}$  et  $B'_{Er}$  ressentis par ce dernier diminuent. Les orientations des champs effectifs  $\mathbf{B}_{eff}$  et  $\mathbf{B}'_{eff}$  sont donc modifiées et par conséquent, le contraste  $\mathcal{C}_Y$  varie. Cependant, l'angle initial entre les champs effectifs peut toujours être retrouvé en diminuant la norme du champ appliqué  $B$ . Ceci permet donc d'atteindre le contraste maximal quelle que soit la distance relative entre l'erbium et son voisin yttrium.

Par ailleurs, les moments effectifs de l'erbium dépendent des tenseurs  $g$  anisotropes. Pour chaque yttrium, les valeurs maximales du contraste de modulation varient donc avec l'orientation du champ appliqué.

Illustrons quantitativement cette double anisotropie du problème dans le cas de  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ . Les cartes de Fig. 4.10 sont calculées pour un champ magnétique extérieur orienté à  $\varphi = 45^\circ$  (à gauche) et  $\varphi = 135^\circ$  (à droite). Elles présentent la variation du maximum de contraste en fonction de la position angulaire de l'yttrium. Pour chaque position, nous varions la norme du champ magnétique et gardons la valeur maximale. Ces cartes nous montrent que le contraste maximal est très faible la plupart du temps et n'atteint que rarement la valeur de 1. Cela signifie que le rapport de branchement entre les niveaux super-hyperfins n'est bon que pour certaines positions angulaires de l'yttrium couplé. Nous vérifions aussi que ces zones de couplage optimal sont différentes selon l'orientation du champ appliqué.



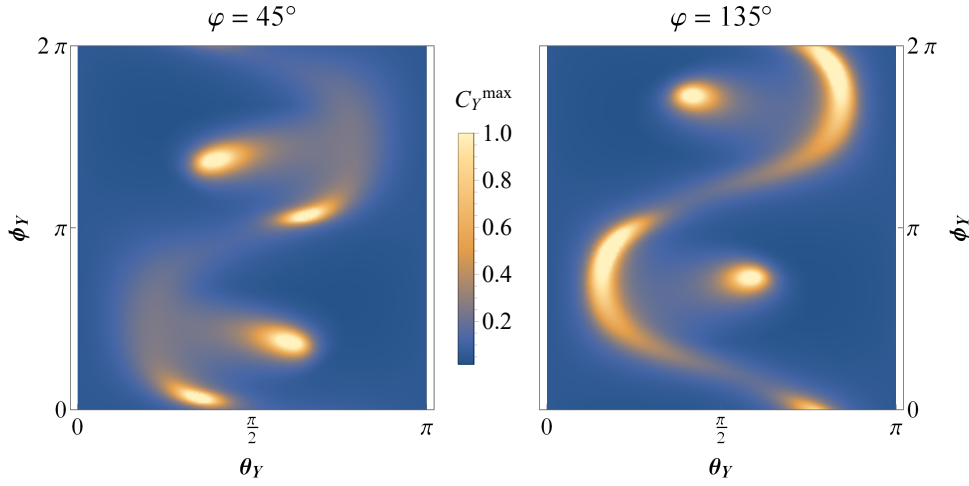


FIGURE 4.10 – Variations du maximum du contraste de modulation  $C_Y$  (défini en Eq. (3.51)) en tout points du plan  $(D_1, D_2)$ . Les deux cartes sont établies pour un champ magnétique extérieur orienté à  $\varphi = 45^\circ$  et  $\varphi = 135^\circ$ . Les coordonnées sphériques  $\theta_Y$  et  $\phi_Y$  sont celles du vecteur  $\hat{r}_Y$  dans le repère  $(D_1, D_2, b)$ , position angulaire entre l'ion erbium et l'yttrium couplé. Nous pouvons voir que la valeur maximum du contraste est quasiment toujours nulle (rapport de branchement faible) mis à part quelques endroits de l'espace où elle augmente de manière assez brutale.

Dans cette partie, nous avons calculé les états propres issus des couplages super-hyperfins dans  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ . Plus précisément, nous avons étudié l'interaction entre le spin électronique de l'erbium et le spin nucléaire d'un unique yttrium fictif. Ceci nous a permis de mettre en évidence l'effet de l'anisotropie du système. Il était établi que le couplage à un yttrium module la décroissance de l'écho de photon. Cependant, l'amplitude et la fréquence de cette modulation dépendent fortement de la position de cet ion ainsi que de l'orientation du champ magnétique extérieur. Cette double anisotropie rend les différents ions yttrium non-équivalents pour la modulation de l'écho de photon. Il apparaît néanmoins que seules certaines orientations particulières permettent un fort couplage électro-nucléaire.

Ces calculs seront vérifiés expérimentalement dans le chapitre 7. Nous utiliserons l'expression du contraste de modulation pour décrire les phénomènes observés après excitation optique du système. Nous verrons que dans certains cas, l'anisotropie de  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$  permet le couplage optique à un unique ion yttrium.

#### Résumé du chapitre

- Dans  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ , le taux de basculement réciproque des spins de l'erbium est très anisotrope. Il varie de plus de trois ordres de grandeur en fonction de l'angle du champ magnétique imposé.
- Les couplages super-hyperfins entre erbium et yttrium sont aussi anisotropes. Les caractéristiques des modulations d'écho qu'ils provoquent varient avec l'angle du champ et la position de l'ion yttrium couplé.

Le chapitre 5 sera dédié aux techniques permettant l'étude de ces variations.

## Chapitre 5

# Montage et techniques expérimentales

L'effet de l'anisotropie de  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$  sur les basculements réciproques et les couplages super-hyperfins a été calculé dans le chapitre 4 précédent. Nous souhaitons vérifier expérimentalement ces résultats. La grande variation du taux des basculements et la multitude des couplages électro-nucléaires sont les problèmes majeurs que nous rencontrons. Dans ce chapitre, je vais tout d'abord présenter le dispositif utilisé pour ces vérifications. Je détaillerai ensuite les techniques permettant la mesure du couplage entre les spins électroniques des ions erbium. Puis, je décrirai la mise en place d'une séquence d'écho de photon adaptée à l'étude des couplages super-hyperfins.

### 5.1 Dispositif expérimental

Dans cette partie, je vais détailler le matériel commun à la mesure de ces deux couplages. L'aspect technique majeur est le dispositif cryogénique car nous souhaitons travailler à basse température, aux alentours de 2 K. Viennent ensuite les problématiques liées aux lasers, à leurs caractéristiques et leurs dispositions. Je finirai par présenter les différents cristaux utilisés.

#### 5.1.1 Cryogénie

La température est synonyme d'agitation. Même dans notre système où les ions sont piégés à l'intérieur d'une matrice cristalline, les spins sont sensibles à son effet. Nous avons vu que la température engendre des vibrations de la matrice. Ces phonons sont en partie responsables du basculement des spins du système (partie 1.2). Travailler à basse température est nécessaire afin de pouvoir négliger les processus à deux phonons Raman et Orbach devant les autres phénomènes induisant des basculements de spin [45].

Pour travailler dans ces conditions, nous insérons le cristal à étudier dans un cryostat avec insert à température variable (JANIS SVT-200). Le cristal est placé sur un porte échantillon dans un canal central, en dépression par rapport à un réservoir d'hélium liquide. Le flux d'hélium allant de ce réservoir au canal central est contrôlé par une vanne pointeau et refroidit le cristal. Nous pouvons ainsi travailler à des températures proches de 2 K. Des fenêtres non traitées permettent un accès optique au cristal avec une transmission proche de 80%.

Comme nous souhaitons aussi appliquer un champ magnétique sur le système, le porte échantillon est entouré d'une bobine supraconductrice. Cette bobine crée un champ magnétique pouvant produire jusqu'à 3 T selon l'axe vertical. Pour vérifier l'effet de l'anisotropie sur les couplages, nous souhaitons varier l'orientation de ce champ par rapport au cristal. Ceci est réalisé en faisant tourner le cristal dans le plan  $(D_1, D_2)$  grâce à un rotateur piézoélectrique (Attocube ANRv51/LT). Concentrons nous maintenant sur le montage optique permettant l'étude de ce cristal.

### 5.1.2 Montage optique et faisceaux lasers

Les lasers ont une grande importance dans les expériences que nous avons réalisées. Ils permettent de préparer le système, de l'exciter mais aussi de le sonder à différents instants afin de comprendre sa dynamique. Le premier laser que nous utilisons est un laser commercial fibré (Koheras Adjustik), centré à 1536.5 nm. Sa longueur d'onde peut être modifiée de quelques dixièmes de nm en agissant sur un contrôleur à effet Peltier, la longueur de la fibre dopée augmentant avec la température. Ce laser fin spectralement (quelques kHz) sera utilisé pour la plupart des mesures. Pour certaines expériences, nous utilisons plutôt *Goldorak*, une diode laser en cavité étendue fabriquée par l'équipe. Ce laser agile a une largeur spectrale plus grande (environ 400 kHz). Sa fréquence d'émission peut être modifiée rapidement sur plusieurs nm grâce à un cristal électro-optique qui modifie la longueur de sa cavité.

Le montage optique que je vais maintenant décrire est schématisé dans Fig. 5.1. Quelque soit le laser utilisé, il nous sert aussi bien à exciter qu'à sonder la transition optique  ${}^4I_{15/2} \rightarrow {}^4I_{13/2}$  des ions erbium. Nous le séparons donc en deux faisceaux, à l'aide d'un séparateur fibré. Les deux faisceaux passent ensuite dans des modulateurs acousto-optiques fibrés à 80 MHz, contrôlés par un générateur de forme d'onde arbitraire (Tektronix AWG520). Ces modulateurs contrôlent les faisceaux de manière à obtenir les séquences temporelles souhaitées. Changer leurs fréquences permet aussi de modifier et balayer celle du laser sur quelques MHz. Le faisceau d'excitation, aussi appelé faisceau pompe, est amplifié en amont à 20 dBm par un amplificateur à fibre dopé erbium (Manlight). La sortie en espace libre se fait par des collimateurs, situés juste après les modulateurs acousto-optiques.

Les deux faisceaux passent alors par des lames demi-onde et quart d'onde pour rectifier leurs polarisations en sortie de fibre. Ils sont alors envoyés dans le cryostat de manière contre-propagative et sont focalisés par des lentilles de focale de 15 cm sur le cristal. La puissance maximale de la pompe au niveau du cristal est d'environ 10 mW. Celle de la sonde est de l'ordre de 100  $\mu$ W. Pour les expériences de type pompe-sonde, le faisceau sonde est collecté par un photo-diode à avalanche. Pour les séquences d'écho de photon qui nécessitent une excitation puissante, seul le faisceau de pompe est utilisé. L'écho émis est alors collecté par une seconde photo-diode, protégée de l'excitation intense par un modulateur acousto-optique en espace libre.

Pour les expériences où l'on excite puis sonde le système, la zone pompée doit être homogène et plus large que la zone sondée. Il est nécessaire que ces conditions soient vérifiées sur toute la longueur du cristal. Pour cela, le faisceau pompe doit être plus petit que le faisceau sonde avant leurs focalisations. En effet, pour des faisceaux gaussiens, la largeur minimale d'un faisceau après focalisation par une distance focale  $f$  s'écrit [86, chap. 15.7]

$$\omega'_0 \approx \frac{\lambda f}{\pi \omega_0}. \quad (5.1)$$

Cette grandeur est inversement proportionnelle à la largeur du faisceau avant la lentille  $\omega_0$ .

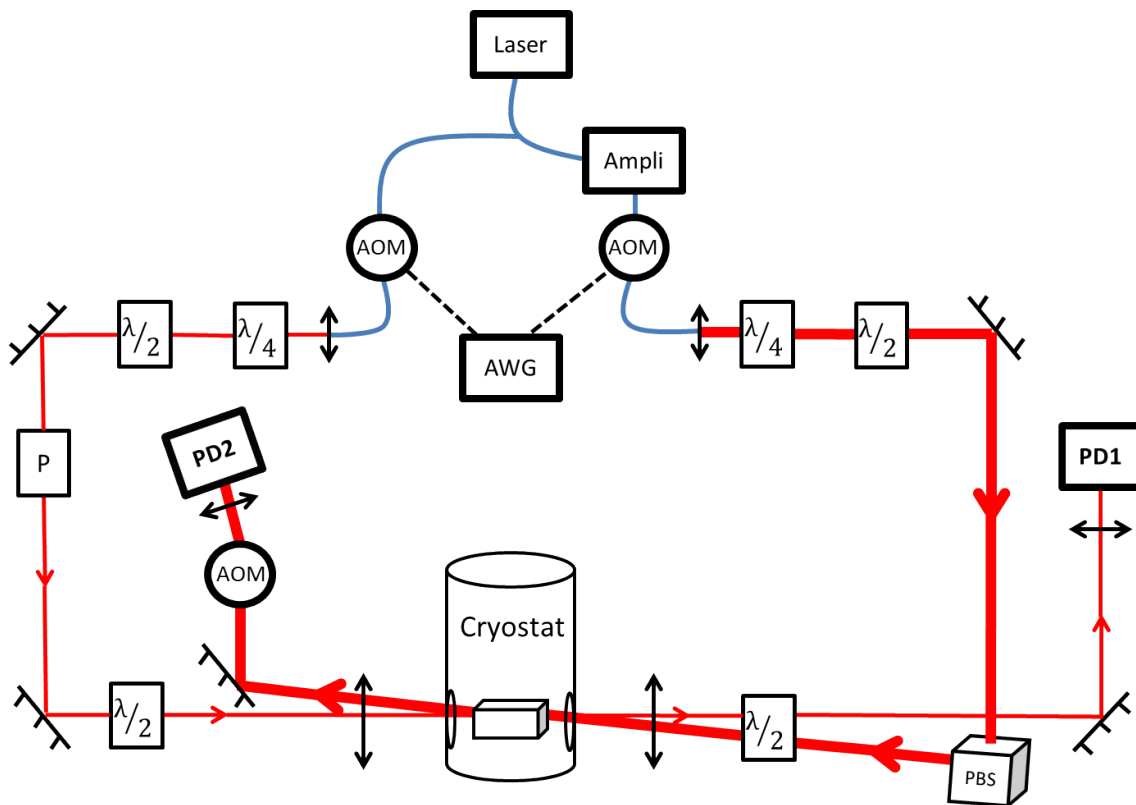


FIGURE 5.1 – Schéma du dispositif expérimental. La partie en bleu est fibrée tandis que la partie en rouge est en espace libre. Le faisceau de sonde est matérialisé par un trait rouge moins épais que le faisceau de pompe, plus intense. Les différentes abréviations qui apparaissent sont : AOM pour modulateurs acousto-optiques, AWG pour générateur de forme d'onde arbitraire, P pour polariseur, PD pour photodiode et PBS pour séparateur de faisceau polarisé. Se référer au corps du texte pour plus de détails.

Par ailleurs, nous supposons que le faisceau est homogène sur une distance inférieure ou égale à deux fois la longueur de Rayleigh. Cette grandeur, aussi appelée profondeur de champ, doit donc être plus grande que la longueur du cristal. Elle est définie comme [86, chap. 15.5]

$$2z_R = \frac{2\pi\omega_0^2}{\lambda}. \quad (5.2)$$

La largeur minimale des faisceaux  $\omega_0$  a été mesurée en sortie des collimateurs. En utilisant les équations Eq. (5.1) et Eq. (5.2), je peux estimer ces largeurs après focalisation ainsi que leurs profondeurs de champ (voir Tab. (5.1)). Nous pouvons voir que pour un cristal de longueur inférieure à 10 mm, les deux conditions sont bien vérifiées. La zone sondée est moins large que la zone pompée et les deux faisceaux peuvent être considérés homogènes sur toute sa longueur. C'est le cas des deux cristaux que je vais maintenant présenter.

	Pompe	Sonde
$\omega_0$	0.93 mm	1.28 mm
$\omega'_0$	79 $\mu\text{m}$	57 $\mu\text{m}$
$2z_R$	26 mm	13 mm

TABLE 5.1 – Valeurs des largeurs minimales pour chacun des deux faisceaux avant et après la focalisation dans le cryostat. La dernière ligne représente la profondeur optique des faisceaux, zone sur laquelle ils peuvent être considérés homogènes.

### 5.1.3 Différents cristaux

Les deux cristaux de  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$  que nous utilisons ont été fabriqués par la société *Scientific Materials Corporation* aux États-Unis. Ils sont tous deux polis selon le plan ( $D_1, D_2$ ) de manière à pouvoir propager un laser selon l'axe  $b$ . Cependant, la taille, la coupe et la concentration sont différentes.

#### Cristal dopé à 50 ppm

Le cristal dopé avec 50 ppm (parties par millions) d'erbium que nous utilisons est de dimension  $3 \times 4 \times 5$  mm, la grande longueur étant celle de l'axe  $b$ . Sa coupe a été faite à  $45^\circ$  des axes  $D_1$  et  $D_2$  (voir figure gauche de Fig. 5.2). Pour un champ de 33 mT orienté à  $135^\circ$  de l'axe  $D_1$ , le spectre de ses transitions est donné à droite de Fig. 5.2. Il est obtenu grâce au laser agile *Goldorak*, dont la fréquence est balayée sur plusieurs GHz. Les transitions croisées n'apparaissent pas car leurs décalages en fréquence sont plus élevés. Les deux transitions directes peuvent être comparées à un modèle lorentzien. Leurs largeurs à mi-hauteur sont de 260 MHz et leurs profondeurs optiques à résonance valent  $\alpha^{\text{abs}}L = 2.2$ . Pour ce cristal, le coefficient d'absorption vaut donc  $\alpha^{\text{abs}} = 0.44 \text{ m}^{-1}$ .

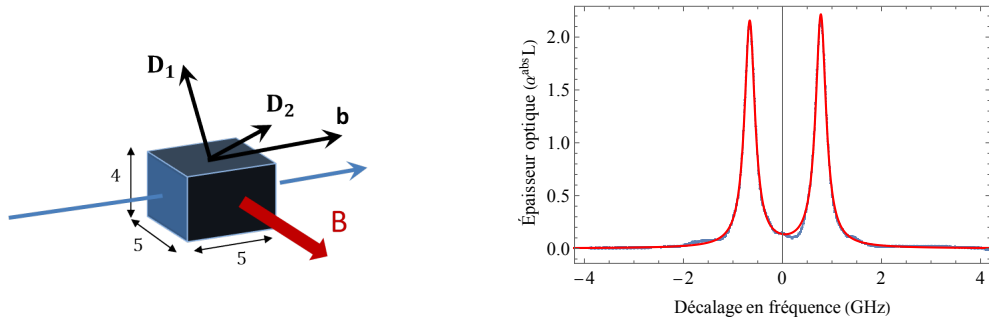


FIGURE 5.2 – À gauche, schéma représentant l'orientation du cristal dopé à 50 ppm sous un champ magnétique de 33 mT à  $135^\circ$  de l'axe  $D_1$ . À droite, spectre d'absorption obtenu dans ces conditions. L'ajustement lorentzien est représenté en rouge.

#### Cristal dopé à 10 ppm

La concentration en erbium dopant est diminuée d'un facteur cinq pour ce cristal. Ses dimensions sont  $3 \times 4 \times 8$  mm, la grande longueur étant toujours celle de l'axe  $b$ . Ce cristal est cette fois coupé selon les axes  $D_1$  et  $D_2$  (voir figure gauche de Fig. 5.3). Le spectre d'absorption est présenté à droite de Fig. 5.3, dans les mêmes conditions que pour le cristal précédent. La profondeur

optique à résonance des transitions directes est logiquement plus faible. Elle vaut maintenant  $\alpha^{\text{abs}}L \approx 0.5$ . Le coefficient d'absorption associé est donc  $\alpha^{\text{abs}} = 0.063 \text{ m}^{-1}$ . Nous remarquons aussi que la largeur à mi-hauteur des transitions est élargie à 1 GHz. Cet élargissement peut être dû à des contraintes plus importantes lors de la fabrication ou même lors de la disposition du cristal dans le cryostat. Ceci étant, les deux cristaux doivent être comparés grâce à l'intégrale de leurs coefficients d'absorption. Le rapport de ces quantités est bien proche de cinq, rapport entre les concentrations en erbium des deux cristaux.

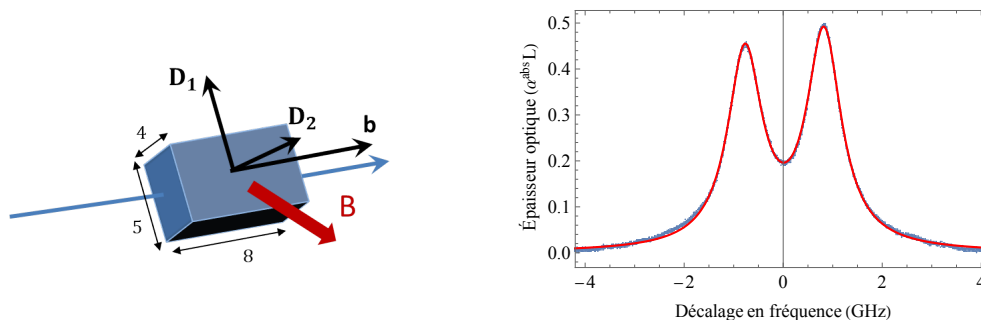


FIGURE 5.3 – À gauche, schéma représentant l'orientation du cristal dopé à 10 ppm sous un champ magnétique de 33 mT à 135° de l'axe  $D_1$ . À droite, spectre obtenu dans ces conditions. L'ajustement lorentzien est toujours représenté en rouge.

La forte absorption du cristal dopé à 50 ppm permet de résoudre les transitions optiquement faibles avec un bon contraste. Le second cristal permettra quant à lui d'obtenir des temps de vie de spin plus longs. Sa concentration en erbium étant inférieure, leurs basculements réciproques y sont moins probables. Dans tous les cas, comparer les résultats issus de deux concentrations différentes en erbium nous permettra de mieux comprendre l'effet de ces ions sur les phénomènes observés. Je vais maintenant présenter les techniques expérimentales permettant d'étudier ces couplages entre les ions erbium.

## 5.2 Mesure des relaxations de spin caractérisant les couplages erbium-erbium

Dans  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ , pour des températures et des champs magnétiques faibles, les basculements réciproques de spin limitent le temps de vie des niveaux Zeeman (voir partie 1.2). L'étude de ces couplages peut alors se faire par le biais de la relaxation des niveaux de spin après excitation optique (partie 3.3.1). Cependant, nous avons calculé que la probabilité des basculements de spin doit fortement dépendre de l'angle avec lequel on applique le champ magnétique extérieur (partie 4.3). Nous souhaitons confirmer notre approche théorique en mesurant une variation des temps de vie de spin similaire à l'inverse de la variation présentée dans Fig. 4.5. Les trois ordres de grandeur attendus pour ces temps conduisent à des dynamiques de spin très différentes.

Pour mesurer optiquement le temps de vie d'un état du système, il faut exciter des atomes dans ce niveau et étudier le temps qu'ils mettent à retourner à l'état fondamental. Afin d'avoir un signal détectable, les atomes doivent pouvoir être accumulés sur le niveau d'intérêt. Selon la dynamique des spins, ceci n'est pas toujours réalisable. Pour résoudre ce problème, nous pourrions choisir selon le cas, une des deux techniques présentées ci-après : le creusement de trou spectral ou l'excitation transitoire. Pour illustrer notre propos, chacune de ces techniques sera appliquée à la mesure d'un temps de vie de spin dans l'état fondamental de  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ .

### 5.2.1 Creusement de trou spectral

Aussi appelé *Spectral Hole-Burning (SHB)* en anglais, le creusement de trou spectral est une méthode de spectroscopie non-linéaire permettant une résolution en deçà de la largeur inhomogène du milieu [87, chap. 3]. Cette technique s'est grandement développée depuis l'émergence des diodes laser, sources d'excitation spectralement fines et stables. Depuis la première observation du phénomène de *hole-burning* dans un milieu solide [88], son application aux matrices cristallines dopées a permis d'étudier nombre de propriétés des ions terre-rare ([89] et références). Après avoir présenté le principe du *SHB*, je montrerai comment les spectres d'absorptions issus de cette technique permettent de mesurer les temps de vie de spin du système. Je profiterai aussi de cette description pour expliquer la mesure de l'élargissement inhomogène de spin, élément nécessaire au calcul des temps de vie Zeeman (voir Eq. (4.15)).

Le *SHB* est une technique de type pompe-sonde. Elle repose sur le fait qu'une seule classe d'atomes de l'élargissement inhomogène peut être excitée par un faisceau de pompe spectralement fin. Une fois excités, les atomes n'absorbent plus de lumière. Un faisceau de sonde, peu intense et balayé en fréquence, vient alors lire l'état du système. Son spectre d'absorption présente une diminution d'intensité à la fréquence de la classe excitée par la pompe (voir schéma explicatif en Fig. 5.4). La hauteur de ce trou est proportionnelle à la différence de population entre les deux niveaux ( $n = \rho_{ff} - \rho_{ee}$ ). Il persiste donc pendant un temps égal au temps de vie du niveau excité (voir Eq. (3.26)). Étudier le spectre de la sonde envoyée à différents délais après l'excitation permet donc de mesurer la dynamique du trou d'absorption. Ceci donne un accès direct au temps de vie du niveau excité.

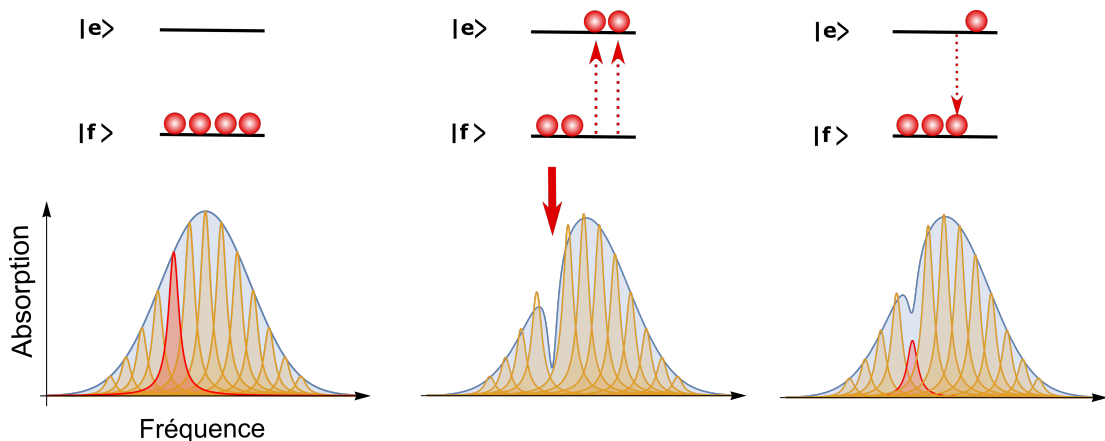


FIGURE 5.4 – Différentes étapes du creusement de trou spectral. La contribution de la classe schématisée sur la ligne du haut est représentée en rouge dans les spectres d'absorption du bas. À gauche, spectre avant pompage. Tous les atomes sont dans l'état fondamental et l'absorption est maximale. Au centre, un faisceau pompe (flèche rouge) sature la transition optique. Les atomes de cette classe ne peuvent plus absorber de lumière, le trou spectral apparaît. À droite, le milieu est sondé après un certain temps. Quelques atomes se sont désexcités et la profondeur du trou a diminué.

Lorsque nous imposons un champ magnétique, la dégénérescence des doublets de Kramers est levée. Même si trois niveaux permettent de décrire la réponse dynamique d'une classe d'atomes, ils ne suffisent pas à expliquer un spectre de *SHB*. En effet, les structures qui y apparaissent sont dues à plusieurs classes de l'élargissement inhomogène et leur description requiert la considération des quatre niveaux Zeeman. Sans changer de fréquence, le laser de pompe peut maintenant exciter quatre transitions différentes de l'élargissement inhomogène. Lorsqu'il est à résonance de la transition directe  $|f, -\rangle \rightarrow |e, -\rangle$  pour une classe d'atome, il est aussi à résonance des trois transitions restantes pour d'autres classes décalées en fréquence. Lorsque la sonde balaye les transitions directes de ces quatre systèmes non équivalents, son spectre de *SHB* peut ressembler à celui présenté dans Fig. 5.5.

Lorsque le laser de pompe excite une transition optique, le système évolue selon les équations de taux (Eq. (3.38)). Si la différence de population est plus faible dans l'état final qu'à l'état initial, un trou spectral apparaît. En revanche, si la différence de population augmente, l'absorption est plus importante et la structure est un anti-trou. De plus, le trou central a une amplitude plus grande que toutes les autres structures. Ces dernières subissent l'effet du faible rapport de branchement de notre système, que ce soit au niveau du pompage croisé (structures à  $\pm\Delta g$  et  $\pm\Delta g'$ ) ou par la faible probabilité de désexcitation avec basculement de spin (structures à  $\pm(\Delta g - \Delta g')$ ) [90, p. 64]. Nous allons voir que les largeurs et les durées de vie des différentes structures renseignent sur la dynamique du système.

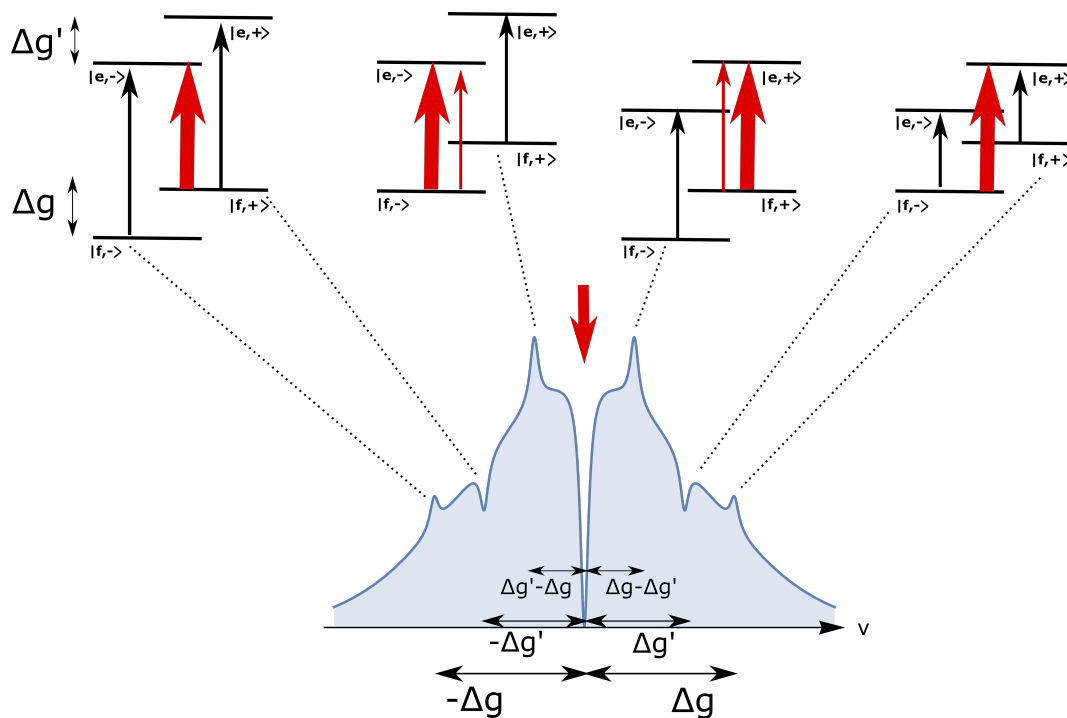


FIGURE 5.5 – Structure du spectre de *hole-burning* d'un système à quatre niveaux. Le laser représenté par la flèche rouge épaisse excite quatre transitions différentes de l'élargissement inhomogène. Les transitions directes observées par la sonde participent alors au trou central (flèches rouges fines) ou aux structures décalées en fréquence à  $\pm\Delta g$ ,  $\pm\Delta g'$  ou  $\pm(\Delta g - \Delta g')$  selon le cas (flèches noires). Le signe et la hauteur des trous (ou anti-trous) latéraux dépendent de la dynamique du système.



### Largeur des différentes structures

Les défauts de la matrice responsables de l'élargissement inhomogène optique modifient aussi la fréquence des différents spins du système. Nettement plus faible que son homologue optique, cet élargissement inhomogène de spin est noté  $\Gamma_{inh,s}$  dans l'état fondamental et  $\Gamma'_{inh,s}$  dans l'état excité. Nous allons voir que les largeurs des structures du spectre de *hole-burning* dépendent de ces élargissements.

Les largeurs des différentes structures présentées en Fig. 5.5 sont intrinsèquement limitées par la largeur homogène optique des transitions.

Elles peuvent néanmoins augmenter en raison de phénomènes survenant au cours du pompage laser. Lors de l'excitation de la transition, la largeur spectrale du laser de pompe est la première source potentielle d'élargissement. Puis, lorsqu'une transition est pompée avec un taux supérieur à l'inverse de sa durée de vie, elle peut être élargie par saturation. En effet, si tous les atomes à résonance sont déjà excités, le laser n'agira plus que sur les atomes des bords du trou spectral. Ceci a pour effet l'élargissement de la structure par un facteur proportionnel à la fréquence de Rabi de la transition [86, chap. 3.4]. Ces deux effets peuvent être limités en utilisant un laser peu intense et assez fin spectralement.

Ce faisant, les largeurs restent toutefois dominées par l'élargissement inhomogène des transitions de spin. Le schéma à gauche de Fig. 5.6 représente la classe d'atomes à l'origine de l'anti-trou à  $-\Delta g$  et du trou à  $-\Delta g'$  (voir Fig. 5.5). Celui de droite représente quant à lui la classe à l'origine de l'anti-trou à  $-(\Delta g - \Delta g')$  et du trou central. Plusieurs classes de spins (représentées en pointillés) participent alors à la transition optique. L'anti-trou à  $-\Delta g$  subit l'effet de l'élargissement  $\Gamma_{inh,s}$  tandis que le trou à  $-\Delta g'$  subit celui de  $\Gamma'_{inh,s}$ . Le trou central n'est pas élargi et les anti-trous à  $\Delta g' - \Delta g$  subissent en théorie les deux élargissements. Contrairement à ceux dus au laser de pompe, ces élargissements interviennent lors de l'excitation comme de la lecture. Le spectre final est la convolution de leurs doubles effets. L'élargissement subi par une structure est donc égal à sa demie largeur à mi-hauteur.

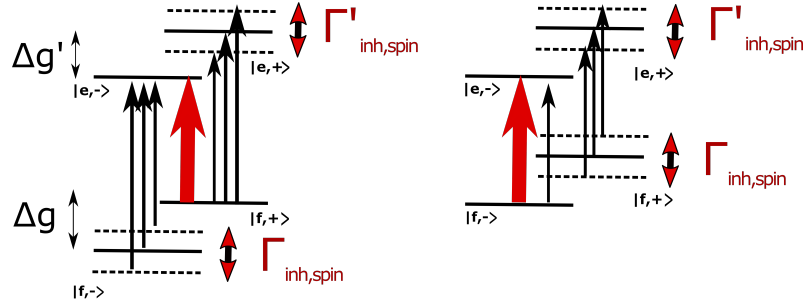


FIGURE 5.6 – Schéma expliquant l'effet de l'élargissement inhomogène de spin sur un spectre de *SHB*. La classe (optique) d'atomes présentée à gauche conduit aux structures latérales à  $-\Delta g$  et  $-\Delta g'$  tandis que celle de droite contribue au trou central et à l'anti-trou à  $-(\Delta g - \Delta g')$  (voir Fig. 5.5). Dans les deux cas, je représente la transition pompée (flèche rouge) et celles sondées (flèches noires). Les niveaux en pointillés représentent les différentes classes de spins de l'élargissement  $\Gamma_{inh,s}$  dans l'état fondamental et  $\Gamma'_{inh,s}$  dans l'état excité.

Pour résumer, l'élargissement  $\Gamma_{inh,s}$  de notre système à quatre niveaux peut être mesuré en excitant une transition optique, sans la saturer. Le spectre de *hole-burning* qui en résulte présente entre autres des structures décalées à  $\pm\Delta g$ .  $\Gamma_{inh,s}$  est alors égal à la demi-largeur à mi-hauteur de ces structures. Cette mesure sera faite dans la partie 6.1. En plus d'avoir des largeurs différentes, les structures du spectre ont aussi des durées de vie variables.

### Durée de vie des structures

Concentrons nous uniquement sur la classe pour laquelle la transition directe  $|f, -\rangle \rightarrow |e, -\rangle$  est excitée (voir Fig. 5.5). Elle est à l'origine du trou central et de la structure décalée à  $-(\Delta g - \Delta g')$ . Pour cette classe unique, nous pouvons de nouveau supposer que la population du niveau  $|e, +\rangle$  reste nulle. En supposant aussi que le temps de pompage est suffisamment long pour atteindre l'état stationnaire, la population du niveau  $|f, +\rangle$  peut être décrite par Eq. (3.41). La condition pour que la structure latérale devienne un anti-trou s'écrit alors

$$\tilde{\rho}_{ss,sat} \geq \tilde{\rho}_{ss}(0) = \frac{1}{2} \iff T_z \geq \frac{1+R}{2R} T_1. \quad (5.3)$$

L'accumulation sur le niveau  $|f, +\rangle$  et l'anti-trou qui en résulte sont essentiels à la mesure des temps de vie de spin par la technique de *SHB*. Fig. 5.7 présente la dynamique de la classe considérée lorsque la condition Eq. (5.3) est vérifiée. Une fois l'excitation terminée, nous comprenons que l'anti-trou apparaît pendant un temps égal au temps de vie de spin  $T_z$  du niveau  $|f, +\rangle$ . Cependant, comme le rapport de branchement de notre système est faible, seul un petit nombre d'atomes accumulés contribue à la formation de cet anti-trou; au contraire de nombreux atomes participent au trou central dont la hauteur est élevée. L'évolution libre de ce trou est décrite par l'équation de taux Eq. (3.45). Il présente deux temps de décroissance, un premier rapide, égal au temps de vie optique  $T_1$  et un second plus lent, égal au temps de vie de spin  $T_z$ . Nous mesurerons ce dernier en étudiant la décroissance du trou central, bien mieux résolu que l'anti-trou latéral.

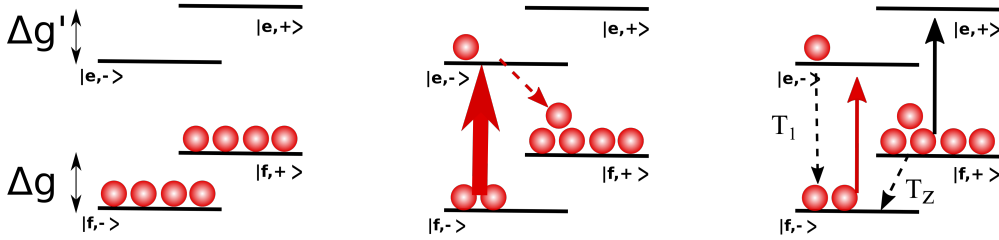


FIGURE 5.7 – Différentes étapes du creusement de trou spectral (*SHB*) lorsque la condition Eq. (5.3) est vérifiée. À gauche, état initial et égalité des populations dans les niveaux de spin de l'état fondamental. Au centre, état stationnaire atteint lorsque le laser excite la transition  $|f, -\rangle \rightarrow |e, -\rangle$  (flèche rouge épaisse). À droite, la sonde (flèche rouge fine) nous permet d'étudier la différence des populations entre les deux états. La présence d'atomes accumulés dans le niveau  $|f, +\rangle$  induit la présence d'anti-trous et nous permet de mesurer le temps de vie de spin  $T_z$ . Les voies de retour à l'équilibre sont matérialisées par les flèches noires en pointillés.

L'étude de la décroissance des structures qui apparaissent dans un spectre de *SHB* permet de mesurer les temps de vie du système. Cependant, le temps de vie des niveaux de spin n'est accessible que lorsque suffisamment d'atomes hors équilibre s'y accumulent. Dans le cas contraire, une deuxième méthode doit être utilisée.

### 5.2.2 Excitation transitoire

Lorsque la relaxation des spins est rapide, la condition Eq. (5.3) n'est pas vérifiée. Eq. (3.42) montre que l'état stationnaire des équations de taux tend alors vers une équipartition des populations  $\tilde{\rho}_{ff} = \tilde{\rho}_{ss} = \tilde{\rho}_{ee}$ . Dans un spectre de *SHB*, aucun anti-trou n'est visible et nous perdons l'accès au temps de vie de spin. Nous utiliserons la technique d'excitation transitoire afin de pouvoir tout de même le mesurer dans ce cas de figure.

Le pompage de la transition  $|f, -\rangle \rightarrow |e, -\rangle$  est ici réalisé en envoyant une impulsion courte et intense d'aire  $\pi$ . Nous avons vu dans la partie 3.2.4 que l'effet d'une telle excitation est de promouvoir tous les atomes de l'état fondamental vers l'état excité de la transition. Comme nous étudions le cas où les temps de vie de spin sont courts, la première relaxation est celle visant à rééquilibrer les populations des niveaux de spin  $|f, -\rangle$  et  $|f, +\rangle$ . Vient ensuite la relaxation optique de l'état excité vers le fondamental (voir Fig. 5.8). Ces différentes relaxations induisent une augmentation de la différence de population. Par conséquent, la transmission du faisceau sonde envoyé dans un second temps diminue. La mesure de la décroissance de cette transmission permet donc de remonter aux différents temps de relaxation.

Cette méthode peut sembler plus simple au premier abord mais elle présente plusieurs difficultés techniques. La première est due à l'optimisation de l'aire de l'impulsion d'excitation. Celle-ci doit être réalisée dès que l'on change les paramètres modifiant la fréquence de Rabi. Comme cette dernière dépend de la force de transition (Eq. (3.18)), elle varie avec le rapport de branchement. Des précautions doivent être prises dans la zone où ce rapport permet les transitions croisées (autour de  $30^\circ$ , voir Fig. 2.10). De plus, cette méthode n'est plus valable lorsque les deux transitions directes ne sont pas résolues (autour de  $20^\circ$  où  $\Delta g \approx \Delta g'$ , voir Fig. 2.8).

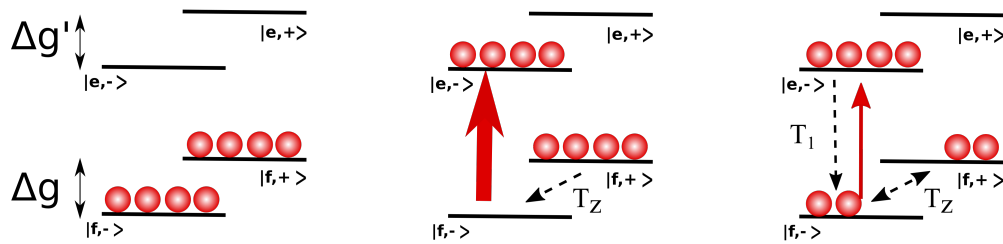


FIGURE 5.8 – Différentes étapes de l'excitation transitoire lorsque les temps de vie de spin sont courts devant la relaxation optique. À gauche, état initial et égalité des populations dans les niveaux de spin de l'état fondamental. Au centre, les atomes du niveau  $|f, -\rangle$  sont tous excités par une impulsion d'aire  $\pi$ . À droite, le faisceau sonde la transition à résonance. Il verra en premier lieu l'effet des relaxations de spin puis celui de la relaxation optique. Les flèches noires en pointillés représentent les différents chemins de relaxation.

La seconde difficulté vient du fait que les temps de vie que l'on cherche à mesurer sont nécessairement plus courts que le temps de vie optique ( $T_1 = 11$  ms). Dans la méthode précédente, le balayage en fréquence du faisceau sonde permettait de mesurer la décroissance de la totalité du trou central. Dans le cas présent, le court temps de vie du trou ne permet pas un tel balayage. Le faisceau ne sonde que la fréquence de résonance. Nous avons donc uniquement accès à la décroissance de la hauteur du trou et pas à son éventuel élargissement. Comme le phénomène d'élargissement par diffusion spectrale n'est visible que pour des temps supérieurs à ceux que nous cherchons à mesurer [44], nous pourrions vérifier que ceci n'est pas un problème.

Pour résumer, le *SHB* et l'excitation transitoire sont deux techniques complémentaires permettant de mesurer les temps de vie de spin de notre système. Lorsque ces temps de vie sont longs devant le temps de pompage, le *SHB* est la méthode appropriée. Dans le cas inverse, il est nécessaire d'utiliser la seconde technique. Dans le chapitre 4, nous avons vu que les couplages limitant le temps de vie de spin dépendent de l'orientation du champ magnétique extérieur (voir Fig. 4.5). Pour chacune de ces orientations, nous ferons le choix de la technique en comparant le temps de vie de spin prédit par la théorie au temps de vie optique  $T_1$ . S'il est supérieur à  $T_1$  nous utiliserons le *SHB*, sinon nous effectuerons la mesure par excitation transitoire. Ce choix ne correspond pas tout à fait à la condition Eq. (5.3). Il permet néanmoins de s'en approcher tout en négligeant les variations encore mal comprises du rapport de branchement.

### 5.2.3 Mise en pratique des deux techniques

Nous avons dorénavant compris quand et comment utiliser les techniques de *SHB* et d'excitation transitoire pour mesurer les temps de vie de spin de l'état fondamental. Je vais maintenant présenter un exemple pratique de cette mesure par chacune de ces techniques.

Pour le *hole-burning*, le laser Koheras excite le système avec une puissance de 10 mW pendant 100 ms, temps suffisant pour atteindre l'état stationnaire. Le faisceau sonde, atténué à une centaine de  $\mu\text{W}$ , dure 500  $\mu\text{s}$  et balaye 30 MHz (voir schéma Fig. 5.9 a). Nous mesurons alors l'aire du trou central pour différents délais entre la pompe et la sonde. Un exemple des spectres obtenus est visible dans Fig. 5.9 c. Il ont été pris pour le cristal dopé à 10 ppm sous un champ extérieur de 0.3 mT orienté à  $\varphi = 110^\circ$ . Les délais entre la pompe et la sonde sont de 10  $\mu\text{s}$  (spectre bleu) et 1 ms (spectre jaune). Nous observons bien la diminution de la hauteur du trou central. L'absorption à résonance  $\alpha^{\text{abs}}$  augmente et se rapproche de celle à l'équilibre notée  $\alpha^{\text{eq}}$ . Concernant l'excitation transitoire, l'impulsion de pompe est une gaussienne d'écart-type 200 ns. Elle est suivie du faisceau sonde dont la durée est de 10  $\mu\text{s}$ . La moyenne de la transmission de la sonde est prise sur ses 5 dernières micro-secondes afin d'éviter les effets résiduels dus à l'excitation. L'exemple présenté en Fig. 5.9 d est pris pour le cristal dopé à 10 ppm sous un champ de 0.3 mT à  $45^\circ$ . Les délais entre la pompe et la sonde valent 1  $\mu\text{s}$  (en bleu) et 20 ms (en orange). Nous pouvons ici aussi observer une nette baisse de la transmission. Encore une fois, l'absorption du système augmente et se rapproche de  $\alpha^{\text{eq}}$ .

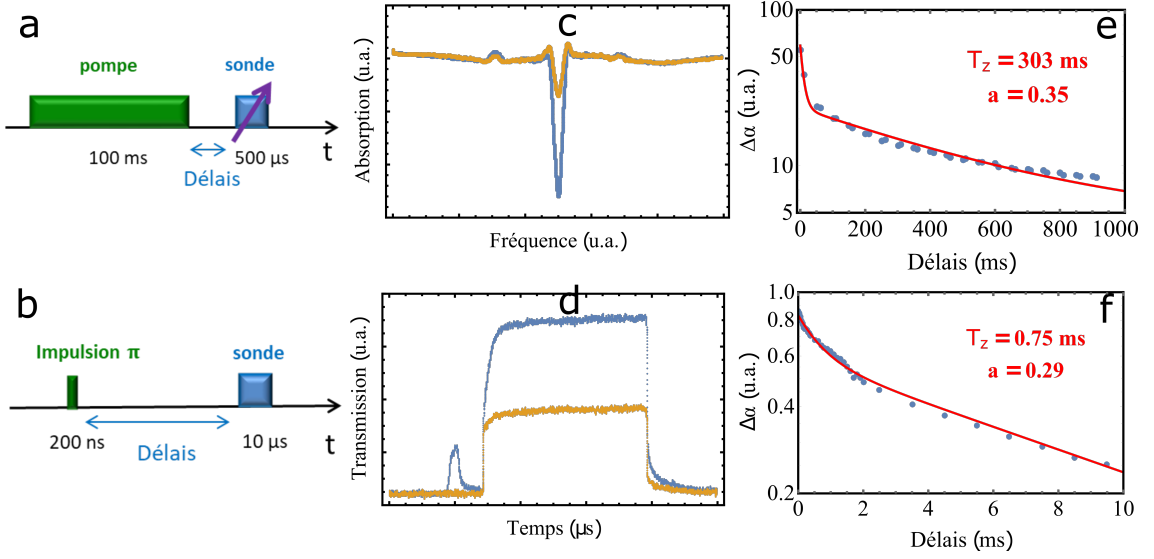


FIGURE 5.9 – Comparaison entre les techniques de *SHB* (ligne du haut) et d’excitation transitoire (ligne du bas). Sur la gauche se trouvent les schémas de leurs séquences temporelles, de type pompe-sonde. La flèche violette représente le balayage en fréquence de la sonde pour le *SHB*. Pour chacune des deux techniques, je présente un exemple de la mesure faite pour deux délais différents (c et d) puis la double décroissance exponentielle de  $\Delta_\alpha$  qui en résulte (e et f). Voir le corps du texte pour les détails expérimentaux.

Dans ces deux exemples, la différence d’absorption  $\Delta_\alpha = \alpha^{\text{eq}} - \alpha^{\text{abs}}$  est proportionnelle à la différence de population et décroît comme une double exponentielle lorsque le délai augmente. Ceci valide l’hypothèse du système à trois niveaux. D’après l’évolution libre de ce système (Eq. (3.45)), les temps de décroissance sont égaux à son temps de vie optique  $T_1$  et à son temps de vie de spin  $T_z$ . Les relaxations observées peuvent alors être comparées à l’évolution

$$\Delta_\alpha(t) = (\alpha^{\text{eq}} - \alpha^{\text{abs}})(t) = \alpha_0^{\text{abs}} \left( (1-a)e^{-\frac{t}{T_1}} + ae^{-\frac{t}{T_z}} \right). \quad (5.4)$$

Dans cette formule,  $T_1$  est fixé à 11 ms tandis que  $\alpha_0^{\text{abs}}$ ,  $a$  et  $T_z$  sont des paramètres ajustables. Le temps de vie de spin est extrait de la décroissance lente pour le *SHB* et de la décroissance rapide pour l’excitation transitoire. Ces décroissances sont présentées à droite de Fig. 5.9 (e et f), dans des conditions expérimentales identiques à celles des spectres du centre. Les ajustements de Eq. (5.4) mènent à  $T_z = 303$  ms dans le premier cas et  $T_z = 0.75$  ms dans le second.

Ces deux exemples décrivent concrètement la mesure du temps de vie de spin de l’état fondamental de notre système. Dans le chapitre suivant, nous appliquerons ce raisonnement à différentes configurations expérimentales. La mesure de la largeur inhomogène de spin nous permettra de faire le lien quantitatif avec le taux de basculement réciproque des spins de l’erbium.

Cependant, les deux techniques présentées ne sont pas bien adaptées à l’étude du second couplage d’intérêt, entre les ions erbium et leurs voisins yttrium. En effet, ceux-ci agissent principalement sur la cohérence de la transition étudiée.

## 5.3 Mesure cohérente caractérisant les couplages erbium-yttrium

En résolvant les équations de Bloch-optique, nous avons compris comment la technique de l'écho de photon permet de mesurer le temps de cohérence du système. Lors de cette séquence, l'excitation simultanée des niveaux super-hyperfins conduit à des modulations de l'intensité de l'écho (voir partie 3.3.2). Leur étude permet la caractérisation des différents couplages électro-nucléaires. Or l'anisotropie de  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$  rend ces dernières fortement dépendantes de l'orientation du champ magnétique ainsi que de la position des ions yttrium (partie 4.4). Nous allons ici essayer de comprendre comment mettre en pratique la mesure de ces couplages non équivalents. Pour la plupart des champs magnétiques, la décroissance de l'écho ne présente pas de modulation. Je vais présenter la manière de mesurer le temps de cohérence dans ce cas, en incluant l'effet de la diffusion spectrale. Puis je délimiterai la région de champ adaptée à l'étude des couplages super-hyperfins.

### 5.3.1 Décroissance de l'écho de photon

Pour étudier les couplages super-hyperfins, nous réalisons la séquence d'écho de photon présentée en Fig. 3.4. Cette séquence est composée de deux impulsions gaussiennes de même hauteur. Bien que les calculs de la partie 3.2.4 aient été effectués dans le régime perturbatif, le signal d'écho n'apparaît que pour des puissances plus élevées. Ces impulsions sont donc issues du faisceau de pompe intense et leur puissance est proche de 10 mW. Expérimentalement, nous remarquons que l'intensité de l'écho est optimale lorsque leur écart-type vaut  $\sigma = 200$  ns. Leur largeur spectrale s'écrit

$$\Delta\nu = \frac{1}{2\pi \times 2\sqrt{2\ln(2)} \times \sigma} \approx 350 \text{ kHz.} \quad (5.5)$$

L'écart entre les niveaux super-hyperfins augmente avec le champ magnétique par interaction Zeeman nucléaire. Nous comprenons que la séquence utilisée ne peut pas exciter simultanément plusieurs de ces niveaux pour des champs magnétiques supérieurs à quelques centaines de mT. Pour les champs forts, la décroissance d'écho ne sera donc pas modulée.

Prenons l'exemple d'un champ magnétique  $B = 333$  mT, orienté à  $135^\circ$ . Nous avons vu que l'écho est émis au temps  $t = 2\tau$  après la première excitation. Sans modulation, nous attendons que son aire décroisse exponentiellement lorsque le temps d'attente  $\tau$  augmente. Le temps caractéristique de cette exponentielle correspond alors au temps de cohérence  $T_2$  du système. Dans la pratique, même en l'absence de modulation, cette décroissance est un peu plus complexe.

La décroissance de l'aire de l'écho qui apparaît dans Fig. 5.10 n'est clairement pas exponentielle. Elle semble plus lente à démarrer, accélère puis ralentit de nouveau pour les longs temps d'attente. Ceci est lié au mécanisme provoquant la décohérence [91]. Une telle décroissance non-exponentielle est caractéristique des effets de la diffusion spectrale (voir partie 1.2). Ce phénomène peut être pris en compte dans la décroissance de l'aire de l'écho en rajoutant le coefficient empirique  $x$  introduit par W.B. Mims [92]

$$\mathcal{I}(\tau) = \mathcal{I}_0 e^{-2\left(\frac{2\tau}{T_2}\right)^x}. \quad (5.6)$$

Comme la diffusion spectrale dépend de la dynamique des spins, la valeur du coefficient de Mims varie en fonction des différents paramètres de l'expérience. Ce coefficient doit être considéré lors de l'étude des décroissances d'écho, avec ou sans modulation. Je vais maintenant délimiter la zone de champ dans laquelle la décroissance d'écho est effectivement modulée.

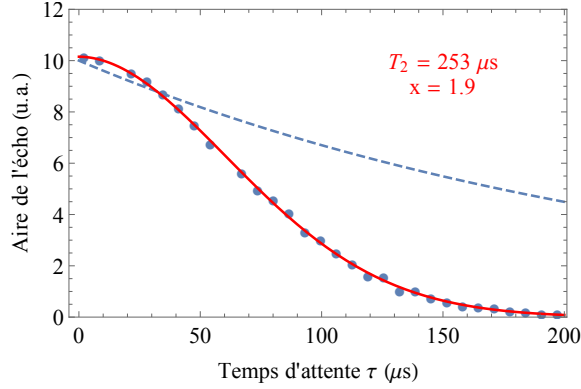


FIGURE 5.10 – Décroissance de l’aire de l’écho de photon en fonction du temps d’attente  $\tau$ . Cette courbe a été obtenue pour un champ magnétique de 333 mT orienté à  $135^\circ$  sur le cristal dopé à 10 ppm. Nous observons clairement le caractère non-exponentiel de cette décroissance. La formule Eq. (5.6) nous permet d’extraire la valeur  $T_2 = 253$  ns avec  $x = 1.9$  (modèle représenté par la courbe rouge). La ligne en pointillés représente la décroissance exponentielle de même temps caractéristique.

### 5.3.2 Région d’étude des couplages super-hyperfins

Les caractéristiques techniques de la séquence d’écho de photon que nous utilisons limitent l’étude des couplages super-hyperfins aux faibles champs magnétiques. Observons les décroissances d’écho pour différents champs afin de trouver la région où apparaissent les modulations.

Pour des champs magnétiques supérieurs à  $\sim 300$  mT, les décroissances de l’écho ne sont pas modulées. Nous avons déjà vu que la durée des impulsions d’excitation est trop grande pour pomper simultanément deux niveaux super-hyperfins de l’état fondamental. Les temps de cohérence optique peuvent alors être mesurés simplement, en ajustant Eq. (5.6) à ces décroissances. Les résultats de ces mesures sont regroupés dans Fig. 1.1, présentée en introduction.

Pour des champs inférieurs à  $\sim 300$  mT cependant, les modulations ne sont pas toujours visibles. L’expression donnée en Eq. (3.52) montre que leurs amplitudes sont proportionnelles aux contrastes de modulation  $\mathcal{C}_Y$  de chaque yttrium couplé. Par ailleurs, leurs fréquences sont égales aux éclatements  $\Delta_Y$  et  $\Delta'_Y$  entre leurs états propres. Lorsqu’elles présentent un contraste trop faible, les modulations ne sont pas résolues. Il en va de même lorsque les éclatements sont supérieurs à la fréquence d’échantillonnage. Nous avons vu que ces différents paramètres dépendent du champ anisotrope créé par l’erbium. Les caractéristiques de ces modulations et les champs pour lesquels elles apparaissent varient donc avec l’orientation du champ magnétique extérieur. Pour la transition  $|f, -\rangle \rightarrow |e, -\rangle$  avec  $\varphi = 135^\circ$ , un contraste suffisant permet de visualiser les couplages erbium-yttrium pour des champs inférieurs à  $\sim 250$  mT. Pour  $\varphi = 225^\circ$ , les modulations ne sont bien définies que pour des champs inférieurs à  $\sim 100$  mT. Pour ces champs limites, les modulations de la décroissance d’écho sont présentées dans Fig. 5.11. Elles sont complexes car provoquées par le couplage de plusieurs ions yttrium non équivalents. Ceci explique les grandes incertitudes sur les temps de cohérence mesurés dans cette région. Malgré cela, une augmentation de la cohérence est nettement visible aux alentours de 50 mT, pour  $\varphi = 225^\circ$  (voir Fig. 1.1). Nous verrons dans la partie 7.2 que cette situation est particulière car un seul yttrium est alors efficacement couplé à l’erbium.

Enfin, il est important de remarquer que les modulations n'apparaissent pas non plus pour les très faibles champs magnétiques. En dessous de 15 mT environ, les temps de cohérence semblent chuter brutalement (voir les inserts de Fig. 1.1). Ces temps courts ne permettent donc pas d'observer les couplages super-hyperfins. Nous montrerons dans la partie 7.3 qu'ils sont en réalité causés par un effet collectif de ces couplages.

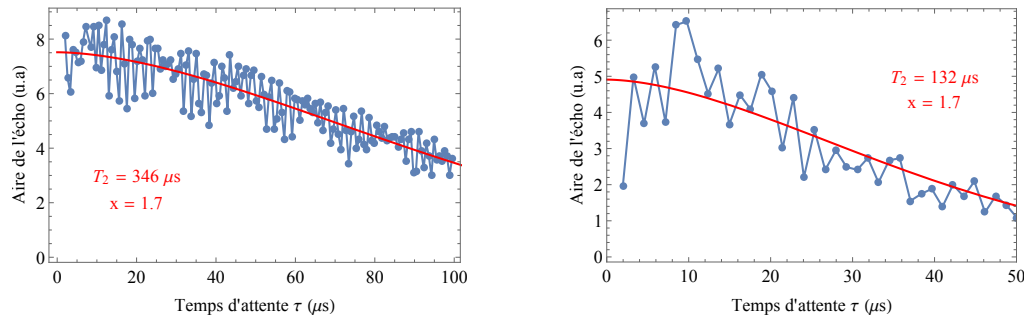


FIGURE 5.11 – Modulations de la décroissance d'écho pour  $\varphi = 135^\circ$  à gauche et  $\varphi = 225^\circ$  à droite, sur le cristal dopé à 10 ppm. Obtenues respectivement pour les champs  $B = 260$  mT et  $B = 100$  mT, ces modulations sont complexes et mal résolues. Eq. (5.6) permet toutefois d'en extraire le  $T_2$  (ajustements représentés en rouge).

Dans cette partie, nous avons présenté la séquence d'écho de photon permettant l'étude des couplages entre erbium et yttrium dans  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ . Cependant, pour la majorité des champs magnétiques, seul le temps de cohérence peut être extrait de la décroissance de l'écho. L'étude des différents couplages super-hyperfins ne peut se faire que pour des champs compris entre quelques dizaines et quelques centaines de mT, valeurs variant avec l'orientation du champ. C'est dans cette zone que nous travaillerons dans le chapitre 7 afin d'étudier certaines modulations caractéristiques.

#### Résumé du chapitre

- La largeur inhomogène de spin qui permet le lien entre les basculements réciproques et les temps de vie de spin peut être mesurée par *SHB*.
- L'étude des basculements réciproques se fait par le biais de l'étude des temps de vie de spin. Selon le temps attendu, il faut choisir entre la technique du *SHB* ou l'excitation transitoire.  
Nous utiliserons ces méthodes dans le chapitre 6 afin de vérifier l'effet de l'anisotropie sur les basculements réciproques.
- Les modulations d'écho permettant l'étude des couplages super-hyperfins n'apparaissent que pour des champs magnétiques compris entre 10 mT et 100 mT environ. Cette zone de champ sera étudiée dans le chapitre 7 et nous permettra de vérifier nos calculs relatifs à ces couplages.





## Chapitre 6

# Mesure des couplages erbium-erbium anisotropes

Sous de faibles champs magnétiques, l'effet des basculements réciproques peut être étudié grâce à la mesure des temps de vie de spin du système. Nous avons compris que selon l'angle du champ magnétique extérieur, il est nécessaire de choisir entre deux techniques optiques complémentaires (voir partie 5.2). Dans ce chapitre, nous allons chercher à vérifier expérimentalement l'anisotropie des temps de vie de spin prédite dans la partie 4.3. Une partie des résultats présentés fait l'objet d'une publication actuellement en cours de vérification [93]. L'étude est similaire à celle effectuée précédemment sur le matériau  $\text{Nd}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$  [94]. Cependant, la prise en compte de l'anisotropie du tenseur  $g$  ne correspondait alors pas aux observations [95], les mesures ayant peut être été réalisées trop proches du régime des phonons ( $B \geq 100$  mT).

La première partie de ce chapitre sera consacrée à la mesure de la largeur inhomogène des niveaux de spin du système. Présente au dénominateur de l'équation Eq. (4.15), elle permet le lien entre le couplage dipolaire et les temps de vie de spin. Nous utiliserons ensuite les différentes techniques expérimentales présentées dans le chapitre précédent (partie 5.2) afin de mesurer ces temps de vie, pour des champs de l'ordre du mT. J'essaierai enfin d'étendre cette étude à d'autres matrices ou ions dopants couramment utilisés dans le domaine du stockage d'information.

### 6.1 Largeur inhomogène de spin

Dans  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ , l'élargissement de spin dans l'état fondamental  $\Gamma_{inh,s}$  est généralement mesuré par résonance paramagnétique électronique. Il vaut par exemple 140 MHz pour un champ de 55 mT [96]. Cependant, ces mesures de RPE sont contraintes en champ magnétique (voir partie 7.1.1). Elles ne nous permettent pas de connaître la valeur de l'élargissement pour les faibles champs magnétiques auxquels nous souhaitons travailler. Nous allons donc la mesurer grâce à la technique de *hole-burning*. Nous verrons que cette mesure fluctue de manière importante car elle dépend de la norme et de l'angle du champ magnétique appliqué.

### 6.1.1 Mesure par *hole-burning*

Nous avons vu que le *SHB* permet la mesure de l'élargissement  $\Gamma_{inh,s}$  (voir partie 5.2.1). Ce dernier est égal à la demie largeur à mi-hauteur de la structure décalée en fréquence de  $\pm\Delta g$ . Effectuons la mesure de cet élargissement pour un champ magnétique de 0.17 mT orienté à  $\varphi = 135^\circ$ . Le spectre présenté en Fig. 6.1 est obtenu en balayant le laser Goldorak sur 90 MHz en 500  $\mu$ s. Nous retrouvons des structures similaires à celles présentées dans le schéma de principe de Fig. 5.5. Chacune peut être ajustée par un modèle gaussien. Les décalages en fréquence et les écarts-types de ces gaussiennes sont rapportées dans Tab. (6.1).

Structure	Décalage (MHz)	Décalage Th. (MHz)	$\sigma$ (MHz)
Trou central	0	0	0.6
Anti-trous 1	8.2	8.2	0.5
Trou 2	21.8	19.4	3.2
Anti-trous 3	27.8	26.6	3.8

TABLE 6.1 – Décalage en fréquence et écart-type des différentes structures apparaissant dans le spectre de Fig. 6.1. La troisième colonne rapporte les décalages attendus théoriquement pour un champ  $B = 0.17$  mT.

Tout d'abord, comparer les colonnes 2 et 3 de ce tableau montre que les décalages en fréquence correspondent globalement à ceux attendus d'après les facteurs  $g$  mesurés dans la partie 2.3. Les différences proviennent de l'incertitude sur le champ magnétique ainsi que sur l'ajustement des structures de type 2 et 3. Les structures latérales subissent l'effet du faible rapport de branchement. Leur aire est réduite d'un facteur dix environ par rapport au trou central. Il est aussi intéressant de remarquer que la largeur des anti-trous les plus proches (type 1) est similaire à celle du trou central. Ceci est un point encore incompris car ils ne semblent pas subir l'élargissement inhomogène des spins. Les structures de type 2 et 3 sont quant à elles bien élargies. Pour le champ magnétique utilisé, nous pouvons mesurer  $\Gamma_{inh,s} = \sqrt{2 \ln(2)} \times \sigma(\text{Anti-trou 3}) = 4.5$  MHz. Cependant, nous allons voir que cette grandeur varie fortement lorsque l'on modifie le champ appliqué.

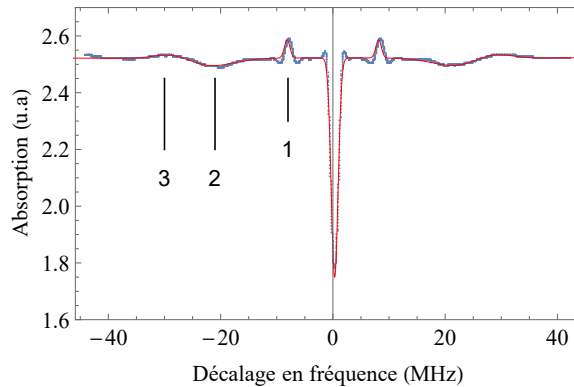


FIGURE 6.1 – Spectre de *hole-burning* sur le cristal de 10 ppm pour un champ d'approximativement 0.17 mT orienté à  $135^\circ$ . Nous retrouvons des structures similaires à celles présentées dans Fig. 5.5. Pour simplifier la discussion, les structures latérales seront dites de type 1,2 ou 3.

### 6.1.2 Variations avec le champ magnétique

Faisons tout d'abord varier la norme du champ magnétique appliqué en conservant l'angle  $\varphi = 135^\circ$ . La variation des décalages en fréquence et les demies largeurs à mi-hauteur des différentes structures sont reportées dans Fig. 6.2.

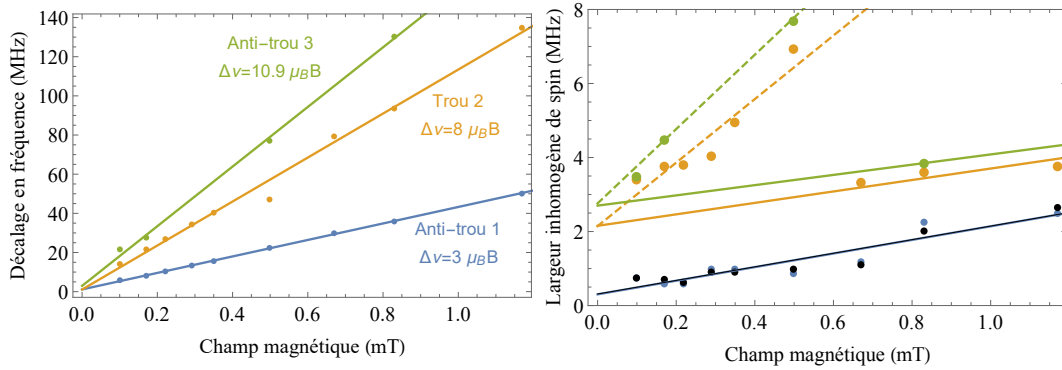


FIGURE 6.2 – Effet de la norme du champ magnétique sur un spectre de *SHB*. À gauche est reportée la variation des décalages en fréquence des différentes structures du spectre (Type 1 en bleu, 2 en orange et 3 en vert). Des modèles linéaires sont ajustés aux données (courbes pleines). À droite, variation des demies largeurs à mi-hauteur de ces structures. À ces largeurs a été rajoutée celle du trou central (en noir). Les structures de type 2 et 3 présentent des variations distinctes pour des champs inférieurs à 0.5 mT (modèles en pointillés) ou supérieurs à cette valeur (courbes pleines). Dans les deux cas, leurs ordonnées à l'origine sont fixées à la même valeur. Les mesures ont été faites sur le cristal dopé à 10 ppm, pour un angle  $\varphi = 135^\circ$ .

Comme attendu, les décalages en fréquence suivent des lois linéaires dont les coefficients directeurs sont proportionnels aux facteurs  $g$  du système. La mesure des anti-trous de type 3 est la moins précise car ils se trouvent rapidement à la limite du balayage en fréquence. De plus, étant plus élargis, leurs amplitudes sont très faibles. Nous retrouvons grâce à ces mesures les valeurs attendues pour  $\varphi = 135^\circ$  :  $g \simeq 11$  et  $g' \simeq 8$ . Par ailleurs, les largeurs ont toute tendance à augmenter avec la norme du champ (à droite de Fig. 6.2). Dans cette figure, la largeur du trou central est représentée par les points noirs. Nous vérifions que ses valeurs et variations sont confondues avec celles des anti-trous des type 1. Les structures 2 et 3 semblent aussi suivre la même évolution, augmentation brutale aux champs les plus faibles puis plus modérée par la suite. En ajustant des modèles linéaires aux mesures, nous trouvons

$$\Gamma'_{inh,s} [\text{MHz}] \approx \begin{cases} 2 + 9 \times B [\text{mT}] & \text{pour } B \leq 0.5 \text{ mT} \\ 2 + 1.5 \times B [\text{mT}] & \text{pour } B > 0.5 \text{ mT}. \end{cases} \quad (6.1)$$

$$\Gamma_{inh,s} [\text{MHz}] \approx \begin{cases} 2.7 + 10 \times B [\text{mT}] & \text{pour } B \leq 0.5 \text{ mT} \\ 2.7 + 1.4 \times B [\text{mT}] & \text{pour } B > 0.5 \text{ mT}. \end{cases}$$

Ces variations à deux vitesses peuvent être comprises en remarquant que les structures se dédoublent pour un champ magnétique supérieur à 0.5 mT.

### Orientations magnétiques et sortie du plan ( $D_1, D_2$ )

Le dédoublement des structures 2 et 3 signifie que nous ne sommes pas exactement dans le plan ( $D_1, D_2$ ). En effet, lorsque l'on s'écarte de ce plan, les orientations A et B deviennent magnétiquement non équivalentes (voir 2.1.3). Leurs tenseurs  $g$  sont alors différents [65]. Pour un champ magnétique suffisamment grand, nous pouvons résoudre ces deux orientations magnétiques (voir encadré dans Fig. 6.3). À 0.8 mT, l'écart entre les deux sous-structures de l'anti-trou 3 est de 8 MHz. Ceci correspond à un écart au plan ( $D_1, D_2$ ) d'environ  $2^\circ$ . Cet écart est compatible avec les incertitudes sur l'ajustement des pièces mécaniques ainsi que sur l'orientation du cristal donnée par le fabricant.

Cet effet permet d'expliquer la rupture de pente observée à droite de Fig. 6.2. Avant le dédoublement, l'élargissement des structures 2 et 3 correspond à la somme de l'élargissement intrinsèque de la transition de spin et de l'écartement des deux orientations magnétiques. Une fois que cette séparation peut être résolue, l'accroissement de la largeur de spin est nettement plus faible.

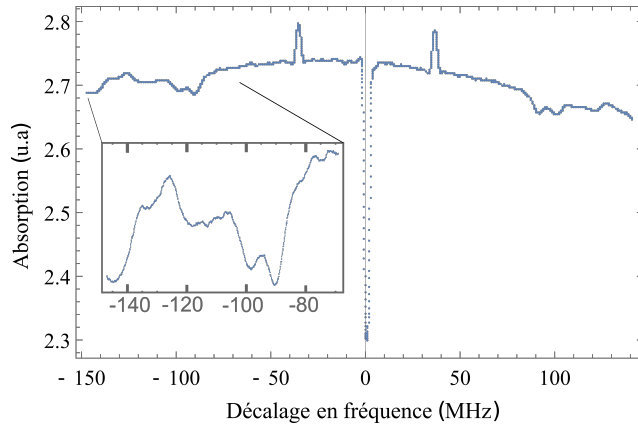


FIGURE 6.3 – Spectre de *hole-burning* sur le cristal de 10 ppm pour un champ d'approximativement 0.8 mT orienté à  $135^\circ$ . Le cadre présente un agrandissement focalisé sur le dédoublement des deux structures extérieures.

Au cours de cette partie, nous avons pu voir que les largeurs inhomogènes de spin sont très sensibles aux variations de la norme du champ magnétique. Une étude précédente, effectuée sur le même système, montre que ces largeurs varient aussi lorsque l'orientation du champ est modifiée [97]. Ajouté à cela, les incertitudes sur la norme et l'angle du champ que nous imposons se reflètent dans la difficulté d'obtenir une valeur fixe et précise de cet élargissement. Nos observations sont néanmoins compatibles avec la référence [94] où la variation de la largeur inhomogène de spin est linéaire pour les faibles champs magnétiques.

Pour le calcul du temps de vie de spin, je choisis de considérer la variation angulaire de l'élargissement inhomogène comme une incertitude. Ceci permet de se focaliser sur l'anisotropie issue du facteur  $g$ . En incluant aussi les incertitudes sur le champ magnétique, j'utiliserai l'encadrement suivant :

$$2 \text{ MHz} \leq \Gamma_{inh,s} \leq 9 \text{ MHz}. \quad (6.2)$$

Une fois cette grandeur estimée, nous avons tous les éléments nécessaires pour calculer le taux de basculement réciproque dans notre système. L'inverse de ce taux nous permet alors de savoir quelle est la technique la plus adaptée à la mesure du temps de vie de spin (voir partie 5.2).

## 6.2 Variations des temps de vie de spin

La variation des temps de vie de spin nous renseigne sur celle du couplage erbium-erbium. Nous souhaitons ici retrouver l'anisotropie prédite dans la partie 4.3. Nous étudierons donc en premier lieu la variation des temps de vie de spin selon l'angle du champ magnétique. Par la suite, nous regarderons l'effet de la concentration en ions dopants et pour finir, celui de la norme du champ.

### 6.2.1 Variation avec l'angle du champ magnétique

En considérant la valeur moyenne de la largeur inhomogène de spin estimée en Eq. (6.2), nous nous attendons à ce que les temps de vie de spin varient de  $100 \mu\text{s}$  à  $500 \text{ ms}$  selon l'angle du champ, pour un cristal dopé à  $10 \text{ ppm}$ . Ces temps sont inférieurs au temps de vie du niveau excité  $T_1$  pour des angles  $\varphi$  en deçà de  $55^\circ$  et sont supérieurs pour des angles au delà. Nous effectuerons donc des mesures par excitation transitoire dans la première région et par *SHB* dans la seconde. Dans la partie 5.2, nous avons vu que dans les deux cas, les temps de vie de spin peuvent être extraits des relaxations exponentielles en ajustant les paramètres de l'équation Eq. (5.4). Ces temps correspondent donc aux décroissances les plus rapides pour des angles inférieurs à  $55^\circ$  et aux plus lentes pour les autres. Pour un champ magnétique fixé à  $0.3 \text{ mT}$ , nous trouvons les variations données dans Fig. 6.4.

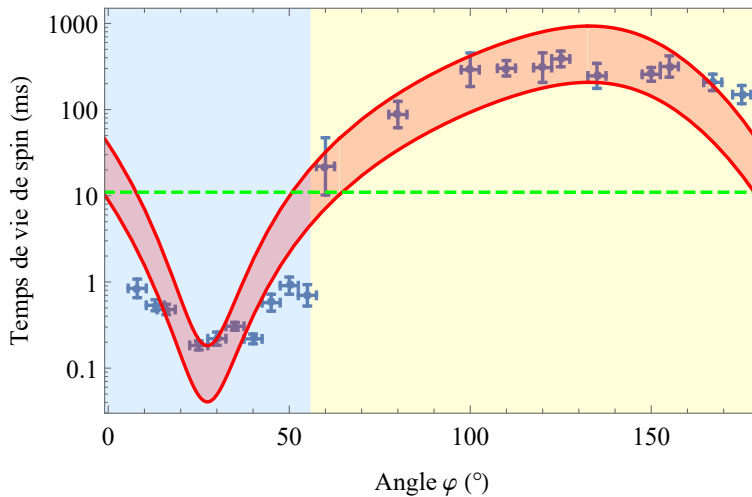


FIGURE 6.4 – Variation du temps de vie de spin de l'état fondamental en fonction de l'angle du champ magnétique  $\varphi$ . Ces mesures ont été effectuées sur un cristal dopé à  $10 \text{ ppm}$  sous un champ de  $0.3 \text{ mT}$ . La bande rouge est limitée par les variations de la formule analytique Eq. (4.19) pour les valeurs extrêmes de la largeur inhomogène de spin estimée en Eq. (6.2). Nous avons utilisé la technique de l'excitation transitoire dans la région angulaire sur fond bleu et celle du *SHB* dans celle sur fond jaune. La ligne en pointillés représente la valeur du temps de vie optique  $T_1$ .

Nous observons bien la forte anisotropie des temps de vie de spin, avec un rapport  $\frac{T_{z,max}}{T_{z,min}} \approx 2 \times 10^3$  ( $5 \times 10^3$  en théorie). Le temps de vie le plus court a été mesuré pour  $\varphi = 25^\circ$  et vaut  $180 \mu s$  tandis que le plus long dure  $387 ms$  pour un angle  $\varphi = 125^\circ$ . Moyennant la grande incertitude sur la largeur inhomogène, le modèle théorique semble ici adéquat et prédit assez fidèlement les variations observées. Il existe néanmoins quelques digressions au modèle.

### Amplitude des relaxations et modèle à trois niveaux

Pour les mesures par excitation transitoire, les temps de vie de spin proches du temps de vie optique (aux alentours de  $0^\circ$  et  $55^\circ$ ) ont des valeurs inférieures à ce qui est attendu. Ceci est dû à la méthode d'extraction de ces temps. Pour nous en convaincre, étudions les valeurs du coefficient  $a$ , paramètre libre de l'ajustement du modèle de décroissance Eq. (5.4) à nos données. Ses valeurs sont présentées à gauche de Fig. 6.5. En moyenne, environ 30% des ions du milieu participent à la relaxation de spin.

Comparons cela à ce qui est attendu pour l'évolution libre d'un système à trois niveaux (Eq. (3.45)). En remplaçant les conditions initiales de cette formule par celles de l'excitation transitoire ( $\hat{\rho}_{ff} = 0$  et  $\hat{\rho}_{ee} = \frac{1}{2}$ ), nous pouvons écrire

$$a = \frac{A_z}{A_z + A_1} = \frac{1}{4} \left( 1 - \frac{1-R}{1+R} \frac{1}{1 - \frac{T_1}{T_z}} \right). \quad (6.3)$$

Les valeurs calculées par cette équation sont représentées par la courbe bleue à gauche de Fig. 6.5. Fixons les valeurs du paramètre libre  $a$  à celles données par ce modèle. La variation des temps de vie de spin mesurée suit alors plus fidèlement la prédiction théorique (en orange, à droite de Fig. 6.5). L'hypothèse d'un système à trois niveaux semble effectivement suffisante pour décrire la dynamique observée.

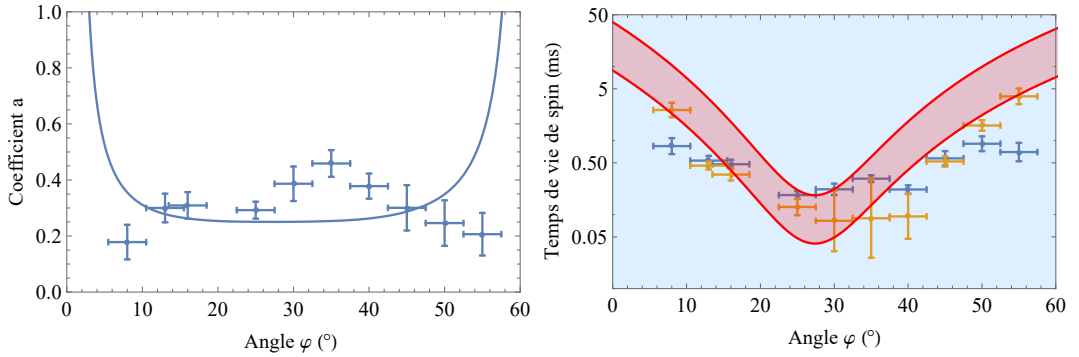


FIGURE 6.5 – À gauche, valeur des coefficients  $a$  extraits de l'ajustement de la formule Eq. (5.4) pour les données ayant mené aux temps de vie de spin présentés dans Fig. 6.4. La ligne bleue représente la valeur attendue de ce coefficient pour un système à trois niveaux (Eq. (6.3)). À droite, comparaison entre les temps de vie obtenus lorsque le paramètre  $a$  est laissé libre (bleu) et lorsque nous le fixons à l'aide de Eq. (6.3) (orange).

### Présence du site 2

La petite diminution visible autour de  $135^\circ$  est aussi explicable en considérant le second site de substitution de l'erbium, jusqu'ici ignoré. Il se trouve que pour  $\varphi = 57^\circ$  et  $\varphi = 130^\circ$ , les deux sites ont des facteurs  $g$  identiques dans l'état fondamental [65]. Les basculements de spin vont donc pouvoir se produire entre les spins de ces deux sites. Ceci a pour effet de multiplier par 2 la densité de spin donnée en Eq. (4.18). Le temps de vie attendu est alors divisé par 4. Supposons que les niveaux de spin ont une largeur inhomogène de 5.5 MHz (valeur moyenne de l'intervalle de confiance mesuré Eq. (6.2)). Ceci est équivalent à une variation du facteur  $g$  de  $\pm 0.7$ . La partie gauche de Fig. 6.6 nous permet de comprendre que l'interaction entre les deux sites est possible sur quelques degrés autour des croisements des deux facteurs  $g$ , à  $57^\circ$  et  $130^\circ$ . En incluant cet effet dans les prédictions théoriques, la variation des temps de vie de spin observés autour de  $135^\circ$  semble maintenant bien correspondre au modèle pour l'élargissement inhomogène moyen (voir à droite de Fig. 6.6).

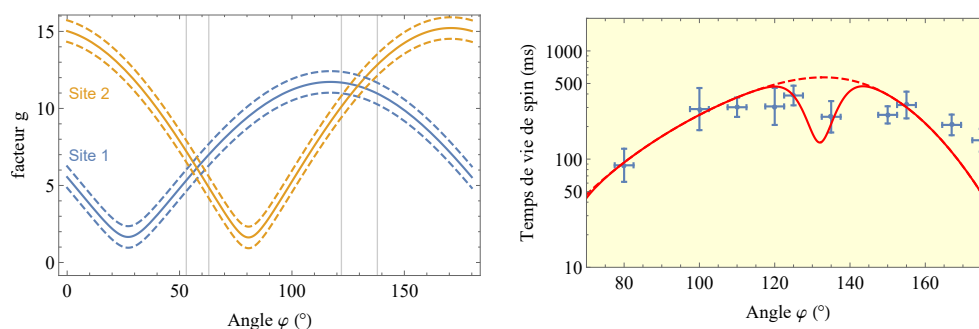


FIGURE 6.6 – À gauche, variation des facteurs  $g$  des deux sites de substitution avec l'angle du champ magnétique. Les lignes en pointillés correspondent à l'effet d'un élargissement inhomogène de spin de 5.5 MHz. Nous voyons que ces facteurs se croisent sur des régions angulaires de quelques degrés, matérialisées par les lignes verticales. Prendre en compte cette interaction permet d'affiner le modèle théorique. La variation des temps de vie de spin autour de  $135^\circ$  (à droite) correspond maintenant bien à la prédiction théorique pour  $\Gamma_{inh,s} = 5.5$  MHz (ligne rouge continue).

### Longs temps de vie

Les temps de vie de spin extraits par la technique de *SHB*, entre  $60^\circ$  et  $175^\circ$  sont des temps relativement longs. Cependant, plusieurs secondes après excitation, une petite fraction du trou et des anti-trous latéraux persiste pendant un temps encore plus long. Cet effet a déjà été observé dans le matériau  $\text{Er}^{3+}:\text{YVO}_4$  [98] ainsi que dans  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$  [99, 100]. Il semble être attribué à l'effet des isotopes impairs  $^{167}\text{Er}$ . Afin de prendre en compte cet effet, une décroissance exponentielle supplémentaire doit être rajoutée dans Eq. (5.4) :

$$\Delta_\alpha(t) = \alpha_0^{\text{abs}} \left( (1 - a - b)e^{-\frac{t}{T_1}} + ae^{-\frac{t}{T_2}} + be^{-\frac{t}{T_{\text{long}}}} \right). \quad (6.4)$$

Les valeurs de ces longs temps de relaxation sont reportées dans Fig. 6.7. Sur la zone angulaire mesurée, ils s'étendent de 2 s pour  $60^\circ$  à plusieurs minutes pour les angles autour de  $120^\circ$ . La variation de ces temps de vie est similaire à celle des temps de vie de spin. Pour les angles auxquels nous avons fait cette mesure, la proportion d'atomes participant à cette relaxation lente



vaut  $b \approx 20\%$ . Ce nombre est bien en accord avec le pourcentage d'isotopes impairs présents dans notre échantillon.

Les niveaux hyperfins de ces isotopes sont distants de quelques GHz à champ nul [101, 102] dans l'état fondamental comme dans l'état excité. Cependant, certaines transitions optiques entre ces niveaux restent accessibles à l'excitation. Pour des champs de l'ordre du mT, la différence entre les écarts en fréquence de ces différents niveaux ( $\Delta g - \Delta g'$ ) est, à l'élargissement inhomogène de spin près, confondue à celle des isotopes pairs. La faible valeur du magnéton nucléaire induit une plus grande stabilité de ces spins. Ceci expliquerait la présence de ces trous persistants. L'effet de ces isotopes pourrait être confirmé en comparant ces résultats avec ceux d'un cristal isotopiquement pur.

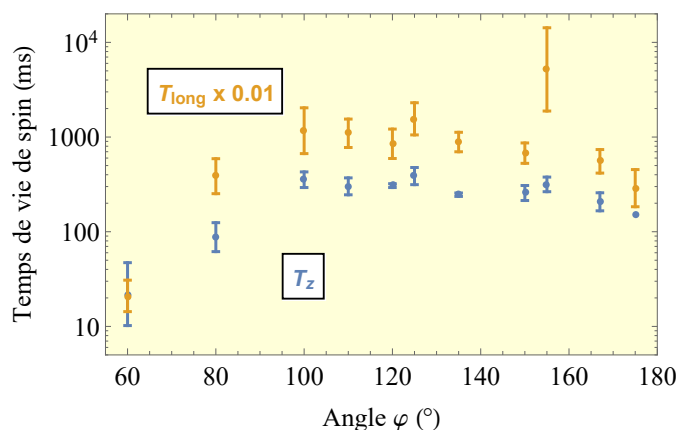


FIGURE 6.7 – Comparaison entre les temps de vie de spin et les temps de relaxation du trou persistant. Ces derniers vont de quelques secondes à plusieurs minutes. Ils sont ici divisés par un facteur 100 afin de faciliter la comparaison des deux variations.

Pour résumer, cette étude a permis de confirmer la forte anisotropie des temps de vie de spin à faible champ magnétique. Les valeurs mesurées pour différentes orientations sont en accord avec la formule analytique décrivant le couplage erbium-erbium.

Cependant, l'accord au modèle doit être nuancé. L'utilisation de la règle d'or de Fermi et la somme radiale effectuée sur un réseau cubique de spins fictifs sont des hypothèses assez fortes. Il serait intéressant de comparer notre calcul aux résultats d'un second modèle, basé sur la moyenne des différentes relaxations. Les données devraient alors être traitées différemment, à l'aide d'exponentielles étirées [103]. Quoi qu'il en soit, même si l'accord quantitatif peut être discuté, l'anisotropie est bel et bien réelle et qualitativement prédite par notre modèle. Dans  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ , il est donc nécessaire de choisir l'orientation du champ magnétique de manière à réduire les basculements réciproques de spin. Nous avons ici vérifié l'effet de la moyenne angulaire de notre modèle. La somme sur les distances radiales dépend quant à elle de la concentration.

### 6.2.2 Variation avec la concentration

Étudions maintenant l'effet de la concentration en ion erbium sur la variation des temps de vie de spin. Pour ce faire, nous utilisons le cristal dopé à 50 ppm. D'après l'équation Eq. (4.19), le taux de basculement est proportionnel au carré de la concentration. Nous nous attendons à observer des temps vingt-cinq fois plus faibles que ceux obtenus pour le cristal précédent. Nous cherchons donc à mesurer ces temps en utilisant la technique d'excitation transitoire uniquement. Nous obtenons les résultats présentés dans Fig. 6.8.

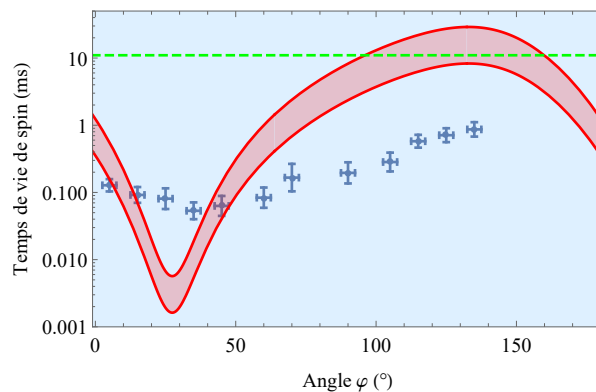


FIGURE 6.8 – Variation du temps de vie de spin de l'état fondamental en fonction de l'angle du champ magnétique  $\varphi$ . Ces mesures ont été effectuées sur un cristal dopé à 50 ppm sous un champ de 0.3 mT. La bande rouge représente toujours la variation donnée par la formule analytique Eq. (4.19) et l'incertitude provient de la largeur inhomogène de spin. Nous avons utilisé ici uniquement la technique de l'excitation transitoire (fond bleu). La ligne en pointillés verts représente la valeur du temps de vie optique.

Le premier résultat notable est que, quelque soit l'angle du champ magnétique appliqué, la relaxation présente deux décroissances exponentielles. Les temps de vie de spin sont donc bien inférieurs au temps de vie optique. Ils varient toujours en fonction de l'angle, avec un minimum de  $53 \mu\text{s}$  pour  $\varphi = 35^\circ$  et un maximum de  $870 \mu\text{s}$  pour  $\varphi = 135^\circ$ . Ces extrema sont atteints pour des angles concordant avec ceux attendus par la théorie.

Cependant l'amplitude des variations est bien plus faible que celle observée pour le cristal dopé à 10 ppm. Le rapport d'amplitude ne vaut ici que  $\frac{T_{z,max}}{T_{z,min}} = 16$ , loin des trois ordres de grandeurs attendus. Néanmoins, l'écart entre les extrema expérimentaux et théoriques est équivalent. La moyenne géométrique des temps mesurés vaut 0.2 ms, bien plus faible que les 7 ms moyens du cristal précédent pour les mêmes angles. Le rapport 35 entre ces deux moyennes est de l'ordre de grandeur attendu. Une variation de l'élargissement inhomogène de spin entre les deux cristaux ou l'utilisation d'un champ quelque peu différent pourrait expliquer le léger désaccord. Nous pouvons donc affirmer que la dépendance en concentration de la formule Eq. (4.19) est valide. Cependant, il est certain que le calcul de la moyenne angulaire n'est plus valable pour cette concentration. Le modèle doit être re-considéré pour des concentrations de spin trop élevées.

L'étude des temps de vie de spin de ce second cristal nous a permis de vérifier leur proportionnalité à l'inverse du carré de la concentration en erbium. Ceci a le mérite d'aller dans le sens de la règle d'or de Fermi et de renforcer la validité du modèle utilisé. Regardons maintenant l'effet d'un dernier paramètre, la norme du champ magnétique.

### 6.2.3 Variation avec la norme du champ magnétique

Pour le cristal dopé à 50 ppm, un champ de quelques mT orienté à  $90^\circ$  conduit en théorie à des temps de vie de spin de l'ordre de la centaines de  $\mu\text{s}$ . Ces temps intermédiaires sont mesurables par excitation transitoire et sont assez loin du temps de vie optique. Lorsque nous varions la norme du champ de 0.3 mT à 1 T, nous obtenons la variation présentée dans Fig. 6.9.

À première vue, le temps de vie de spin varie de manière complexe. Isolons les différentes variations et essayons de comprendre les mécanismes associés. Pour commencer, le temps mesuré à 2 mT est trois à quatre fois plus long qu'à 0.3 mT. Cette variation est en accord avec l'effet de la séparation des deux orientations magnétiques (voir partie 6.1.2). En effet, pour des champs magnétiques supérieurs à quelques mT, la concentration des spins pouvant interagir est diminuée par deux. Les temps de vie seront alors multipliés par quatre.

Lorsque la norme du champ continue d'augmenter, nous observons que les temps de vie croissent de manière quasiment linéaire. Ceci est encore une fois en accord avec nos observations précédentes, où la largeur inhomogène de spin variait linéairement avec le champ. Le coefficient directeur de cette variation est de  $3.5 \text{ ms}\cdot\text{T}^{-1}$ . Au delà de 300 mT environ, les temps de vie de spin diminuent nettement. Ceci est dû aux basculements de spin provoqués par le couplage direct aux phonons (voir partie 1.2). Ce phénomène devient dominant pour ces valeurs de champ magnétique et sa variation en  $B^4$  continuera à réduire le temps de vie des spins du système pour des champs magnétiques plus élevés.

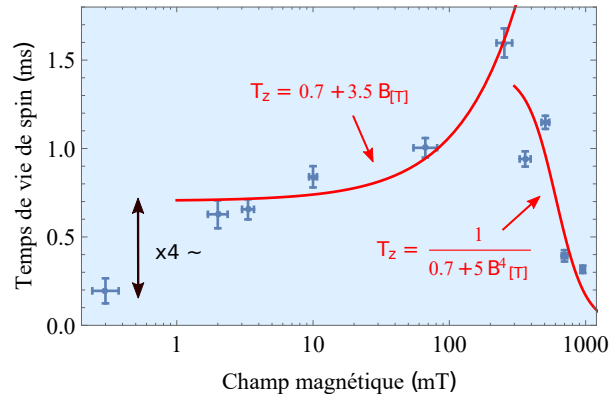


FIGURE 6.9 – Variation des temps de vie de spin en fonction de la norme du champ appliqué. Ces temps ont été mesurés par excitation transitoire, pour le cristal dopé à 50 ppm sous un champ orienté à  $\varphi = 90^\circ$ . Les lignes rouges correspondent à l'ajustement d'un modèle linéaire pour la variation des basculements réciproques et en  $B^{-4}$  pour celle du couplage direct aux phonons.

Ces mesures permettent de vérifier *a posteriori* que pour des champs magnétiques inférieurs à la centaine de mT, les basculements réciproques sont bien le seul phénomène basculant les spins du système. Pour ces champs, la variation linéaire des temps de vie semble donc uniquement due à l'élargissement inhomogène de spin. Son augmentation linéaire avec le champ magnétique explique sans doute aussi la variation moyenne du temps de cohérence présenté dans Fig. 1.1, avant 300 mT. Les mécanismes à l'origine des variations de l'élargissement inhomogène de spin sont encore mal compris et devraient donc être étudiés plus en détail.

Bien qu'encore incomplet et discutable, notre modèle incluant l'anisotropie de  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$  dans le calcul des interactions erbium-erbium est partiellement vérifié par nos données expérimentales. Nous pouvons supposer que ce modèle peut s'appliquer aux autres matériaux présentant un tenseur  $g$  anisotrope.

## 6.3 Application à d'autres systèmes

Dans la partie précédente, nous avons vérifié par l'expérience l'effet de l'anisotropie sur les basculements réciproques. Nous avons montré que pour des concentrations en erbium faibles, un nouveau degré de liberté doit être optimisé. Choisir avec discernement l'angle du champ magnétique appliqué peut s'avérer crucial afin d'accroître la stabilité des spins et réduire la décohérence qu'ils provoquent. Diminuer la concentration en ions dopants reste ensuite la dernière façon de réduire l'effet de ces basculements.

Dans cette dernière partie, je vais essayer de transposer notre compréhension de la dynamique de  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$  à d'autres matrices dopées, couramment utilisées dans le domaine de l'information quantique. Nous verrons finalement que supprimer la limitation due aux basculements réciproques n'est pas une tâche aisée.

### 6.3.1 Différentes matrices

La scheelite ( $\text{CaWO}_4$ ) est une matrice déjà utilisée pour du stockage d'information quantique [104]. Ce cristal présente une haute symétrie ( $S_4$ ) et des temps de cohérence durant plusieurs dizaines de  $\mu\text{s}$  [92]. Les tenseurs  $g$  de cette matrice sont diagonaux selon les axes cristallins (a,b,c). L'excitation se fait le plus souvent selon l'axe c. Les axes a et b sont les axes perpendiculaires du tenseur et leurs facteurs  $g$  sont identiques. Pour l'état fondamental du système  $\text{Er}^{3+}:\text{CaWO}_4$ , ce tenseur s'écrit [105]

$$\bar{g} = \begin{pmatrix} g_{\perp} & 0 & 0 \\ 0 & g_{\perp} & 0 \\ 0 & 0 & g_{\parallel} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 8.38 & 0 & 0 \\ 0 & 8.38 & 0 \\ 0 & 0 & 1.25 \end{pmatrix}. \quad (6.5)$$

Pour estimer le taux de basculement réciproque des dopants erbium dans ce milieu, nous avons besoin de connaître la densité de ces ions pouvant interagir. Comme ils se substituent au calcium sur un unique site de substitution, un raisonnement similaire à celui développé pour Eq. (4.18) permet d'obtenir :

$$n_{Er} = \frac{0.77}{2} c \times n_{Ca} \quad \text{avec} \quad n_{Ca} = 1.275 \cdot 10^{28} \text{ m}^{-3}. \quad (6.6)$$

$c$  représente toujours le taux de dopage en erbium.

Le niobate de lithium ( $\text{LiNbO}_3$ ), largement étudié dans le cadre de l'opto-électronique, est lui aussi utilisé pour réaliser des protocoles de mémoire [106, 107, 108]. Cette matrice présente une structure de symétrie inférieure ( $C_3$ ). De la même manière que pour la matrice précédente, ses tenseurs  $g$  sont diagonaux dans le repère (a,b,c). Dans le système  $\text{Er}^{3+}:\text{LiNbO}_3$ , le tenseur  $g$  de l'état fondamental s'écrit [109]

$$\bar{g} = \begin{pmatrix} g_{\perp} & 0 & 0 \\ 0 & g_{\perp} & 0 \\ 0 & 0 & g_{\parallel} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 2.14 & 0 & 0 \\ 0 & 2.14 & 0 \\ 0 & 0 & 15.13 \end{pmatrix} \quad (6.7)$$

Les ions erbium remplacent le lithium dont nous pouvons calculer la concentration comme précédemment. Nous obtenons alors

$$n_{Er} = \frac{0.77 c}{2} \times n_{Li} \quad \text{avec} \quad n_{Li} = 1.89 \cdot 10^{28} \text{m}^{-3}. \quad (6.8)$$

En utilisant notre modèle, faisons le calcul des temps de vie de spin dans l'état fondamental pour  $\text{Er}^{3+}:\text{CaWO}_4$  et  $\text{Er}^{3+}:\text{LiNbO}_3$ . Je remplace le dernier terme entre parenthèses de Eq. (4.19) par la valeur donnée dans Eq. (6.6) pour la scheelite ou Eq. (6.8) pour le niobate de lithium. Je choisis de fixer la valeur de la largeur inhomogène de spin à 5.5 MHz. Dans les deux cas, le repère  $(D_1, D_2, b)$  est remplacé par le repère  $(a, b, c)$ . D'après la symétrie de rotation du tenseur autour de l'axe  $c$ , changer l'angle  $\varphi$  du champ par rapport à l'axe  $a$  n'aura aucun effet sur la dynamique du système. Fig. 6.10 représente les valeurs calculées en variant la co-latitude  $\vartheta$ , pour un taux de dopage à l'erbium de  $c = 10$  ppm.

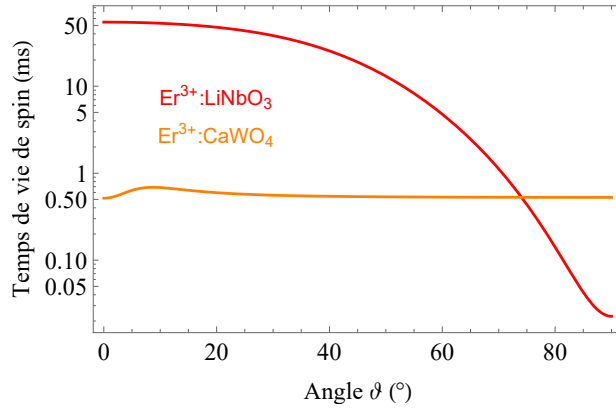


FIGURE 6.10 – Variation théorique des temps de vie de spin du niveau fondamental en fonction de l'angle champ magnétique appliqué pour les système  $\text{Er}^{3+}:\text{LiNbO}_3$  (rouge) et  $\text{Er}^{3+}:\text{CaWO}_4$  (orange). L'angle  $\vartheta$  correspond à l'angle entre le champ magnétique et l'axe  $c$  du cristal. Ces prédictions sont issues de la formule Eq. (4.19) avec  $c = 10$  ppm et  $\Gamma_{inh,s} = 5.5$  MHz.

Les deux systèmes, assez similaires à première vue, sont en réalité bien différents pour ce qui est de l'anisotropie de leur dynamique. Les basculements réciproques des ions erbium sont quasiment indépendants de l'angle du champ dans  $\text{CaWO}_4$  alors qu'ils varient de plus de trois ordres de grandeur dans  $\text{LiNbO}_3$ . L'exemple donné par l'équation Eq. (4.21) nous a montré que la moyenne angulaire et donc le taux des basculements dépend uniquement des composantes du tenseur perpendiculaires au champ appliqué. Ainsi, pour les deux matrices

$$\begin{aligned} \mathbf{B} \parallel c (\vartheta = 0) & : \mathcal{R} \propto g_{\perp}^4 \\ \mathbf{B} \perp c (\vartheta = 90) & : \mathcal{R} \propto g_{\perp}^4 + g_{\parallel}^4 - g_{\perp}^2 g_{\parallel}^2 \end{aligned} \quad (6.9)$$

La différence se comprend alors en regardant les valeurs de leurs tenseurs  $g$  respectifs. Celui de  $\text{Er}^{3+}:\text{CaWO}_4$  présente deux valeurs élevées ( $g_{\perp} = 8.38$ ) et une faible ( $g_{\parallel} = 1.25$ ). Quel que soit l'angle du champ appliqué, le taux dépend de  $g_{\perp}$  élevé et par conséquent, les temps de vie associés varient peu. En revanche, pour  $\text{Er}^{3+}:\text{LiNbO}_3$ , les deux composantes perpendiculaires sont faibles ( $g_{\perp} = 2.14$ ). Un champ magnétique appliqué selon l'axe  $c$  du cristal conduit à des temps de vie de spin bien plus longs que s'il est appliqué perpendiculairement à cet axe.

Au travers de ces deux exemples, nous comprenons donc que pour avoir un faible taux de basculement réciproque, il faut que le tenseur  $g$  diagonal du matériau possède au moins deux valeurs faibles. Le champ magnétique doit alors être appliqué perpendiculairement aux axes portant ces deux valeurs. Nous allons voir que cette seconde condition est indispensable car l'orientation optimale varie aussi avec l'ion dopant.

### 6.3.2 Différents ions dopants dans $Y_2SiO_5$

Tentons de prédire l'effet de l'anisotropie de la matrice  $Y_2SiO_5$  une fois dopée par d'autres ions terre-rare utilisés dans le cadre de l'information quantique. Par exemple, le système  $Nd^{3+}:Y_2SiO_5$  est très prometteur en raison de ses longs temps de cohérence de spin électronique et nucléaire [110]. Il a déjà servi de mémoire pour de nombreuses expériences [111, 112]. Étudié plus récemment,  $^{171}Yb^{3+}:Y_2SiO_5$  tire quant à lui l'avantage de sa structure simple ( $I = S = \frac{1}{2}$ ) et de sa grande force d'oscillateur [113, 114]. Les tenseurs  $g$  des spins électroniques de  $Nd^{3+}:Y_2SiO_5$  et  $Yb^{3+}:Y_2SiO_5$  ont été mesurés dans [110] et [113] respectivement. Dans l'état fondamental et pour le site 1 de substitution, leurs valeurs sont

$$\bar{g} = \begin{pmatrix} 1.49 & 0 & 0 \\ 0 & -0.98 & 0 \\ 0 & 0 & -4.17 \end{pmatrix} \quad \text{et} \quad \bar{g} = \begin{pmatrix} -0.31 & 0 & 0 \\ 0 & -1.6 & 0 \\ 0 & 0 & 6.53 \end{pmatrix}. \quad (6.10)$$

Dans ces références, les angles d'Euler permettant de relier ces repères à celui du cristal ( $D_1, D_2, b$ ) sont donnés dans la convention  $zxz$  (voir Tab. (6.2)).

Système	$\alpha$	$\beta$	$\gamma$
$Nd^{3+}:Y_2SiO_5$	192	39	183
$Yb^{3+}:Y_2SiO_5$	252.8	88.7	113.8

TABLE 6.2 – Valeurs des angles d'Euler en degré dans l'état fondamental de  $Nd^{3+}:Y_2SiO_5$  et  $Yb^{3+}:Y_2SiO_5$  (site 1).

Pour ces deux systèmes, le calcul du taux de basculement réciproque des spins peut être fait de la même manière que pour  $Er^{3+}:Y_2SiO_5$ . En plus des tenseurs  $g$ , seule l'abondance naturelle en isotopes pairs doit être modifiée. Son pourcentage passe de 0.77 à 0.8 pour le néodyme et 0.7 pour l'ytterbium. Fig. 6.11 compare la variation des temps de vie de spin de  $Nd^{3+}:Y_2SiO_5$  et  $Yb^{3+}:Y_2SiO_5$  à celle de  $Er^{3+}:Y_2SiO_5$ . Toutes sont calculées pour des largeurs inhomogènes de 5.5 MHz et un taux de dopage de  $c = 10$  ppm.

Les trois systèmes subissent l'effet de la basse symétrie de  $Y_2SiO_5$ .  $Er^{3+}:Y_2SiO_5$  est le système le plus anisotrope mais n'est pas celui où les temps peuvent être les plus longs. Leurs valeurs extrémales sont reportées dans Tab. (6.3).

Il est intéressant de comparer les valeurs estimées par notre modèle à celles de la bibliographie. Pour un cristal de  $Nd^{3+}:Y_2SiO_5$  dopé à 30 ppm, le temps de vie de spin maximal est de 140 ms, mesuré pour un champ orienté à  $120^\circ$  [94]. Cette valeur peut être retrouvée par notre modèle pour une largeur  $\Gamma_{inh,s} = 11$  MHz, valeur cohérente pour ce genre de champ magnétique [110]. Un désaccord apparaît quant à l'angle pour lequel apparaît ce maximum ainsi que pour la faible variation des temps mesurés (voir figure 4 de [94]). Toutefois, les variations avec l'angle et la norme du champ magnétique sont mélangées dans cette figure. De plus, les champs étudiés sont tous de quelques centaines de mT, zone où l'influence du couplage au phonons n'est pas négligeable. Comme la force de ce couplage varie aussi avec l'angle du champ, il semble difficile de

conclure sur un accord ou un désaccord avec notre modèle. Pour  $\text{Yb}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ , les basculements réciproques ont été logiquement négligés pour les études de dynamique effectuées à 1 T [114]. L'éventuelle anisotropie de la dynamique des spin à bas champ n'a pas encore été étudiée en détail.

L'étude des basculements réciproques ne peut se faire de manière isolée que pour des champs magnétiques inférieurs à quelques centaines de mT. Pour les systèmes anisotropes, le champ doit être appliqué selon l'axe principal du tenseur  $g$  afin de limiter ces basculements. Ceci fait, ils peuvent être encore réduits en abaissant la concentration de l'ion dopant.

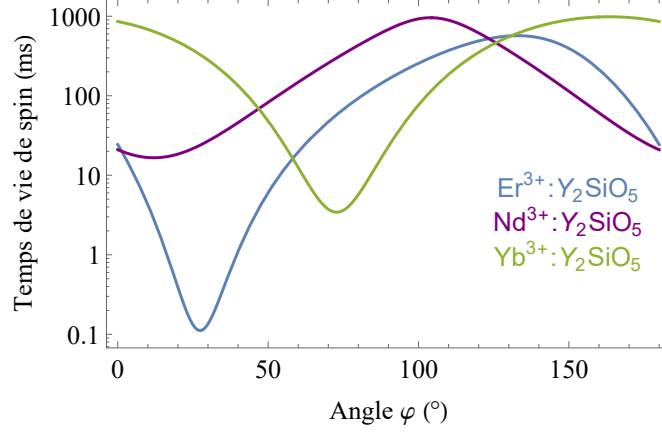


FIGURE 6.11 – Variation théorique des temps de vie de spin du niveau fondamental en fonction de l'angle du champ magnétique pour les système  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$  (bleu),  $\text{Nd}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$  (violet) et  $\text{Yb}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$  (vert). L'angle  $\varphi$  correspond à l'angle entre le champ magnétique et l'axe  $D_1$  du cristal. Ces prédictions sont issues de la formule Eq. (4.19) avec  $c = 10$  ppm et  $\Gamma_{inh,s} = 5$  MHz.

Système	$T_{z,max}$ (ms)	Angle	$T_{z,min}$ (ms)	Angle
$\text{Er}^{3+}:\text{CaWO}_4$	0.69	$\vartheta = 9^\circ$	0.51	$\vartheta = 0^\circ$
$\text{Er}^{3+}:\text{LiNbO}_3$	55	$\vartheta = 0^\circ$	0.02	$\vartheta = 90^\circ$
$\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$	570	$\varphi = 133^\circ$	0.1	$\varphi = 27^\circ$
$\text{Nd}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$	958	$\varphi = 104^\circ$	17	$\varphi = 12^\circ$
$\text{Yb}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$	985	$\varphi = 164^\circ$	3	$\varphi = 73^\circ$

TABLE 6.3 – Temps extrémaux des différents systèmes ainsi que l'angle des champs magnétiques associés. Ces valeurs sont calculées par l'inverse de Eq. (4.16) pour  $c = 10$  ppm et  $\Gamma_{inh,s} = 5.5$  MHz.

### 6.3.3 Réduction de la concentration

L'influence de la concentration en ions erbium sur leurs basculements réciproques a été vérifiée en moyenne dans la partie 6.2.2. Aux faibles champs magnétiques, le taux de ces couplages est proportionnel au carré de la concentration. Dans ces conditions, la diminuer équivaut donc à augmenter le temps de vie des spins du système.

La plupart des protocoles de stockage nécessitent un pompage optique efficace pour préparer le système ou pour y encoder une information. Pour  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ , l'efficacité de tous les protocoles qui nécessitent une telle préparation est faible [100]. Comme nous l'avons vu dans Eq. (5.3), l'accumulation d'atomes dans le niveau  $|f, +\rangle$  dépend du temps de vie optique et du rapport de branchement. Dans notre système où le branchement ne vaut la plupart du temps que quelques centièmes seulement (voir Fig. 2.10), le pompage ne serait réellement efficace que pour des temps de vie de spin d'au moins quelques secondes. En supposant que les autres phénomènes de relaxation restent négligeables, je vais utiliser notre modèle pour estimer les concentrations menant à de tels temps de vie.

Fig. 6.12 présente l'ordre de grandeur des temps de vie de spin attendus pour les différentes matrices étudiées, en fonction du taux de dopage  $c$ . Il faut noter que les valeurs représentées sont calculées pour des champs de quelques mT, orientés de manière optimale. Par exemple, les concentrations nécessaires pour atteindre  $T_z = 1$  s, seraient 9.9, 9.8 et 7.5 ppm pour  $\text{Yb}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ ,  $\text{Nd}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$  et  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$  respectivement, tandis qu'il faudrait  $c = 2.3$  ppm pour l'orientation optimale de  $\text{Er}^{3+}:\text{LiNbO}_3$  et  $c = 0.26$  pour  $\text{Er}^{3+}:\text{CaWO}_4$ .

Ces ordres de grandeur ont pour seul mérite de montrer qu'il est difficile de s'affranchir totalement des basculements réciproques. Pour ce faire, il serait en effet obligatoire de travailler dans l'orientation optimale et de diminuer le taux de dopage des matériaux, parfois en deçà du ppm. Ces concentrations se rapprocheraient de la limite de pureté des ions terre-rare dopants et rendraient les mesures optiques difficiles.

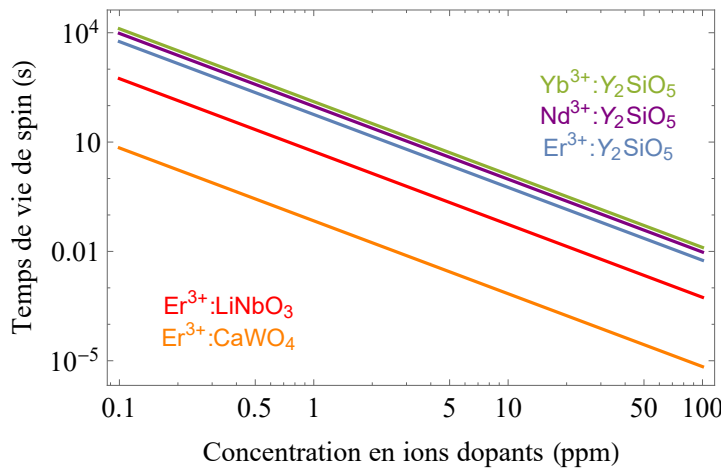


FIGURE 6.12 – Variation théorique des temps de vie de spin du niveau fondamental en fonction de la concentration en ions dopants pour les système  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$  (bleu),  $\text{Nd}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$  (violet),  $\text{Yb}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$  (vert),  $\text{Er}^{3+}:\text{CaWO}_4$  (orange) et  $\text{Er}^{3+}:\text{LiNbO}_3$  (rouge). Ces prédictions sont issues de la formule Eq. (4.19) avec  $\Gamma_{inh,s} = 5.5$  MHz, en considérant l'angle où  $T_z$  est maximal pour chaque système.



Dans cette partie spéculative, nous avons extrapolé notre modèle à plusieurs autres systèmes fréquemment utilisés. Les études complètes de l'anisotropie des temps de vie aux faibles champs magnétiques n'y sont pas légion, il est donc difficile de vérifier la cohérence de notre approche. En gardant cela à l'esprit, nous pouvons penser que  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$  n'est pas un cas isolé. L'optimisation du champ magnétique serait bénéfique pour plusieurs autres systèmes. Malgré cela, supprimer totalement les basculements réciproques n'est pas trivial pour les températures que nous utilisons. Une façon de les rendre négligeables serait de descendre à quelques dizaines de mK [115]. Les spins seraient alors polarisés, ce qui empêcherait le phénomène de basculement réciproque. Cependant, le dispositif expérimental serait alors très différent et bien plus complexe.

#### Résumé du chapitre

- La largeur inhomogène de spin augmente linéairement avec le champ magnétique. Ceci provoque l'augmentation des temps de vie de spin jusqu'à quelques centaines de mT, où le couplage aux phonons devient dominant.
- Pour des champs magnétiques et des concentrations faibles, nous avons pu mesurer la forte anisotropie prédite pour les basculements réciproques de l'erbium. Afin de minimiser ces basculements, le champ doit être appliqué selon l'axe principal du tenseur diagonal.
- Le taux des basculements réciproques augmente en moyenne comme le carré de la concentration. S'affranchir totalement de ces couplages impose l'orientation du champ et nécessite parfois des concentrations de l'ordre du ppm.

## Chapitre 7

# Mesure des couplages erbium-yttrium anisotropes

L'interaction super-hyperfine entre un spin électronique actif et les spins nucléaires de son environnement a été étudiée par ESEEM (*Electron Spin Echo Envelope Modulation*) dans de nombreux systèmes [78, 76, 116]. Le contrôle de cette interaction permet d'augmenter leur cohérence [117, 27]. Dans  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ , nous avons compris que les couplages erbium-yttrium peuvent aussi être étudiés grâce aux modulations d'une décroissance d'écho de photon (partie 3.3.2). Celles-ci ont déjà été observées mais ne sont pas décrites en détail [50]. L'anisotropie de notre système rend ces modulations très dépendantes de la position des différents ligands et de l'orientation du champ appliqué (partie 4.4). Dans la plupart des cas, elles sont complexes et difficiles à étudier.

Dans cette partie, je vais commencer par expliciter les particularités de notre méthode optique par rapport aux études historiques de ces couplages en ESEEM. Je montrerai que son avantage majeur est qu'elle ne contraint pas la valeur du champ magnétique à appliquer sur le système. Ceci permet en effet d'accéder à deux régimes de couplage différents. Je vérifierai expérimentalement qu'il est alors possible de coupler l'ion erbium à un unique ion yttrium. L'étude des caractéristiques de ce couplage en sera grandement simplifiée. Ce résultat original a fait l'objet d'une publication [118]. Enfin, nous remarquerons qu'au contraire, pour des champs magnétiques de l'ordre du mT, le couplage à une multitude d'ions ligands détruit le signal d'écho.

### 7.1 Une technique sensible à différents régimes de couplage

#### 7.1.1 Comparaison entre RPE et Optique

L'*ESEEM* est une technique cohérente de RPE. Elle est contrainte par les champs radiofréquences (RF) émis dans la bande X (8-12 GHz). La valeur du champ magnétique extérieur  $B$  est donc imposée de manière à satisfaire la condition de résonance électronique (voir Fig. 3.1). Pour un facteur  $g$  scalaire de 2 et un champ RF à 10 GHz, la résonance aurait lieu pour un champ extérieur d'environ 350 mT. L'anisotropie et les fortes valeurs du tenseur  $g$  de  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$  permettent l'utilisation de champs plus faibles selon l'orientation choisie, jusqu'à 50 mT aux alentours de  $135^\circ$ . Sa valeur reste néanmoins imposée pour chaque orientation. Ceci n'est pas le cas pour la méthode optique que nous proposons. Or, nous allons voir que ce degré de liberté

est nécessaire pour réaliser une étude sélective des différents ligands. Afin de nous en convaincre, comparons l'expression des contrastes de modulation obtenus en *ESEEM* ou par excitation optique.

Nous avons vu que ces contrastes dépendent uniquement de l'angle entre les champs effectifs des niveaux sur lesquels se base la séquence (voir Eq. (4.37)). Rappelons que ces champs sont définis comme étant la somme entre le champ extérieur  $\mathbf{B}$  et les champs locaux créés par l'erbium. Ces derniers sont notés  $\mathbf{B}_{Er}$  et  $\mathbf{B}'_{Er}$  dans le cas d'une excitation optique entre l'état fondamental et l'état excité. Dans le cas de l'excitation de la transition de spin dans l'état fondamental, ils sont opposés et valent  $\mathbf{B}_{Er}$  et  $-\mathbf{B}_{Er}$ . Selon le cas, ces contrastes s'écrivent alors :

$$\mathcal{C}_Y^{ESEEM} = 1 - \frac{(\mathbf{B} + \mathbf{B}_{Er})^2 \cdot (\mathbf{B} - \mathbf{B}_{Er})^2}{\|\mathbf{B} + \mathbf{B}_{Er}\|^2 \|\mathbf{B} - \mathbf{B}_{Er}\|^2} \quad (7.1)$$

$$\mathcal{C}_Y = 1 - \frac{(\mathbf{B} + \mathbf{B}_{Er})^2 \cdot (\mathbf{B} + \mathbf{B}'_{Er})^2}{\|\mathbf{B} + \mathbf{B}_{Er}\|^2 \|\mathbf{B} + \mathbf{B}'_{Er}\|^2}.$$

Ils peuvent aussi s'exprimer sous la forme

$$\mathcal{C}_Y^{ESEEM} = 1 - \frac{(B^2 - B_{Er}^2)^2}{(B^2 + B_{Er}^2)^2 - 4(\mathbf{B} \cdot \mathbf{B}_{Er})^2}$$

$$\mathcal{C}_Y = 1 - \frac{\left[ (\mathbf{B} + \mathbf{S}_{Er})^2 - D_{Er}^2 \right]^2}{\left[ (\mathbf{B} + \mathbf{S}_{Er})^2 + D_{Er}^2 \right]^2 - 4[D_{Er} \cdot (\mathbf{B} + \mathbf{S}_{Er})]^2} \quad \text{avec} \quad \begin{cases} D_{Er} = \frac{B_{Er} - B'_{Er}}{2} \\ S_{Er} = \frac{B_{Er} + B'_{Er}}{2} \end{cases} \quad (7.2)$$

Ces expressions illustrent les deux différences majeures entre l'*ESEEM* et la modulation de l'écho de photon. Dans les deux cas, la valeur maximale des contrastes de modulation est de 1. Pour l'*ESEEM*, elle est atteinte pour tout ligand lorsque  $B = \pm B_{Er}$ . En pratique, comme la valeur du champ magnétique est imposée, cette condition n'est pas toujours vérifiée. Fig. 7.1 présente différentes cartes du contraste de modulation  $\mathcal{C}_Y^{ESEEM}$  dans le plan  $(D_1, D_2)$ . Elles sont calculées grâce à Eq. (7.2) pour un champ magnétique orienté à  $45^\circ$  et des distances à l'erbium différentes. Pour cette orientation, le facteur  $g$  de l'état fondamental vaut 4 [65] et, pour un champ RF à 10 GHz, la condition de résonance est vérifiée pour  $B = 170$  mT. Nous pouvons noter que les contrastes de modulation sont élevés pour de nombreuses orientations. L'étendue de ces orientations optimales diminue lorsque la distance des ions yttrium augmente mais elle reste tout de même importante.

En optique, le contraste maximal de 1 n'est atteint que si la condition  $(\mathbf{B} + \mathbf{S}_{Er})^2 = D^2$  est respectée. Cette situation bien moins fréquente n'est approchée que par certains ions yttrium bien positionnés (voir les cartes de Fig. 4.10). L'anisotropie de  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$  rend donc la méthode optique sensible à un nombre réduit d'ions ligands. De plus, nous avons déjà vu que l'optique permet une certaine liberté sur le champ magnétique appliqué. Il est donc possible d'en modifier la norme afin de minimiser le numérateur  $(\mathbf{B} + \mathbf{S}_{Er})^2 - D^2$  pour un yttrium donné. Ceci permet d'amplifier le couplage optique à cet ion en particulier.

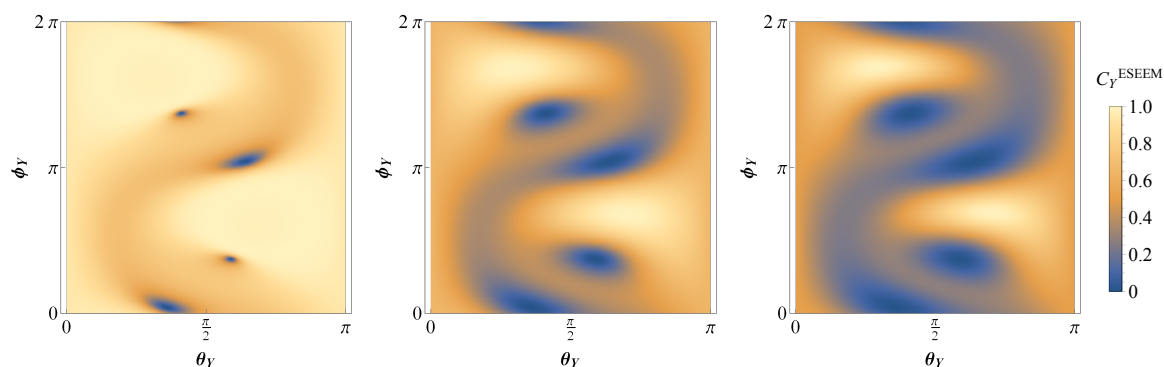


FIGURE 7.1 – Variation du contraste de modulation  $C_Y^{ESEEM}$  en tous points du plan  $(D_1, D_2)$ . Attention, contrairement aux cartes de Fig. 4.10, celles-ci sont établies pour le champ magnétique fixe permettant la résonance et dépendent donc de la distance radiale des ligands. Les trois cartes sont donc établies pour un champ magnétique extérieur de 170 mT orienté à  $\varphi = 45^\circ$ , pour des distances  $r_Y$  de 4 Å, 5.5 Å et 7 Å (de gauche à droite). Les coordonnées sphériques  $\theta_Y$  et  $\phi_Y$  sont celles du vecteur  $\mathbf{r}_Y$  dans le repère  $(D_1, D_2, b)$ .

Par ailleurs, lorsque le champ magnétique tend vers zéro, le contraste devient nul en *ESEEM* (voir à gauche de Fig. 7.2). Les niveaux sur lesquels se basent les transitions qui interféraient sont confondus et les modulations associées disparaissent. Pour les très faibles champs, l'effet des couplages aux ligands n'est plus observable. Ce n'est pas le cas en optique, bien au contraire. Dans la partie de droite de cette même figure, nous remarquons que le contraste de modulation optique est faible mais non nul en l'absence de champ.

Nous allons voir que la flexibilité en champ magnétique de la méthode optique ainsi que l'existence de contrastes non nuls aux champs très faibles permettent d'atteindre différents régimes de couplage.

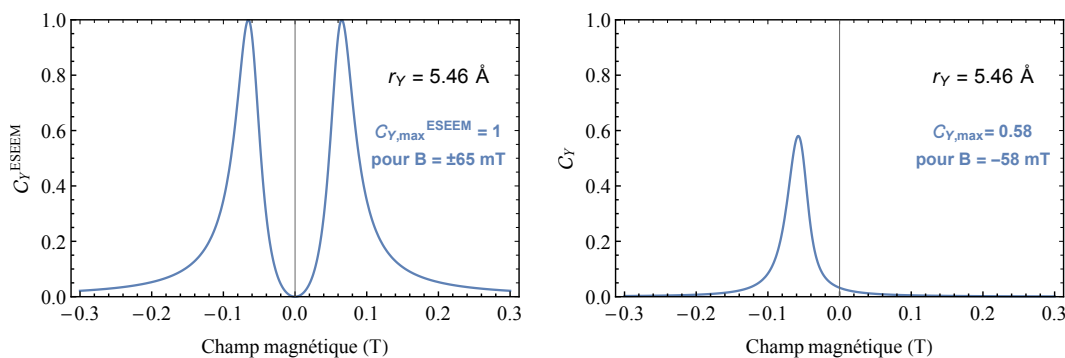


FIGURE 7.2 – Comparaison de la variation des contrastes de modulation avec la norme du champ magnétique, en *ESEEM* (à gauche) et en optique (à droite). Ces contrastes sont calculés à partir des expressions de Eq. (7.2), pour l'ion yttrium situé à 5.46 Å et un champ magnétique orienté à  $\varphi = 45^\circ$ .

### 7.1.2 Définition des régimes de champ fort et de champ faible

Lorsque le champ magnétique appliqué est inférieur à la centaine de mT, il peut être du même ordre que le champ local créé par l'erbium au niveau des ligands les plus proches. Selon leurs distances, les ions yttrium ne sont pas couplés de manière équivalente. Étudions les différents régimes de ces couplages à l'aide du contraste de modulation optique.

Ces contrastes dépendent indirectement de la distance de l'yttrium couplé. Plus ce ligand est proche de l'erbium, plus les champs locaux qu'il ressent sont potentiellement forts. Le terme  $\mathbf{S}_{Er}$  a donc des chances d'être élevé. Il doit alors être comparé au champ magnétique extérieur. Deux régimes de couplage se distinguent : le régime de champ fort et le régime de champ faible.

Nous dirons qu'un yttrium est dans le régime de champ fort lorsque  $\mathbf{B} \gg \mathbf{S}_{Er}$ . Ceci arrive pour tous les ions au delà d'une certaine distance notée  $R_1$  (voir schéma à gauche de Fig. 7.3). Plus le champ extérieur est grand, plus cette distance est petite. Comme les champs locaux sont négligeables, tous les ions de ce régime ont un rapport de branchement quasiment nul et leurs écarts en énergie sont équivalents.

Pour les ligands dont la distance à l'erbium est inférieure à  $R_1$ , les champs créés par ce dernier dominent le champ extérieur et vérifient  $\mathbf{B} \ll \mathbf{S}_{Er}$ . C'est le régime de champ faible. Le branchement des ions yttrium y est limité mais non nul. Il est aussi important de comprendre que dans ce régime, leurs écarts en énergie sont tous différents.

Dans la zone intermédiaire où  $\mathbf{B} \approx \mathbf{S}_{Er}$ , le contraste de chaque yttrium est proche de son maximum. Cette valeur maximale dépend alors de la position angulaire de l'yttrium.

Pour visualiser ce changement de régime dans un système possédant  $N$  ligands, nous pouvons utiliser l'indicateur

$$\Sigma(N) = \sum_{i=1}^N \mathcal{C}_{Y,i}. \quad (7.3)$$

Lorsque cet indicateur augmente, le contraste de chaque yttrium n'est pas nul ; ils sont donc dans le régime de champ faible. En revanche, lorsqu'il sature, les ions sont dans le régime de champ fort. Nos calculs du couplage super-hyperfin nous permettent de prédire les valeurs théoriques de cet indicateur. Il est représenté dans la partie droite de Fig. 7.3 pour différents champs magnétiques orientés à  $\varphi = 45^\circ$ . Dans cette orientation, les deux régimes sont bien distincts. Pour un champ de 100 mT, l'indicateur sature rapidement. Seuls les cinq plus proches ions yttrium sont dans le régime de champ faible. Au contraire, pour des champs inférieurs à 10 mT, au moins 70 ions sont dans ce régime. Il est intéressant de remarquer que pour cette orientation, la pente du régime de champ faible est quasi-linéaire. Ceci montre que la contribution de chaque yttrium est similaire. Dans l'annexe D, nous calculons de manière analytique que la moyenne angulaire de ce contraste vaut environ 0.07, en accord avec le coefficient directeur de 0.08 observé. Par ailleurs, l'absence de marche dans la zone transitoire montre que pour cette configuration et ces champs magnétiques, aucun ion ne possède un contraste maximal élevé.

Pour résumer, il existe deux situations où le couplage optique aux ligands a une grande influence sur une séquence d'écho de photon. Le couplage fort à un unique yttrium semble possible dans la zone de transition  $\mathbf{B} \approx \mathbf{S}_{Er}$ . Cette situation sera étudiée dans la partie suivante. Elle permettra la vérification de nos calculs incluant l'anisotropie de  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$  pour les couplages super-hyperfins. Au contraire, pour des champs magnétiques inférieurs à quelques dizaines de mT, de nombreux ions non-équivalents sont dans le régime de champ faible. Le couplage de cette multitude d'ions a des conséquences importantes sur la décroissance de l'écho. Son effet sera étudié dans la dernière partie de ce chapitre.

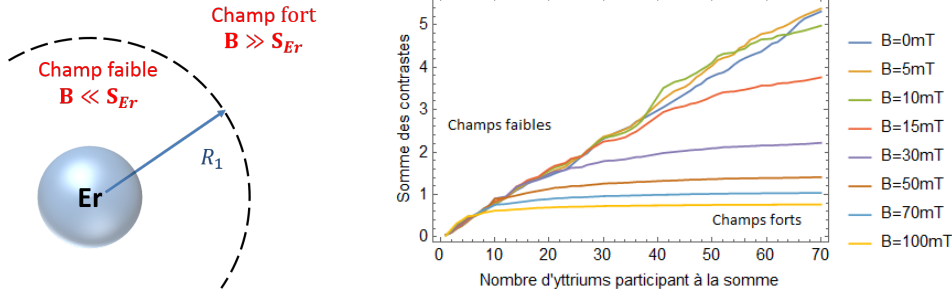


FIGURE 7.3 – Il existe différents régimes de couplage super-hyperfin. Le schéma de gauche représente la localisation des régimes de champ faible et de champ fort. La distance  $R_1$  les délimitant varie avec le champ magnétique extérieur. La figure de droite montre l'évolution de l'indicateur  $\Sigma$  (défini en Eq. (7.3)) en fonction du nombre d'ions considérés. Les différentes courbes sont calculées pour plusieurs normes d'un champ magnétique orienté à  $\varphi = 45^\circ$ .

## 7.2 Mesure d'un couplage super-hyperfin sélectif

L'étude du couplage entre un ion erbium et un unique yttrium de son entourage est permise par l'anisotropie de  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$  et la flexibilité en champ magnétique de la méthode optique. Par le biais d'un d'exemple, je vais maintenant lister l'ensemble des conditions nécessaires à l'étude sélective d'un couplage super-hyperfin. En se plaçant dans ces conditions, je pourrai alors vérifier l'accord entre les caractéristiques de ce couplage isolé et les calculs de la partie 4.4.

### 7.2.1 Conditions nécessaires au couplage sélectif

Parmi tous les ligands yttrium voisins des ions erbium, je vais ici prendre l'exemple du onzième plus proche, noté  $Y_{11}$ . Sa distance relative à l'erbium vaut  $r_Y = 5.46 \text{ \AA}$ . Ses coordonnées cartésiennes dans le repère  $(D_1, D_2, b)$  sont  $(-1.0065, -5.1068, 1.6399)$  [119]. Plusieurs conditions doivent être vérifiées afin de pouvoir étudier le couplage à cet ion particulier.

Premièrement, l'yttrium auquel nous nous intéressons doit être dans la zone de transition entre les régimes de champ fort et de champ faible. Nous avons vu que cette condition est nécessaire à l'obtention d'un contraste de modulation élevé. Quel que soit le champ magnétique appliqué, ceci limite l'étude à un faible nombre d'ions. Lorsque le champ est orienté à  $\varphi = 45^\circ$ , l'ion  $Y_{11}$  est dans cette zone intermédiaire pour une norme comprise entre 50 et 100 mT environ (voir Fig. 7.3). Notons que ceci est identique pour un champ opposé, orienté à  $\varphi = 225^\circ$ . Deuxièmement, l'orientation du champ magnétique doit être choisie afin que l'yttrium considéré soit le seul présentant un contraste de modulation maximal élevé. Ainsi, les modulations des autres ligands ne viendront pas brouiller le signal qui nous importe. La carte à gauche de Fig. 7.4 superpose la position des vingt plus proches ligands à la variation du contraste maximal dans le plan  $(D_1, D_2)$ . Elle est établie pour l'orientation magnétique A et pour un champ orienté à  $\varphi = 225^\circ$ . Nous pouvons noter que seul l'ion d'intérêt (représenté par un point rouge) est situé sur un pic. La valeur de son contraste maximal  $\mathcal{C}_{Y,max} = 0.58$  est ici atteinte pour un champ de 58 mT. Nous retrouvons bien des valeurs identiques (au signe près) à celles présentées à droite de Fig. 7.2 pour  $45^\circ$ .

Nous nous sommes aussi intéressé à l'effet de la seconde orientation magnétique (orientation B). Son moment magnétique étant différent, les fréquences et contrastes de modulation des li-

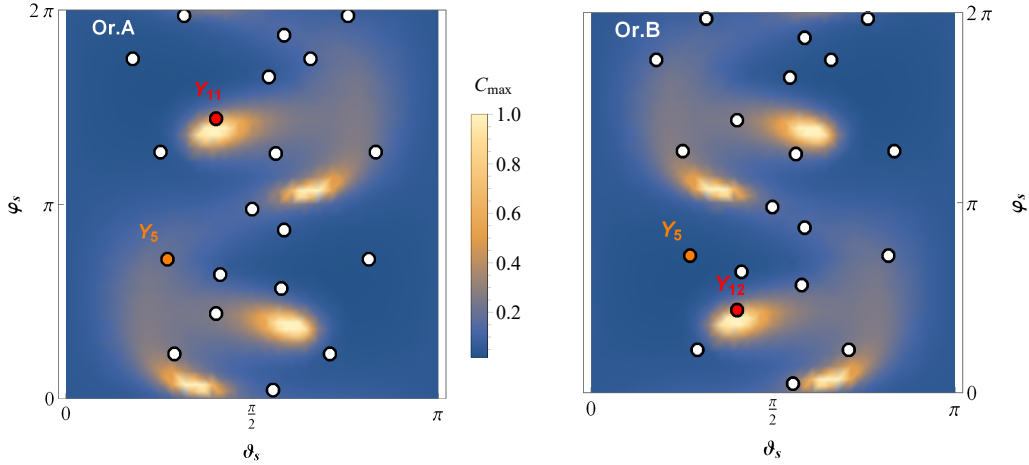


FIGURE 7.4 – Cartes du contraste maximal de modulation pour l’orientation A (à gauche) et pour l’orientation B (à droite) auxquelles sont superposées les positions des vingt plus proches ions yttrium dans le plan  $(D_1, D_2)$ . L’ion représenté en rouge est le onzième ou douzième plus proche voisin pour les orientations A et B respectivement ; ceux en orange sont le cinquième et le douzième plus proche pour l’orientation A.

gands ne sont pas identiques. Il est intéressant de noter que pour cette seconde orientation, un unique yttrium est aussi situé sur un pic du maximum de contraste (à droite de Fig. 7.4). Il s’agit du douzième plus proche yttrium (1.0065, 5.1068, 1.6399), noté  $Y_{12}$ . Cet ion est relié à  $Y_{11}$  par une symétrie  $C_2$  autour de l’axe  $b$ , identique à celle reliant les deux orientations (voir partie 2.1.3).  $Y_{11}$  pour l’orientation A est donc équivalent à  $Y_{12}$  pour l’orientation B. Les modulations de la décroissance que ces deux ions provoquent sont donc identiques.

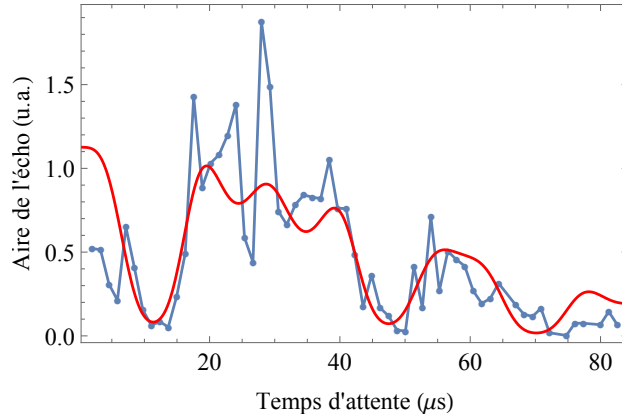


FIGURE 7.5 – Modulation de l’écho de photon observée pour un champ magnétique de 53 mT orienté à  $225^\circ$ . Seul l’yttrium  $Y_{11}$  est efficacement couplé à l’erbium. Il induit néanmoins une double modulation. La courbe rouge représente l’ajustement de Eq. (3.52) à ces données.

La décroissance d’écho de photon obtenue sous un champ de 53 mT orienté à  $225^\circ$  est présentée dans Fig. 7.5. Nous y observons bien une modulation marquée du signal. Elle peut être

correctement ajustée au modèle de Eq. (3.52) où les paramètres  $\mathcal{C}_Y$ ,  $\Delta_Y$ ,  $\Delta'_Y$  et  $T_2$  sont laissés libres. Ils valent ici  $\mathcal{C}_Y = 0.43$ ,  $\Delta_Y = 41$  kHz et  $\Delta'_Y = 34$  kHz. Le temps de cohérence vaut  $T_2 = 186$   $\mu$ s pour un coefficient  $x = 1.9$ .

En se plaçant dans les conditions permettant un couplage super-hyperfin sélectif, nous sommes capables de prédire grossièrement la modulation observée. Même lorsque l'erbium est couplé à un unique yttrium, la décroissance d'écho est doublement modulée. Il existe cependant un cas particulier où une modulation unique peut être observée.

### 7.2.2 Observation d'une modulation unique

En plus des conditions présentées dans la partie précédente, une modulation unique est observable lorsque les éclatements  $\Delta_Y$  et  $\Delta'_Y$  sont approximativement égaux. Eq. (4.32) permet de calculer les écarts théoriques des niveaux super-hyperfins de  $Y_{11}$ , dans l'état fondamental et dans l'état excité. Pour un champ orienté à  $\varphi = 225^\circ$ , leurs plus proches valeurs sont  $\Delta_Y = 46$  kHz et  $\Delta'_Y = 50$  kHz pour un champ de 67 mT.

Fig. 7.6 présente la modulation d'écho obtenue pour ce champ magnétique. L'ajustement du modèle aux données donne cette fois  $\mathcal{C}_Y = 0.42$ ,  $\Delta_Y = 39$  kHz et  $\Delta'_Y = 42$  kHz. Les temps de cohérence et le coefficient de Mims restent inchangés. Les valeurs mesurées sont proches de celles attendues par le calcul. Les différences proviennent des incertitudes sur le champ magnétique ainsi que celles sur la position des ions yttrium.

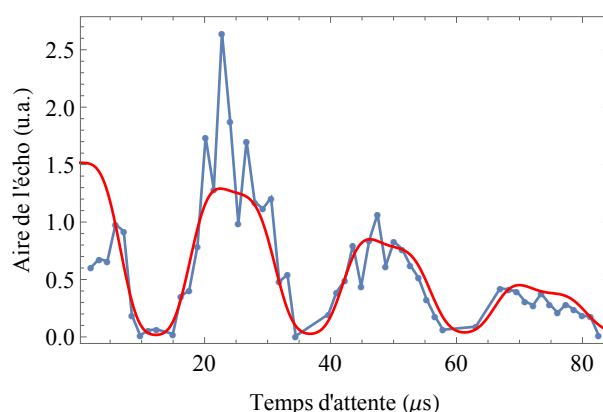


FIGURE 7.6 – Modulation de l'écho de photon observée pour un champ magnétique de 67 mT orienté à  $225^\circ$ . Pour ce champ particulier, la modulation due au couplage sélectif à l'yttrium  $Y_{11}$  est unique. La courbe rouge représente l'ajustement de Eq. (3.52) à ces données.

Notons néanmoins que, dans les deux décroissances présentées, il apparaît des modulations plus rapides. Celles-ci sont dues au cinquième plus proche yttrium, situé à 3.71 Å ainsi qu'au douzième plus proche, pour l'orientation A. Ces deux ligands sont représentés en orange à gauche de Fig. 7.4. Les modulations qu'ils causent présentent théoriquement des contrastes assez faibles, inférieurs à 0.2. Les éclatements super-hyperfins d'environ 300 kHz pour  $Y_5$  sont à l'origine de ces modulations rapides. Comme ces dernières sont peu marquées, elles restent négligeables et ne gênent pas l'étude du couplage qui nous intéresse. Nous avons vu que les conditions menant à la modulation observée dans la figure Fig. 7.6 étaient très particulières. Regardons maintenant son évolution lorsque l'on varie la norme du champ magnétique.



### 7.2.3 Variation des caractéristiques du couplage

Étudions la décroissance d'écho de photon pour plusieurs normes de champ magnétique, tout en restant autour de la configuration optimale présentée dans la partie 7.2.1. Ceci nous permet de mesurer les variations des trois paramètres libres  $\mathcal{C}_Y$ ,  $\Delta_Y$ ,  $\Delta'_Y$  du modèle Eq. (3.52). Leurs variations sont présentées dans Fig. 7.7. Dans cette figure, les lignes continues représentent les évolutions théoriques du contraste de modulation et de l'écart entre les niveaux super-hyperfins de  $Y_{11}$ . L'accord entre ces prédictions et nos données expérimentales est bon, malgré l'incertitude sur la position des ions yttrium.

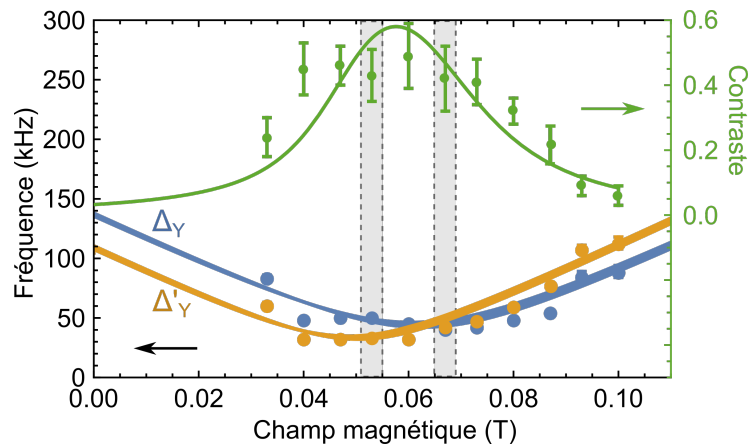


FIGURE 7.7 – Variation des paramètres libres  $\mathcal{C}_Y$ ,  $\Delta_Y$  et  $\Delta'_Y$  (points verts, bleus et jaunes respectivement) du modèle donné en Eq. (3.52). Les lignes continues représentent les valeurs attendues théoriquement. Les zones grisées représentent les champs menant aux modulations présentées dans Fig. 7.5 et Fig. 7.6.

Malgré la complexité du système, nous avons vu que l'anisotropie permet d'étudier l'effet de ligands particuliers par méthode optique. Pour un champ magnétique proche de 60 mT orienté à  $\varphi = 225^\circ$ , un seul yttrium est efficacement couplé à l'erbium. Cette configuration particulière a facilité la vérification des prédictions théoriques de la partie 4.4. Notre compréhension du phénomène de modulation et les calculs associés peuvent alors être transposés à d'autres matrices dopées, actuellement utilisés dans le cadre de l'information quantique [120].

Par ailleurs, nous comprenons maintenant comment analyser les temps de cohérence obtenus entre 15 et 100 mT (voir Fig. 1.1). Dans ces conditions, certains ions yttrium sont dans la zone de transition entre les deux régimes de couplage. Ils modulent la décroissance d'écho. Cet effet doit être inclus dans la formule permettant l'extraction du temps de cohérence. Comme ces mesures ne se font pas forcément dans le cas d'un couplage optique sélectif, les modulations complexes sont à l'origine des grandes incertitudes sur le  $T_2$ . De plus, le temps de cohérence du système semble augmenter dans la zone où ce couplage est sélectif. Cependant, en ne considérant que l'effet de ligands isolés, l'ajustement du modèle n'est pas bon aux temps d'attente  $\tau$  les plus courts (voir Fig. 7.5 et Fig. 7.6). Nous allons voir que ceci est lié à la chute des temps de cohérence pour les champs magnétiques les plus faibles, de l'ordre de la dizaine de mT et en deçà.

### 7.3 Couplage à un bain de spins

Les ions yttrium en régime de champ fort ont un couplage optique à l'erbium quasiment nul. Nous avons vu que ceux dans la zone de transition peuvent occasionnellement présenter un couplage fort, dans certaines conditions très précises. Je vais maintenant terminer ce chapitre en étudiant les ligands dans le régime de champ faible, où  $B \ll S_{Er}$ .

Pour des champs magnétiques inférieurs à 20 mT, l'indicateur  $\Sigma$  montre que de nombreux ligands sont dans ce régime particulier (voir Fig. 7.3). Afin de visualiser l'effet du couplage optique de l'erbium à ce bain de spins nucléaires, regardons comment évoluent les modulations de l'écho lorsque l'on diminue la norme du champ magnétique. Pour un champ orienté à  $\varphi = 45^\circ$ , la partie gauche de Fig. 7.8 présente les modulations mesurées pour des champs autour de 20 mT.

Dans cette figure, nous retrouvons bien des modulations complexes pour les champs les plus forts. Pour  $B = 50$  mT et  $B = 33$  mT respectivement, seuls les 10 et 15 plus proches ligands sont dans un régime de champ faible. Nous avons vu que la modulation de l'intensité de l'écho de photon correspond au produit des modulations dues à chacun de ces ions (voir partie 3.3.2). Leurs contrastes de modulation ne sont pas très élevés mais les écarts en fréquence de leurs niveaux super-hyperfins sont tous différents. De manière isolée, ils induisent une faible modulation de l'écho. Néanmoins, les modulations qu'ils engendrent ont des périodes variées et le recouvrement de leurs creux d'intensité peut induire une modulation marquée. La partie droite de Fig. 7.8 présente le calcul analytique de l'influence des ligands dans le régime de champ faible (réalisé dans l'annexe D). Ce calcul simple et incomplet permet toutefois de retrouver les principales caractéristiques des modulations observées.

Lorsque l'on diminue progressivement la norme du champ, le nombre de ligands dans le régime de champ faible augmente. Leurs éclatements super-hyperfins diminuent mais ils sont distribués sur une plus large zone de fréquence. Dans les modulations expérimentales comme dans celles du calcul analytique, nous observons effectivement que les maxima deviennent de plus en plus faibles et que leurs fréquences diminuent.

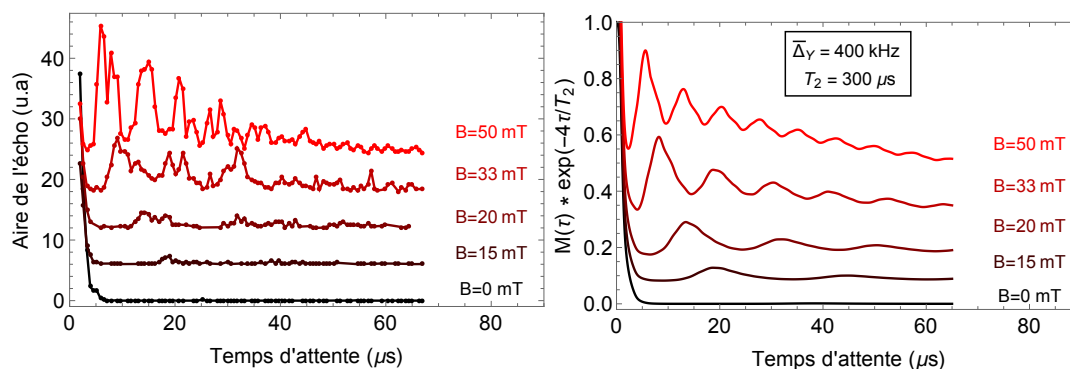


FIGURE 7.8 – À gauche, modulation de la décroissance d'écho de photon pour plusieurs normes du champ magnétique. Toutes les courbes présentées sont issues de mesures sur le cristal dopé à 10 ppm pour un champ orienté à  $45^\circ$ . Ces comportements peuvent être retrouvés grâce à la formule analytique obtenue dans l'annexe D. La période des différentes oscillations correspond aux mesures pour une valeur de l'éclatement moyen  $\bar{\Delta} \simeq 400$  kHz.

Pour les champs inférieurs à 15 mT, plus de 30 ligands sont couplés à l'erbium. Ce nombre suffit à brouiller toute résurgence de l'écho. Seule la décroissance initiale reste visible. Son temps caractéristique correspond alors à la moyenne de l'inverse des différents éclatements super-hyperfins. Pour 15 mT, cette moyenne vaut  $2.1 \mu\text{s}$ , du même ordre que les  $3 \mu\text{s}$  mesurées pour la décroissance initiale. À peu près constants pour des champs inférieurs, ces temps décroissent au delà. Pour les modulations présentées dans Fig. 7.6 et Fig. 7.7, cette décroissance initiale intervient avant les premiers temps mesurés. Elle est à l'origine de la divergence avec l'ajustement du modèle de Eq. (3.52).

Les résultats de Fig. 7.9 nous permettent aussi de vérifier que cette décroissance initiale est indépendante de la concentration en erbium. Les données qui y sont présentées ont été prises sur les cristaux dopés à 10 ppm et 50 ppm, tous deux soumis à un champ de 33 mT orienté à  $\varphi = 135^\circ$ . Nous pouvons vérifier que pour cette orientation, le même brouillage de l'écho se produit aux champs faibles. Seules les fréquences des résurgences diffèrent. Le fait que les décroissances initiales soient identiques pour les deux concentrations prouve qu'elles sont uniquement dues aux ions yttrium.

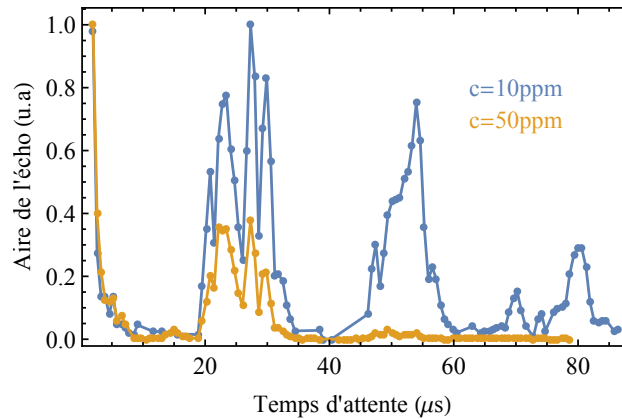


FIGURE 7.9 – Modulation de la décroissance d'écho de photon pour un champ magnétique  $B = 33 \text{ mT}$  orienté à  $\varphi = 135^\circ$ . Les deux courbes présentées sont obtenues pour une concentration en erbium de 10 ppm (bleu) et 50 ppm (orange).

L'étude du couplage d'un ion erbium au bain de spins qui l'entoure nous permet de comprendre le palier des temps de cohérence observé pour les champs les plus faibles (voir Fig. 1.1). Les modulations causées par le grand nombre d'ions yttrium dans le régime de champ faible ont des fréquences différentes. Leur produit brouille entièrement le signal d'écho, mis à part la décroissance initiale. Pour des champs magnétiques inférieurs à  $\sim 15 \text{ mT}$ , c'est donc le temps caractéristique de cette décroissance qui correspond à la cohérence effective du système.

#### Résumé du chapitre

- L'observation des modulations d'écho de photon est une technique adaptée à l'étude de différents régimes de couplage entre erbium et yttrium.
- Pour certains champs magnétiques, l'anisotropie permet un couplage sélectif entre l'erbium et un yttrium particulier.
- Le couplage au bain de spins nucléaires détruit quant à lui la cohérence pour des champs inférieurs à quelques dizaines de mT.

# Conclusion générale

Avec une transition aux longueurs d'ondes Télécom, la matrice dopée  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$  est bien adaptée aux communications quantiques. Cependant, les quelques expériences de stockage quantique dans ce matériau n'offrent pas des résultats à la hauteur de ceux obtenus avec d'autres plateformes [38]. L'efficacité du stockage est limitée par celle du pompage optique nécessaire à la préparation du système [37, 100] et sa faible durée dépend du temps de cohérence du milieu. L'objectif de ces travaux de thèse était de mieux comprendre les phénomènes qui limitent ces caractéristiques dans notre matériau complexe.

Pour répondre à cette problématique, nous avons travaillé dans la zone des faibles champs magnétiques, inférieurs à 500 mT. Cette zone adaptée aux protocoles de stockage restait pourtant peu étudiée. Pour une température de 2 K et des concentrations en ions dopants de l'ordre de la dizaine de ppm, principalement deux types d'interactions interviennent lors de la mesure de la cohérence du système : les basculements réciproques (*flip-flops*) entre les spins électroniques des ions erbium dopants, ainsi que l'interaction super-hyperfine entre ces spins et les spins nucléaires des ligands yttrium.

Nous avons tout d'abord vérifié que la réponse du système à un champ magnétique extérieur dépend de l'orientation de ce dernier. Le spin effectif est alors caractérisé par un tenseur  $g$  anisotrope. Dans l'état fondamental, sa valeur varie entre 2 et 12 lorsque le champ balaye le plan  $(D_1, D_2)$ . Cette anisotropie se traduit par un éclatement Zeeman et un rapport de branchement tous deux variables selon l'orientation du champ.

En décrivant les équations de Bloch-optique relatives à notre système, nous avons compris comment mesurer les couplages qui nous intéressent. Lorsque les phonons sont négligeables, les basculements réciproques limitent le temps de vie des niveaux de spin. Leurs taux peuvent alors être mesurés en étudiant la relaxation du système, après excitation optique. Les couplages super-hyperfins sont quant à eux observables par le biais des modulations qu'ils induisent sur la décroissance d'un signal d'écho de photon. Les caractéristiques de ces modulations sont directement liées aux éclatements des niveaux super-hyperfins ainsi qu'à leur rapport de branchement.

Un apport original de cette thèse est l'inclusion de l'anisotropie de  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$  dans le calcul de ces deux couplages. En utilisant le modèle de la règle d'or de Fermi, nous avons été capables d'estimer le taux de basculement des spins des ions erbium. Nous avons prédit que ce taux varie de plus de trois ordres de grandeur selon l'orientation du champ magnétique appliqué. Par ailleurs, nous avons aussi pris en compte l'anisotropie dans le calcul des états propres super-hyperfins. Celle-ci modifie et réduit globalement le contraste des modulations qu'ils provoquent, exception faite pour quelques orientations relatives entre erbium et yttrium.

Nous avons ensuite souhaité vérifier ces calculs par l'expérience. L'anisotropie complexifie cette vérification pour les basculements réciproques car les temps de vie de spin à mesurer sont très différents. Selon la dynamique attendue, nous avons compris qu'il était nécessaire d'alterner entre deux techniques d'excitation. Le creusement de trou spectral *SHB* permet de mesurer le taux

des basculements réciproques lorsque les temps de vie de spin sont longs devant le temps de vie optique. La technique d'excitation transitoire doit être utilisée dans le cas inverse. En revanche, l'anisotropie de  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$  permet l'observation d'un couplage super-hyperfin sélectif. En effet, elle réduit le nombre de ligands efficacement couplés à l'erbium. Toutefois, les modulations causées par ces couplages ne sont observables que pour des champs particuliers, compris entre la dizaine et la centaine de mT. En utilisant ces différentes méthodes optiques, nous avons pu vérifier la validité de nos calculs.

Pour de faibles taux de dopage, nos mesures montrent que les basculements réciproques sont bel et bien fortement anisotropes. Nous observons que leur taux est maximal lorsque le champ est appliqué perpendiculairement à l'axe principal du tenseur  $g$  de l'état fondamental. Dans le plan  $(D_1, D_2)$  de  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ , cette situation se présente pour un champ orienté à  $\varphi = 25^\circ$  environ. À l'inverse, le taux de basculement est minimal pour un angle proche de  $\varphi = 130^\circ$ . Par ailleurs, ces basculements sont globalement proportionnels au carré de la concentration en erbium et diminuent lorsque la largeur inhomogène de spin augmente.

La position du maximum du taux de basculement de spin se révèle être une limite importante de notre système. Afin d'améliorer l'efficacité du pompage optique, nous pourrions orienter le champ magnétique extérieur à  $\varphi = 20^\circ$ , de manière à ce que le rapport de branchement entre les niveaux de spin soit optimal (voir Fig. 2.10) [82]. Cependant, nous serions alors dans la zone où les temps de vie de spin sont les plus faibles et ceci réduirait drastiquement l'efficacité du pompage optique (voir Eq. (3.42)).

Nous avons donc compris la raison pour laquelle il est nécessaire de travailler sous des champs orientés autour de  $130^\circ$  dans  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ . L'inévitable mauvais branchement optique pourrait alors être compensé par des basculements de spins provoqués par excitation radio-fréquences [82]. Notre compréhension de cette interaction dipolaire peut aussi être utile à d'autres applications. Les différentes transitions de  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$  sont adaptées à la conversion opto-RF nécessaire à l'intégration de *qubits* supraconducteurs au sein de réseaux quantiques [121]. Le régime de couplage fort entre ces deux plateformes nécessite un couplage important au champ RF. Pour atteindre ce régime, le champ magnétique statique doit donc être appliqué perpendiculairement aux grandes valeurs du tenseur  $g$  [30, 39]. Notre travail montre que ceci ne peut se faire sans subir l'augmentation des basculements de spin. Nous donnons les éléments nécessaires à la recherche d'un compromis, pouvant se trouver en dehors du plan  $(D_1, D_2)$ .

Finalement, nous avons aussi vérifié l'effet de l'anisotropie sur les couplages super-hyperfins grâce à la flexibilité en champ magnétique de notre méthode optique. En travaillant sous un champ bien particulier,  $B \approx 60$  mT orienté à  $\varphi = 225^\circ$ , nous avons pu observer la modulation causée par un unique couplage entre erbium et yttrium. L'étude de ses variations nous a permis de valider nos calculs. Nous avons aussi montré qu'au contraire, de nombreux ions yttrium sont couplés à l'erbium pour des champs magnétiques de l'ordre du mT. Ceci détruit le signal d'écho et limite la cohérence optique à quelques  $\mu\text{s}$ .

Avec le champ magnétique de 1.5 mT utilisé par B. Lauritzen [37], même si le rapport de branchement avait été bon et le pompage optique efficace, ce temps court aurait limité la durée du stockage. Plusieurs solutions pourraient potentiellement empêcher cette décohérence rapide. La première idée serait de rallonger les impulsions d'excitation de manière à diminuer leur bande spectrale. Ceci permettrait de supprimer la modulation provoquée par les ligands les plus proches, dont les éclatements super-hyperfins sont les plus grands. Malgré tout, la plus simple façon d'augmenter la cohérence du système reste d'utiliser des champs magnétiques un peu plus élevés, supérieurs à 15 mT. De plus, il apparaît que lorsque le couplage est fort pour certains de ces champs, le temps de cohérence augmente (voir Fig. 1.1). Il serait donc important de comprendre

et quantifier les mécanismes à l'origine de cette stabilisation du système.

Notre compréhension de l'influence de l'anisotropie du système sur les deux interactions dipolaires étudiées pourrait permettre d'avancer vers la réalisation d'une mémoire quantique efficace, aux longueurs d'ondes Télécom. En utilisant les niveaux super-hyperfins, l'information peut être transférée de l'erbium aux spins nucléaires des ions yttrium [108]. Pour certaines orientations spécifiques, le couplage sélectif avec un unique yttrium donne accès à un système en  $\Lambda$  basé sur les niveaux super-hyperfins bien branché optiquement. Il faudrait de plus qu'une telle orientation coïncide avec une zone où le taux de basculement des ions erbium est faible. Il est en effet raisonnable de penser que ce phénomène est la principale limite à la cohérence des niveaux considérés. Les potentiels problèmes liés au faible éclatement entre ces niveaux, inférieur à l'élargissement inhomogène des spins de l'erbium, pourraient être éliminés en travaillant avec un unique ion dopant. Il serait alors nécessaire d'exalter son excitation en utilisant des nano-cavités optiques [31, 32].



## Annexe A

# Écho de photon pour un système à trois niveaux

Considérons ici un système à trois niveaux. Supposons qu'une impulsion assez large spectralement excite simultanément deux niveaux de l'état fondamental de ce système. L'interaction lumière-matière est alors décrite par les équations de Bloch-optique. Ces équations, facilement calculées à partir de l'équation de Von Neumann Eq. (3.8) s'écrivent

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{d\tilde{\rho}_{ff}}{dt} = i\frac{\tilde{\Omega}}{2}\alpha(\tilde{\rho}_{fe} - \tilde{\rho}_{ef})(t) \\ \frac{d\tilde{\rho}_{ss}}{dt} = i\frac{\tilde{\Omega}}{2}\beta(\tilde{\rho}_{se} - \tilde{\rho}_{es})(t) \\ \frac{d\tilde{\rho}_{ee}}{dt} = -i\frac{\tilde{\Omega}}{2}[\alpha(\tilde{\rho}_{fe} - \tilde{\rho}_{ef})(t) + \beta(\tilde{\rho}_{se} - \tilde{\rho}_{es})(t)] \\ \frac{d\tilde{\rho}_{fe}}{dt} = -\left(i\Delta + \frac{1}{T_2}\right)\tilde{\rho}_{fe}(t) + i\frac{\tilde{\Omega}}{2}[\alpha(\tilde{\rho}_{ff} - \tilde{\rho}_{ee})(t) + \beta\tilde{\rho}_{fs}(t)] \\ \frac{d\tilde{\rho}_{se}}{dt} = -\left(i(\Delta + \Delta_{sf}) + \frac{1}{T_2}\right)\tilde{\rho}_{se}(t) + i\frac{\tilde{\Omega}}{2}[\beta(\tilde{\rho}_{ss} - \tilde{\rho}_{ee})(t) + \alpha\tilde{\rho}_{sf}(t)] \\ \frac{d\tilde{\rho}_{fs}}{dt} = i\Delta_{sf}\tilde{\rho}_{fs}(t) + i\frac{\tilde{\Omega}}{2}[\beta\tilde{\rho}_{fe}(t) - \alpha\tilde{\rho}_{es}(t)]. \end{array} \right. \quad (\text{A.1})$$

De la même manière que pour un système à deux niveaux, nous souhaitons résoudre ces équations dans le cas perturbatif. Nous effectuons un développement de Taylor à l'ordre 2. Les équations



de Bloch-optique en régime perturbatif ont pour solution

$$\left\{ \begin{array}{l}
 \tilde{\rho}_{ff}(t) = \tilde{\rho}_{ff}(0) + i\frac{\mathcal{A}}{2}\alpha(\tilde{\rho}_{fe} - \tilde{\rho}_{ef})(0) - \frac{\mathcal{A}^2}{4} \left( \alpha^2(\tilde{\rho}_{ff} - \tilde{\rho}_{ee})(0) + \frac{\alpha\beta}{2}(\tilde{\rho}_{fs} - \tilde{\rho}_{sf})(0) \right) + \mathcal{O}(\mathcal{A}^2) \\
 \tilde{\rho}_{ss}(t) = \tilde{\rho}_{ss}(0) + i\frac{\mathcal{A}}{2}\beta(\tilde{\rho}_{se} - \tilde{\rho}_{es})(0) - \frac{\mathcal{A}^2}{4} \left( \beta^2(\tilde{\rho}_{ss} - \tilde{\rho}_{ee})(0) - \frac{\alpha\beta}{2}(\tilde{\rho}_{fs} - \tilde{\rho}_{sf})(0) \right) + \mathcal{O}(\mathcal{A}^2) \\
 \tilde{\rho}_{ee}(t) = \tilde{\rho}_{ee}(0) - i\frac{\mathcal{A}}{2}(\alpha(\tilde{\rho}_{fe} - \tilde{\rho}_{ef})(0) + \beta(\tilde{\rho}_{se} - \tilde{\rho}_{es})(0)) \\
 \quad + \frac{\mathcal{A}^2}{4}(\alpha^2(\tilde{\rho}_{ff} - \tilde{\rho}_{ee})(0) + \beta^2(\tilde{\rho}_{ss} - \tilde{\rho}_{ee})(0)) + \mathcal{O}(\mathcal{A}^2) \\
 \tilde{\rho}_{fe}(t) = \tilde{\rho}_{fe}(0)e^{-\left(i\Delta + \frac{1}{T_2}\right)t} + i\frac{\mathcal{A}}{2}(\alpha(\tilde{\rho}_{ff} - \tilde{\rho}_{ee})(0) + \beta\tilde{\rho}_{fs}(0)) \\
 \quad - \frac{\mathcal{A}^2}{4} \left( \alpha^2(\tilde{\rho}_{fe} - \tilde{\rho}_{ef})(0) + \frac{\alpha\beta}{2}(\tilde{\rho}_{se} - \tilde{\rho}_{es})(0) + \frac{\beta}{2}(\beta\tilde{\rho}_{fs}(0) - \alpha\tilde{\rho}_{es}(0)) \right) + \mathcal{O}(\mathcal{A}^2) \\
 \tilde{\rho}_{se}(t) = \tilde{\rho}_{se}(0)e^{-\left(i(\Delta + \Delta_{sf}) + \frac{1}{T_2}\right)t} + i\frac{\mathcal{A}}{2}(\beta(\tilde{\rho}_{ss} - \tilde{\rho}_{ee})(0) + \alpha\tilde{\rho}_{sf}(0)) \\
 \quad - \frac{\mathcal{A}^2}{4} \left( \beta^2(\tilde{\rho}_{se} - \tilde{\rho}_{es})(0) + \frac{\alpha\beta}{2}(\tilde{\rho}_{fe} - \tilde{\rho}_{ef})(0) + \frac{\alpha}{2}(\alpha\tilde{\rho}_{se}(0) - \beta\tilde{\rho}_{ef}(0)) \right) + \mathcal{O}(\mathcal{A}^2) \\
 \tilde{\rho}_{fs}(t) = \tilde{\rho}_{fs}(0)e^{i\Delta_{sf}t} + i\frac{\mathcal{A}}{2}(\beta\tilde{\rho}_{fe}(0) - \alpha\tilde{\rho}_{es}(0)) \\
 \quad - \frac{\mathcal{A}^2}{8}((\alpha^2 + \beta^2)\tilde{\rho}_{fs}(0) + \alpha\beta(\tilde{\rho}_{ff} + \tilde{\rho}_{ss} - 2\tilde{\rho}_{ee}(0))) + \mathcal{O}(\mathcal{A}^2)
 \end{array} \right. \quad (\text{A.2})$$

Dans cette expression,  $\mathcal{A}$  correspond à l'aire de l'impulsion. Cherchons maintenant quel sera l'effet de la séquence présentée dans Fig. 3.4 sur le milieu. Je rappelle que ces impulsions courtes peuvent être assimilées à des pics de Dirac. Nous notons  $\tau^-$  et  $\tau^+$  les temps infinitésimalement proches correspondant au début et à la fin de la seconde impulsion. À l'état initial, les atomes sont également répartis dans les deux niveaux du fondamental. Les populations valent donc  $\tilde{\rho}_{ff}(0) = \tilde{\rho}_{ss}(0) = \frac{1}{2}$ . La première impulsion d'aire  $\mathcal{A}_1$  va agir sur les cohérences et les populations suivant Eq. (A.2). Après cette impulsion, les cohérences évoluent librement pendant le temps  $\tau$ . L'état du système juste avant la seconde impulsion s'écrit alors

$$\left\{ \begin{array}{l}
 \tilde{\rho}_{ff}(t = \tau^-) = \frac{1}{2} - \alpha^2 \frac{\mathcal{A}_1^2}{8} \\
 \tilde{\rho}_{ss}(t = \tau^-) = \frac{1}{2} - \beta^2 \frac{\mathcal{A}_1^2}{8} \\
 \tilde{\rho}_{ee}(t = \tau^-) = (\alpha^2 + \beta^2) \frac{\mathcal{A}_1^2}{8} \\
 \tilde{\rho}_{fe}(t = \tau^-) = i\alpha \frac{\mathcal{A}_1}{4} e^{-\left(i\Delta + \frac{1}{T_2}\right)\tau} \\
 \tilde{\rho}_{se}(t = \tau^-) = i\beta \frac{\mathcal{A}_1}{4} e^{-\left(i(\Delta + \Delta_{sf}) + \frac{1}{T_2}\right)\tau} \\
 \tilde{\rho}_{fs}(t = \tau^-) = -\alpha\beta \frac{\mathcal{A}_1}{8} e^{i\Delta_{sf}\tau}.
 \end{array} \right. \quad (\text{A.3})$$

Étudions maintenant l'effet de la seconde impulsion d'aire  $\mathcal{A}_2$ . Pour connaître l'état du système juste après cette impulsion, en  $t = \tau^+$ , remplaçons les conditions initiales de Eq. (A.2) par les valeurs trouvées en  $t = \tau^-$  dans le système ci-dessus. Nous trouvons alors l'expression des

cohérences à la fin de la seconde impulsion

$$\left\{ \begin{array}{l} \tilde{\rho}_{fe}(t = \tau^+) = i\alpha \frac{\mathcal{A}_1}{4} e^{-\left(i\Delta + \frac{1}{T_2}\right)\tau} + i\alpha \frac{\mathcal{A}_2}{4} \left[ 1 - \frac{\mathcal{A}_1^2}{4} \left( 2\alpha^2 + \beta^2 (1 + e^{\left(i\Delta_{sf} - \frac{1}{T_2}\right)\tau}) \right) \right] \\ \quad - \frac{\mathcal{A}_2^2}{4} \left[ i\alpha^3 \frac{\mathcal{A}_1}{4} \left( e^{-\left(i\Delta + \frac{1}{T_2}\right)\tau} + e^{\left(i\Delta - \frac{1}{T_2}\right)\tau} \right) \right. \\ \quad \quad \left. + i\alpha\beta^2 \frac{\mathcal{A}_1}{8} \left( e^{-\left(i(\Delta + \Delta_{sf}) + \frac{1}{T_2}\right)\tau} + 2e^{\left(i(\Delta + \Delta_{sf}) - \frac{1}{T_2}\right)\tau} + e^{-\left(i\Delta + \frac{1}{T_2}\right)\tau} \right) \right] \\ \tilde{\rho}_{se}(t = \tau^+) = i\beta \frac{\mathcal{A}_1}{4} e^{-\left(i(\Delta + \Delta_{sf}) + \frac{1}{T_2}\right)\tau} + i\beta \frac{\mathcal{A}_2}{4} \left[ 1 - \frac{\mathcal{A}_1^2}{4} \left( \alpha^2 (1 + e^{-\left(i\Delta_{sf} + \frac{1}{T_2}\right)\tau}) + 2\beta^2 \right) \right] \\ \quad - \frac{\mathcal{A}_2^2}{4} \left[ i\beta^3 \frac{\mathcal{A}_1}{4} \left( e^{-\left(i(\Delta + \Delta_{sf}) + \frac{1}{T_2}\right)\tau} + e^{\left(i(\Delta + \Delta_{sf}) - \frac{1}{T_2}\right)\tau} \right) \right. \\ \quad \quad \left. + i\alpha^2 \beta \frac{\mathcal{A}_1}{8} \left( e^{-\left(i\Delta + \frac{1}{T_2}\right)\tau} + 2e^{\left(i\Delta - \frac{1}{T_2}\right)\tau} + e^{-\left(i(\Delta + \Delta_{sf}) - \frac{1}{T_2}\right)\tau} \right) \right] \end{array} \right. \quad (\text{A.4})$$

Si nous multiplions ces deux exponentielles par les facteurs d'évolution libre,  $e^{-\left(i\Delta + \frac{1}{T_2}\right)(t-\tau)}$  pour  $\tilde{\rho}_{fe}$  et  $e^{-\left(i(\Delta + \Delta_{sf}) + \frac{1}{T_2}\right)(t-\tau)}$  pour  $\tilde{\rho}_{se}$ , nous trouvons pour un temps  $t$  quelconque

$$\left\{ \begin{array}{l} \tilde{\rho}_{fe}(t = \tau^+) = i\alpha \frac{\mathcal{A}_1}{4} e^{-\left(i\Delta + \frac{1}{T_2}\right)t} \\ \quad + i\alpha \frac{\mathcal{A}_2}{4} \left[ 1 - \frac{\mathcal{A}_1^2}{4} \left( 2\alpha^2 + \beta^2 (1 + e^{\left(i\Delta_{sf} - \frac{1}{T_2}\right)\tau}) \right) \right] e^{-\left(i\Delta + \frac{1}{T_2}\right)(t-\tau)} \\ \quad - \frac{\mathcal{A}_2^2}{4} \left[ i\alpha^3 \frac{\mathcal{A}_1}{4} \left( e^{-\left(i\Delta + \frac{1}{T_2}\right)t} + e^{i\Delta(2\tau-t)} e^{-\frac{t}{T_2}} \right) \right. \\ \quad \quad \left. + i\alpha\beta^2 \frac{\mathcal{A}_1}{8} \left( e^{-\left(i\Delta + \frac{1}{T_2}\right)t} e^{-i\Delta_{sf}\tau} + 2e^{i\Delta(2\tau-t)} e^{i\Delta_{sf}\tau} e^{-\frac{t}{T_2}} + e^{-\left(i\Delta + \frac{1}{T_2}\right)t} \right) \right] \\ \tilde{\rho}_{se}(t = \tau^+) = i\beta \frac{\mathcal{A}_1}{4} e^{-\left(i(\Delta + \Delta_{sf}) + \frac{1}{T_2}\right)t} \\ \quad + i\beta \frac{\mathcal{A}_2}{4} \left[ 1 - \frac{\mathcal{A}_1^2}{4} \left( \alpha^2 (1 + e^{-\left(i\Delta_{sf} + \frac{1}{T_2}\right)\tau}) + 2\beta^2 \right) \right] e^{-\left(i(\Delta + \Delta_{sf}) + \frac{1}{T_2}\right)(t-\tau)} \\ \quad - \frac{\mathcal{A}_2^2}{4} \left[ i\beta^3 \frac{\mathcal{A}_1}{4} \left( e^{-\left(i(\Delta + \Delta_{sf}) + \frac{1}{T_2}\right)t} + e^{i(\Delta + \Delta_{sf})(2\tau-t)} e^{-\frac{t}{T_2}} \right) \right. \\ \quad \quad \left. + i\alpha^2 \beta \frac{\mathcal{A}_1}{8} \left( e^{-\left(i\Delta + \frac{1}{T_2}\right)t} e^{-i\Delta_{sf}(t-\tau)} \right. \right. \\ \quad \quad \quad \left. \left. + 2e^{i\Delta(2\tau-t)} e^{-i\Delta_{sf}(t-\tau)} e^{-\frac{t}{T_2}} + e^{-\left(i(\Delta + \Delta_{sf}) - \frac{1}{T_2}\right)t} \right) \right] \end{array} \right. \quad (\text{A.5})$$

Comme dans le cas à deux niveaux, l'intégrale sur les différents déphasages de l'élargissement inhomogène annule la majorité des termes. Au temps  $t = 2\tau$ , les seuls termes contribuant à l'écho de photon sont les suivants

$$\left\{ \begin{array}{l} -i\alpha \frac{\mathcal{A}_1 \mathcal{A}_2^2}{16} e^{-\frac{2\tau}{T_2}} (\alpha^2 + \beta^2 e^{i\Delta_{sf}\tau}) \\ -i\beta \frac{\mathcal{A}_1 \mathcal{A}_2^2}{16} e^{-\frac{2\tau}{T_2}} (\beta^2 + \alpha^2 e^{-i\Delta_{sf}\tau}) \end{array} \right. \quad (\text{A.6})$$

L'intensité émise par chaque classe d'ions est égale au carré de la moyenne de leurs moments dipolaires. D'après les propriétés de la matrice densité (Eq. (B.3)), nous pouvons écrire que

$$\begin{aligned} \mathcal{I}(t) &= \left\| \int_{\Delta} \text{Tr} [\rho d] d\Delta \right\|^2 = \left\| \int_{\Delta} \alpha (\rho_{fe} + \rho_{ef}) + \beta (\rho_{se} + \rho_{es}) d\Delta \right\|^2 \\ &= \left\| \int_{\Delta} 2\text{Re} [(\alpha \tilde{\rho}_{fe} + \beta \tilde{\rho}_{se}) e^{i2\pi\nu t}] d\Delta \right\|^2. \end{aligned} \quad (\text{A.7})$$

Pour les mêmes arguments que ceux donnés dans le cas d'un système à deux niveaux, l'intégrale sur les déphasages est équivalente à un pic de Dirac en  $t = 2\tau$  pour les termes de Eq. (A.6). Ainsi, en remplaçant leurs expressions dans Eq. (A.7), nous obtenons

$$\begin{aligned} \mathcal{I}(2\tau) &\propto (\mathcal{A}_2^2 \mathcal{A}_1)^2 [\alpha^4 + \beta^4 + 2\alpha^2\beta^2 \cos(\Delta_{sf}\tau)]^2 e^{-\frac{4\tau}{T_2}} \\ &\propto (\mathcal{A}_2^2 \mathcal{A}_1)^2 [(\alpha^2 + \beta^2)^2 - 2\alpha^2\beta^2 (1 - \cos(\Delta_{sf}\tau))]^2 e^{-\frac{4\tau}{T_2}} \\ &\propto (\mathcal{A}_2^2 \mathcal{A}_1)^2 \left[ 1 - \frac{2R}{(1+R)^2} (1 - \cos(\Delta_{sf}\tau)) \right]^2 e^{-\frac{4\tau}{T_2}} \\ &\propto (\mathcal{A}_2^2 \mathcal{A}_1)^2 \left[ 1 - \frac{\mathcal{C}}{2} (1 - \cos(\Delta_{sf}\tau)) \right]^2 e^{-\frac{4\tau}{T_2}}. \end{aligned} \quad (\text{A.8})$$

Dans l'expression finale apparaît ce que nous définissons comme le contraste de modulation de l'écho de photon

$$\mathcal{C} = \frac{4R}{(1+R)^2} \quad \text{où} \quad R = \frac{\beta^2}{\alpha^2}. \quad (\text{A.9})$$

Dans Eq. (A.8), nous retrouvons bien l'expression d'une décroissance exponentielle dont le temps caractéristique est déterminé par le temps de cohérence. Le terme entre crochets correspond quant à lui à une modulation de cette décroissance dépendante du temps  $\tau$  ainsi que du rapport de branchement. L'aire de l'écho de photon est modulée lorsque le temps d'attente varie. La période de cette modulation est égal à l'écart en fréquence entre les deux niveaux de l'état fondamental.

## Annexe B

# Calcul de la moyenne du couplage carré entre ions erbium

Cette annexe est dédiée au calcul du taux de basculement réciproque des spins électroniques de notre système. Le passage de la somme discrète à une moyenne dans l'espace nous a permis d'obtenir l'équation

$$\mathcal{R} = \frac{2\pi}{\hbar} \left( \frac{\mu_0}{4\pi} h^2 \right)^2 \times \Xi(\bar{g}, \mathbf{B}) \times \sum_{j \in \{|-\rangle\}} \frac{1}{r_{ij}^6}. \quad (\text{B.1})$$

Rappelons que  $\sum_{j \in \{|-\rangle\}} \frac{1}{r_{ij}^6}$  est une somme sur les distances uniquement tandis que  $\Xi(\bar{g}, \mathbf{B})$  est une moyenne angulaire. Calculons ces deux termes séparément.

### B.1 Moyenne radiale

La somme radiale dépend de l'arrangement des spins de l'état  $|-\rangle$  par rapport à l'erbium considéré. Supposons que, malgré les défauts de la matrice, les spins sont disposés selon un réseau cubique de maille  $2a = 2n_{Er}^{-\frac{1}{3}}$  où  $n_{Er}$  représente la densité de ces spins (voir Fig. 4.3 dans le corps du texte).

- Les six plus proches voisins sont situés à une distance  $a$  de l'erbium central. Leur contribution à la somme sur les distances est donc de  $\sum_{j=1}^6 \frac{1}{r_{ij}^6} = 6 \times \frac{1}{a^6} = 6n_{Er}^2$ .
- Les douze second voisins sont quant à eux distants de  $\sqrt{2}a$ . Leur contribution est  $\sum_{j=7}^{19} \frac{1}{r_{ij}^6} = \frac{3}{2}n_{Er}^2$ .
- Les voisins à  $\sqrt{3}a$  sont au nombre de huit et contribuent comme  $\sum_{j=20}^{28} \frac{1}{r_{ij}^6} = \frac{8}{27}n_{Er}^2$ .

Cette somme converge finalement aux alentours de la dixième rangée d'ion vers la valeur  $8.4 n_{Er}^2$ .

## B.2 Moyenne angulaire

Dans cette partie, nous calculons la moyenne angulaire du carré du couplage entre deux spins électroniques. Le calcul se fait sur les vecteurs propres de l'hamiltonien Zeeman électronique, exprimés à l'aide des coordonnées du champ équivalent. Ils s'écrivent

$$\begin{aligned} |+\rangle &= \cos \frac{\Theta}{2} |f, +\rangle + \sin \frac{\Theta}{2} e^{i\Phi} |f, -\rangle \\ |-\rangle &= -\sin \frac{\Theta}{2} e^{-i\Phi} |f, +\rangle + \cos \frac{\Theta}{2} |f, -\rangle \end{aligned} \quad (\text{B.2})$$

Le couplage dont nous souhaitons calculer la moyenne est le suivant

$$\Xi(\bar{g}, \mathbf{B}) = \left\langle \left( \underbrace{\| \langle -+ | \boldsymbol{\mu}_{Er,i} \cdot \boldsymbol{\mu}_{Er,j} | +-\rangle \|}_M - 3 \underbrace{\| \langle -+ | (\boldsymbol{\mu}_{Er,i} \cdot \hat{\mathbf{r}}) (\boldsymbol{\mu}_{Er,j} \cdot \hat{\mathbf{r}}) | +-\rangle \|}_N \right)^2 \right\rangle_{\theta, \phi}. \quad (\text{B.3})$$

$i$  et  $j$  représentent les deux spins couplés. Dans un premier temps, calculons l'expression des termes  $M$  et  $N$  sur les vecteurs propres des état Zeeman donnés en Eq. (B.2). Grâce à cela, nous verrons qu'il est nécessaire de calculer la moyenne angulaire du carré du couplage et non pas celle du couplage simple. Pour ne pas alourdir le calcul, considérons que  $\mu_B = 1$ .

### B.2.1 Expression de $N$

Nous travaillons dans le repère où le moment magnétique de l'état fondamental est diagonal. Son expression est donnée dans le corps du texte en Eq. (4.6). Pour calculer l'expression de  $N$ , nous avons besoin d'introduire le vecteur unitaire définissant l'orientation entre les deux spins

$$\hat{\mathbf{r}} = \begin{pmatrix} \sin \theta \cos \phi \\ \sin \theta \sin \phi \\ \cos \theta \end{pmatrix} \quad (\text{B.4})$$

où  $\theta$  et  $\phi$  sont les coordonnées sphériques dans le repère diagonal. En utilisant les opérateurs d'échelle  $S_+$  et  $S_-$  nous pouvons écrire

$$\boldsymbol{\mu}_{Er} \cdot \hat{\mathbf{r}} = (g_X \cos \phi \sin \theta - ig_Y \sin \phi \sin \theta) \frac{S_+}{2} + (g_X \cos \phi \sin \theta + ig_Y \sin \phi \sin \theta) \frac{S_-}{2} + g_Z \cos \theta S_Z \quad (\text{B.5})$$

et donc

$$\begin{aligned} \boldsymbol{\mu}_{Er} \cdot \hat{\mathbf{r}} |+\rangle &= (g_X \cos \phi \sin \theta - ig_Y \sin \phi \sin \theta) \frac{\sin \frac{\Theta}{2} e^{i\Phi}}{2} |f, +\rangle \\ &+ (g_X \cos \phi \sin \theta + ig_Y \sin \phi \sin \theta) \frac{\cos \frac{\Theta}{2}}{2} |f, -\rangle \\ &+ \frac{g_Z \cos \theta}{2} \left( \cos \frac{\Theta}{2} |f, +\rangle - \sin \frac{\Theta}{2} e^{i\Phi} |f, -\rangle \right). \end{aligned} \quad (\text{B.6})$$

En multipliant ensuite par le conjugué des vecteurs propres, nous obtenons

$$\begin{aligned} \langle + | \boldsymbol{\mu}_{Er} \cdot \hat{\mathbf{r}} | + \rangle &= \frac{1}{2} (\sin \Theta \text{Re}[T] + g_Z \cos \theta \cos \Theta) \\ \langle - | \boldsymbol{\mu}_{Er} \cdot \hat{\mathbf{r}} | + \rangle &= \frac{e^{i\phi}}{2} \left( T \cos^2 \frac{\Theta}{2} - T^* \sin^2 \frac{\Theta}{2} - g_Z \cos \theta \sin \Theta \right) \end{aligned} \quad (\text{B.7})$$

avec  $T = (g_X \cos \phi \sin \theta + i g_Y \sin \phi \sin \theta) e^{-i\Phi}$ .

Nous sommes alors capables de calculer  $N$  :

$$\begin{aligned}
N &= \|\langle -+ | (\boldsymbol{\mu}_{Er} \cdot \hat{\mathbf{r}}) (\boldsymbol{\mu}_{Er} \cdot \hat{\mathbf{r}}) | +- \rangle\| = \|\langle - | \boldsymbol{\mu}_{Er} \cdot \hat{\mathbf{r}} | + \rangle\|^2 \\
&= \frac{1}{4} \left( \|T \cos^2 \frac{\Theta}{2} - T^* \sin^2 \frac{\Theta}{2}\|^2 + g_Z^2 \cos^2 \theta \sin^2 \Theta - g_Z \cos \theta \sin \Theta \left( \cos^2 \frac{\Theta}{2} - \sin^2 \frac{\Theta}{2} \right) (T + T^*) \right) \\
&= \frac{1}{4} \left( \left( 1 - \frac{\sin^2 \Theta}{2} \right) T T^* - \frac{\sin^2 \Theta}{2} T^2 + g_Z^2 \cos^2 \theta \sin^2 \Theta - 2g_Z \cos \theta \sin \Theta \cos \Theta \operatorname{Re} [T] \right) \\
&= \frac{1}{4} \left( \cos^2 \Theta \operatorname{Re} [T]^2 + \operatorname{Im} [T]^2 + g_Z^2 \cos^2 \theta \sin^2 \Theta - 2g_Z \cos \theta \sin \Theta \cos \Theta \operatorname{Re} [T] \right)
\end{aligned} \tag{B.8}$$

### B.2.2 Expression de $M$

De la même manière, exprimons le terme  $\boldsymbol{\mu}_{Er,i} \cdot \boldsymbol{\mu}_{Er,j}$  en fonction des opérateurs  $S_+$  et  $S_-$

$$\boldsymbol{\mu}_{Er,i} \cdot \boldsymbol{\mu}_{Er,j} = \frac{1}{4} (g_X^2 - g_Y^2) (S_+^i S_+^j + S_-^i + S_-^j) + \frac{1}{4} (g_X^2 + g_Y^2) (S_+^i + S_-^j + S_-^i + S_+^j) + g_Z^2 S_Z^i S_Z^j. \tag{B.9}$$

Avant de commencer le calcul, re-écrivons les vecteurs propres de Eq. (B.2) pour un état à deux spins

$$\begin{aligned}
|+- \rangle &= |+\rangle \otimes |-\rangle = -\frac{\sin \Theta}{2} e^{-i\Phi} |f, +\rangle \otimes |f, +\rangle + \frac{\sin \Theta}{2} e^{i\Phi} |f, -\rangle \otimes |f, -\rangle \\
&\quad + \cos^2 \frac{\Theta}{2} |f, +\rangle \otimes |f, -\rangle - \sin^2 \frac{\Theta}{2} |f, -\rangle \otimes |f, +\rangle \\
\langle -+ | &= \langle - | \otimes \langle + | = -\frac{\sin \Theta}{2} e^{i\Phi} \langle f, + | \otimes \langle f, + | + \frac{\sin \Theta}{2} e^{-i\Phi} \langle f, - | \otimes \langle f, - | \\
&\quad - \sin^2 \frac{\Theta}{2} \langle f, + | \otimes \langle f, - | + \cos^2 \frac{\Theta}{2} \langle f, - | \otimes \langle f, + |.
\end{aligned} \tag{B.10}$$

Lors du calcul de  $M$ , les opérateurs différenciés par les indices  $i$  et  $j$  agissent respectivement sur le premier et le second espace vectoriel. Ainsi

$$\begin{aligned}
\boldsymbol{\mu}_{Er,i} \cdot \boldsymbol{\mu}_{Er,j} |+- \rangle &= \frac{\sin \Theta}{8} ((g_X^2 - g_Y^2) e^{i\Phi} - g_Z^2 e^{-i\Phi}) |f, +\rangle \otimes |f, +\rangle \\
&\quad - \frac{\sin \Theta}{8} ((g_X^2 - g_Y^2) e^{-i\Phi} - g_Z^2 e^{i\Phi}) |f, -\rangle \otimes |f, -\rangle \\
&\quad - \frac{1}{4} \left( \sin^2 \frac{\Theta}{2} (g_X^2 + g_Y^2) + \cos^2 \frac{\Theta}{2} g_Z^2 \right) |f, +\rangle \otimes |f, -\rangle \\
&\quad + \frac{1}{4} \left( \cos^2 \frac{\Theta}{2} (g_X^2 + g_Y^2) + \sin^2 \frac{\Theta}{2} g_Z^2 \right) |f, -\rangle \otimes |f, +\rangle
\end{aligned} \tag{B.11}$$

et finalement

$$\begin{aligned}
M &= \|\langle -+ | \boldsymbol{\mu}_{Er,i} \cdot \boldsymbol{\mu}_{Er,j} | +- \rangle\| \\
&= \frac{\sin^2 \Theta}{16} (2g_Z^2 - (g_X^2 - g_Y^2) (e^{2i\Phi} + e^{-2i\Phi})) + \frac{\sin^2 \Theta g_Z^2}{8} + \left( \sin^4 \frac{\Theta}{2} + \cos^4 \frac{\Theta}{2} \right) \frac{g_X^2 + g_Y^2}{4} \\
&= \frac{\sin^2 \Theta}{8} (2g_Z^2 - (g_X^2 - g_Y^2) \cos 2\Phi) + \left( 1 - \frac{\sin^2 \Theta}{2} \right) \frac{g_X^2 + g_Y^2}{4} \\
&= \frac{\sin^2 \Theta}{8} (2g_Z^2 - (g_X^2 + g_Y^2) - (g_X^2 - g_Y^2) \cos 2\Phi) + \frac{g_X^2 + g_Y^2}{4}
\end{aligned} \tag{B.12}$$

### B.2.3 Moyenne angulaire de $N$

Maintenant que nous avons obtenu les expressions des termes  $N$  et  $M$ , il est évident que seul  $N$  subit la moyenne angulaire sur les coordonnées sphériques  $\theta$  et  $\phi$ . D'après l'expression de ces coordonnées, la moyenne se fera en réalisant les transformations suivantes

$$\begin{aligned}
\cos^2 \theta &\rightarrow \frac{1}{3} & \cos^2 \phi &\rightarrow \frac{1}{2} \\
\sin^2 \theta &\rightarrow \frac{2}{3} & \sin^2 \phi &\rightarrow \frac{1}{2} \\
\sin \theta \cos \theta &\rightarrow 0 & \sin \phi \cos \phi &\rightarrow 0
\end{aligned} \tag{B.13}$$

En effectuant ces transformations dans Eq. (B.8), après développement des termes  $\text{Re}[T]$  et  $\text{Im}[T]$ , nous trouvons

$$\langle N \rangle_{\theta,\phi} = \frac{1}{4} \left( \frac{2}{3} \cos^2 \Theta \left( \frac{g_X^2 \cos^2 \Phi}{2} + \frac{g_Y^2 \sin^2 \Phi}{2} \right) + \frac{2}{3} \left( \frac{g_X^2 \sin^2 \Phi}{2} + \frac{g_Y^2 \cos^2 \Phi}{2} \right) + \frac{g_Z^2 \sin^2 \Theta}{3} \right). \tag{B.14}$$

En utilisant les relations trigonométriques reliant  $\cos^2 \Phi$  et  $\sin^2 \Phi$  à  $\cos 2\Phi$ , nous arrivons finalement à

$$\begin{aligned}
3\langle N \rangle_{\theta,\phi} &= \frac{\cos^2 \Theta}{8} (g_X^2 + g_Y^2 + (g_X^2 - g_Y^2) \cos 2\Phi) + \frac{1}{8} (g_X^2 + g_Y^2 - (g_X^2 - g_Y^2) \cos 2\Phi) + \frac{g_Z^2 \sin^2 \Theta}{4} \\
&= \frac{\sin^2 \Theta}{8} (2g_Z^2 - (g_X^2 + g_Y^2) - (g_X^2 - g_Y^2) \cos 2\Phi) + \frac{g_X^2 + g_Y^2}{4}
\end{aligned} \tag{B.15}$$

Comme cette expression est identique à celle de Eq. (B.12), nous voyons que la moyenne angulaire du couplage est nulle. Ceci justifie le calcul à l'ordre supérieur, en prenant la moyenne du carré du couplage Eq. (B.3).

### B.2.4 Moyenne angulaire du carré du couplage

À la lumière des résultats obtenus, nous pouvons écrire

$$\Xi(\bar{g}, \mathbf{B}) = \langle (M - 3N)^2 \rangle = M^2 + \langle 9N^2 \rangle - 2M\langle 3N \rangle = \langle 9N^2 \rangle - M^2. \tag{B.16}$$

Il nous reste donc à calculer le terme  $\langle 9N^2 \rangle$ . Son expression est la suivante

$$N^2 = \frac{1}{16} \left\{ \begin{aligned} &\cos^4 \Theta \text{Re}[T]^4 + \text{Im}[T]^4 + g_Z^4 \sin^4 \Theta \cos^4 \theta + 4g_Z^2 \cos^2 \theta \sin^2 \Theta \cos^2 \Theta \text{Re}[T]^2 \\ &+ \cos^2 \Theta \text{Re}[T]^2 \text{Im}[T]^2 + g_Z^2 \cos^2 \Theta \sin^2 \Theta \cos^2 \theta \text{Re}[T]^2 - 2g_Z \cos^3 \Theta \sin \Theta \cos \theta \text{Re}[T]^3 \\ &+ g_Z^2 \sin^2 \Theta \cos^2 \theta \text{Im}[T]^2 - 2g_Z \cos \theta \sin \Theta \cos \Theta \text{Re}[T] \text{Im}[T]^2 - 2g_Z^3 \cos^3 \theta \sin^3 \Theta \cos \Theta \text{Re}[T] \end{aligned} \right\} \tag{B.17}$$

En plus de celles déjà données en Eq. (B.13), il nous faudra faire les transformations suivantes

$$\begin{aligned}
\cos^4 \theta &\rightarrow \frac{1}{5} & \cos^4 \phi &\rightarrow \frac{3}{8} \\
\sin^4 \theta &\rightarrow \frac{8}{15} & \sin^4 \phi &\rightarrow \frac{3}{8} \\
\sin^2 \theta \cos^2 \theta &\rightarrow \frac{2}{15} & \sin^2 \phi \cos^2 \phi &\rightarrow \frac{1}{8} \\
\sin^3 \theta \cos \theta &\rightarrow 0 & \sin^3 \phi \cos \phi &\rightarrow 0 \\
\sin \theta \cos^3 \theta &\rightarrow 0 & \sin \phi \cos^3 \phi &\rightarrow 0.
\end{aligned} \tag{B.18}$$

Commençons par la moyenne sur  $\phi$ . En développant les termes  $\text{Re}[T]$  et  $\text{Im}[T]$  nous pouvons déjà calculer les différentes moyennes apparaissant dans Eq. (B.18)

$$\begin{aligned}
\text{Re}[T] &= (g_X \cos \phi \cos \Phi + g_Y \sin \phi \sin \Phi) \sin \theta & \text{Im}[T] &= (-g_X \cos \phi \sin \Phi + g_Y \sin \phi \cos \Phi) \sin \theta \\
\langle \text{Re}[T]^2 \rangle_\phi &= \frac{g_X^2 \cos^2 \Phi + g_Y^2 \sin^2 \Phi}{2} \sin^2 \theta & \langle \text{Im}[T]^2 \rangle_\phi &= \frac{g_X^2 \sin^2 \Phi + g_Y^2 \cos^2 \Phi}{2} \sin^2 \theta \\
\langle \text{Re}[T]^4 \rangle_\phi &= \frac{3 \sin^4 \theta}{8} (g_X^2 \cos^2 \Phi + g_Y^2 \sin^2 \Phi)^2 & \langle \text{Im}[T]^4 \rangle_\phi &= \frac{3 \sin^4 \theta}{8} (g_X^2 \sin^2 \Phi + g_Y^2 \cos^2 \Phi)^2 \\
\langle \text{Im}[T]^2 \text{Re}[T]^2 \rangle_\phi &= \frac{\sin^4 \theta}{8} (g_X^2 g_Y^2 + 3 \sin^2 \Phi \cos^2 \Phi (g_X^2 - g_Y^2)^2).
\end{aligned} \tag{B.19}$$

En remplaçant ces différentes moyennes dans Eq. (B.17) et en effectuant les transformations de Eq. (B.18) pour la moyenne sur  $\theta$ , nous arrivons finalement à

$$\begin{aligned}
\langle N^2 \rangle_{\theta, \phi} &= \frac{1}{16} \left\{ \begin{aligned} &\frac{3 \cos^4 \Theta}{15} (g_X^2 \cos^2 \Phi + g_Y^2 \sin^2 \Phi)^2 + \frac{3}{15} (g_X^2 \sin^2 \Phi + g_Y^2 \cos^2 \Phi)^2 \\ &+ \frac{g_Z^4 \sin^4 \Theta}{5} + \frac{4}{15} g_Z^2 \cos^2 \Theta \sin^2 \Theta (g_X^2 \cos^2 \Phi + g_Y^2 \sin^2 \Phi) \\ &+ \frac{2}{15} \cos^2 \Theta (g_X^2 g_Y^2 + 3 \sin^2 \Theta \cos^2 \Theta (g_X^2 - g_Y^2)^2) \\ &+ \frac{2}{15} g_Z^2 \cos^2 \Theta \sin^2 \Theta (g_X^2 \cos^2 \Phi + g_Y^2 \sin^2 \Phi) + \frac{2}{15} g_Z^2 \sin^2 \Theta (g_X^2 \sin^2 \Phi + g_Y^2 \cos^2 \Phi) \end{aligned} \right\} \\
&= \frac{1}{80} \left\{ \begin{aligned} &(g_X^2 \sin^2 \Phi + g_Y^2 \cos^2 \Phi)^2 + [\cos^2 \Theta (g_X^2 \cos^2 \Phi + g_Y^2 \sin^2 \Phi) + g_Z^2 \sin^2 \Theta]^2 \\ &+ \frac{2}{3} g_Z^2 \sin^2 \Theta (g_X^2 \cos^2 \Phi + g_Y^2 \sin^2 \Phi) + \frac{2}{3} \cos^2 \Theta (g_X^2 g_Y^2 + 3 \sin^2 \Theta \cos^2 \Theta (g_X^2 - g_Y^2)^2) \end{aligned} \right\}
\end{aligned} \tag{B.20}$$

La dernière étape du calcul est de faire disparaître les éléments du tenseur  $g$  en utilisant les notations

$$\begin{cases} \mathcal{S} = g_X^2 + g_Y^2 \\ \Delta_1 = g_X^2 + g_Y^2 - 2g_Z^2 \\ \Delta_2 = g_X^2 - g_Y^2 \end{cases} \tag{B.21}$$



En remarquant que

$$\begin{cases} g_Z^2 = \frac{\mathcal{S} - \Delta_1}{2} \\ g_X^2 g_Y^2 = \frac{\mathcal{S}^2 - \Delta_2^2}{4} \\ g_X^2 \cos^2 \Phi + g_Y^2 \sin^2 \Phi = \frac{\mathcal{S} + \Delta_2 \cos 2\Phi}{2} \\ g_X^2 \sin^2 \Phi + g_Y^2 \cos^2 \Phi = \frac{\mathcal{S} - \Delta_2 \cos 2\Phi}{2}, \end{cases} \quad (\text{B.22})$$

nous pouvons écrire

$$\langle N^2 \rangle_{\theta, \phi} = \frac{1}{80} \left\{ \begin{aligned} & \frac{(\mathcal{S} - \Delta_2 \cos 2\Phi)^2}{4} + \frac{(\mathcal{S} - \Delta_1 \sin^2 \Theta + \Delta_2 \cos^2 \Theta \cos 2\Phi)^2}{4} \\ & + \frac{1}{6} \sin^2 \Theta (\mathcal{S} - \Delta_1)(\mathcal{S} - \Delta_2 \cos 2\Phi) + \frac{2}{3} \cos^2 \Theta \left( \frac{\mathcal{S}^2 - \Delta_2^2}{4} + 3 \sin^3 \Phi \cos^2 \Phi \Delta_2^2 \right) \end{aligned} \right\} \quad (\text{B.23})$$

En ré-organisant cette expression et y ajoutant le terme Eq. (B.12) ayant lui aussi subit les transformations de Eq. (B.21), nous pouvons finalement exprimer la moyenne angulaire du couplage carré Eq. (B.16) comme suit :

$$\begin{aligned} \Xi(\bar{g}, \mathbf{B}) &= \frac{9}{80} \left\{ \left[ \frac{2}{3} \mathcal{S} - \sin^2 \Theta \frac{\Delta_1}{2} + \left( \cos^2 \Theta - \frac{1}{3} \right) \cos(2\Phi) \frac{\Delta_2}{2} \right]^2 \right. \\ & \quad \left. + \frac{2}{9} (\mathcal{S} - \cos(2\Phi) \Delta_2)^2 + \cos^2 \Theta \sin^2(2\Phi) \frac{\Delta_2^2}{3} \right\} \\ & \quad - \frac{1}{64} [2\mathcal{S} - \sin^2 \Theta \Delta_1 - \sin^2 \Theta \cos(2\Phi) \Delta_2]^2 \end{aligned} \quad (\text{B.24})$$

## Annexe C

# Expression du rapport de branchement superhyperfins

Dans cette annexe, je vais présenter le calcul du rapport de branchement entre quatre niveaux. Ils peuvent être des niveaux Zeeman comme des niveaux super-hyperfins. La seule différence provient du champ magnétique que ces niveaux ressentent effectivement. Pour des niveaux Zeeman, le champ effectif correspond au champ équivalent noté  $\mathbf{B}_{eq}$  et défini par Eq. (4.13). Pour des niveaux super-hyperfins, il est noté  $\mathbf{B}_{eff}$  et est défini par Eq. (4.34). Dans cette annexe, nous résoudrons ce problème dans le second cas. Il est important de garder à l'esprit que le calcul se ferait de manière similaire pour les niveaux Zeeman.

Le système que nous étudions est composé de quatre niveaux super-hyperfins. Leurs états propres sont notés  $|-\rangle_Y$  et  $|+\rangle_Y$  dans l'état fondamental et  $|-\rangle'_Y$  et  $|+\rangle'_Y$  dans l'état excité. En utilisant la notion de champ effectif, les hamiltoniens de spin nucléaire s'écrivent

$$\begin{aligned} H_n &= -h\gamma_Y \mathbf{I} \cdot \mathbf{B}_{eff} \\ H'_n &= -h\gamma_Y \mathbf{I} \cdot \mathbf{B}'_{eff}. \end{aligned} \quad (\text{C.1})$$

Afin de trouver l'expression des états propres du système, plaçons nous dans le repère où le champ effectif de l'état fondamental est diagonal. Notons  $(O_1, O_2, O_3)$  les axes de ce repère et quantifions le spin électronique selon l'axe  $O_3$ . L'hamiltonien de l'état fondamental est alors diagonal et s'écrit

$$H_n = -h\gamma_Y B_{eff} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}. \quad (\text{C.2})$$

Les vecteurs propres de l'état fondamental s'écrivent donc

$$|+\rangle_Y = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} \quad \text{et} \quad |-\rangle_Y = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}. \quad (\text{C.3})$$

Il nous faut maintenant exprimer l'hamiltonien de l'état excité sur la base formée par ces vecteurs propres. Pour ce faire, fixons l'axe  $O_1$  du repère de manière à ce que le champ effectif de l'état excité soit dans le plan  $(O_1, O_3)$ . L'angle entre les deux champs effectifs est noté  $\vartheta_{eff}$ . L'hamiltonien de l'état excité se développe donc comme

$$H'_n = -h\gamma_Y B'_{eff} \begin{pmatrix} \cos \vartheta_{eff} & \sin \vartheta_{eff} \\ \sin \vartheta_{eff} & -\cos \vartheta_{eff} \end{pmatrix}. \quad (\text{C.4})$$

Les vecteurs propres de l'état excité s'écrivent alors

$$|+\rangle'_Y = \begin{pmatrix} \cos \vartheta_{eff} + 1 \\ \sin \vartheta_{eff} \end{pmatrix} \quad \text{et} \quad |-\rangle'_Y = \begin{pmatrix} -\sin \vartheta_{eff} \\ 1 + \cos \vartheta_{eff} \end{pmatrix}. \quad (\text{C.5})$$

Le rapport de branchement entre les niveaux super-hyperfins est défini comme

$$R_Y = \left\| \frac{Y \langle + | - \rangle'_Y}{Y \langle - | - \rangle'_Y} \right\|^2. \quad (\text{C.6})$$

En utilisant les différents vecteurs propres décrits par les équations Eq. (C.3) et Eq. (C.5), ce rapport s'écrit

$$\begin{aligned} R_Y &= \left( \frac{\sin \vartheta_{eff}}{1 + \cos \vartheta_{eff}} \right)^2 \\ &= \frac{1 - \cos \vartheta_{eff}}{1 + \cos \vartheta_{eff}} = \left( \tan \frac{\vartheta_{eff}}{2} \right)^2 \\ &= \frac{1 - \hat{\mathbf{B}}_{eff} \cdot \hat{\mathbf{B}}'_{eff}}{1 + \hat{\mathbf{B}}_{eff} \cdot \hat{\mathbf{B}}'_{eff}}. \end{aligned} \quad (\text{C.7})$$

Cette expression est très générale. Tout rapport de branchement pourra s'écrire ainsi,  $\vartheta_{eff}$  étant l'angle entre les champs effectifs des niveaux considérés. Par exemple, le rapport de branchement entre les transitions spin électronique peut aussi s'écrire

$$\begin{aligned} R &= \frac{1 - \cos \vartheta_{eff}}{1 + \cos \vartheta_{eff}} \quad \text{avec} \quad \cos \vartheta_{eff} = \hat{\mathbf{B}}_{eq} \cdot \hat{\mathbf{B}}'_{eq} \\ &= \left( \tan \frac{\vartheta_{eff}}{2} \right)^2, \end{aligned} \quad (\text{C.8})$$

où  $\hat{\mathbf{B}}_{eq}$  et  $\hat{\mathbf{B}}'_{eq}$  sont les normes des champs équivalents définis en Eq. (4.13), dans l'état fondamental et excité.

## Annexe D

# Couplages super-hyperfins dans le régime de champ faible

Dans cette annexe, je vais présenter des calculs portant sur l'effet des couplages super-hyperfins dans le régime de champ faible (voir 7.1.2). Nous avons tout d'abord calculé le contraste de modulation moyen des ions yttrium dans ce régime, pour un champ orienté à  $45^\circ$ . Nous retrouvons une valeur proche du coefficient directeur de la partie linéaire de Fig. 7.3. Dans un second temps, je décrirai l'effet de ces couplages sur une décroissance d'écho de photon. Nous verrons que pour des champs magnétiques très faibles, inférieurs à quelques dizaines de mT, ces couplages détruisent l'écho.

### D.1 Contraste de modulation moyen

Pour un couplage super-hyperfin entre erbium et yttrium, le régime de champ faible a été défini comme celui où  $B \ll S_{Er}$ .  $B$  est le champ magnétique imposé tandis que  $S_{Er}$  correspond à la moyenne des champs créés par l'erbium dans son état fondamental et son état excité (voir Eq. (7.2)). Dans ce régime, le contraste de modulation optique peut donc s'écrire

$$\begin{aligned} C_Y &= 1 - \frac{(S_{Er}^2 - D_{Er}^2)^2}{(S_{Er}^2 + D_{Er}^2)^2 - 4(D_{Er} \cdot S_{Er})^2} \\ &= 4 \frac{S_{Er}^2 D_{Er}^2 - (S_{Er} \cdot D_{Er})^2}{(S_{Er}^2 + D_{Er}^2)^2 - 4(D_{Er} \cdot S_{Er})^2}. \end{aligned} \quad (D.1)$$

Dans cette fraction, les facteurs  $\frac{1}{r_Y^3}$  se simplifient. Le contraste dépend uniquement de l'orientation des ions yttrium. Sa moyenne angulaire sur tout l'espace est donc égale à sa valeur moyenne. Nous la noterons  $\bar{C}_Y$ . Il est donc nécessaire d'explicitier les dépendances angulaires des différents termes de cette expression.  $S_{Er}$  et  $D_{Er}$  dépendent de l'orientation relative entre erbium et yttrium notée  $\hat{r}_Y$ . Ils peuvent s'écrire

$$\begin{cases} S_{Er} = \frac{\mu_0 \hbar}{4\pi r_Y^3} \sigma [3(\hat{\sigma} \cdot \hat{r}_Y) \hat{r}_Y - \hat{\sigma}] \\ D_{Er} = \frac{\mu_0 \hbar}{4\pi r_Y^3} \delta [3(\hat{\delta} \cdot \hat{r}_Y) \hat{r}_Y - \hat{\delta}]. \end{cases} \quad (D.2)$$

Dans ces deux expressions nous utilisons les moments  $\boldsymbol{\sigma}$  et  $\boldsymbol{\delta}$  définis respectivement comme la somme et la différence des dipôles moyens de l'erbium (Eq. (4.12)) :

$$\begin{cases} \boldsymbol{\sigma} = \frac{\langle \boldsymbol{\mu}_{Er} \rangle + \langle \boldsymbol{\mu}'_{Er} \rangle}{2} \\ \boldsymbol{\delta} = \frac{\langle \boldsymbol{\mu}_{Er} \rangle - \langle \boldsymbol{\mu}'_{Er} \rangle}{2}. \end{cases} \quad (\text{D.3})$$

Pour un champ orienté à  $\varphi = 45^\circ$ , la norme de ces moments vaut  $\sigma = \frac{h\mu_B}{2} \times 13.68$  et  $\delta = \frac{h\mu_B}{2} \times 1.87$ . L'angle entre leurs vecteurs respectifs vaut  $\vartheta_0 = 0.41$ . Au regard de ces valeurs, il est clair que  $S_{Er}^2 \gg D_{Er}^2$ . Nous pouvons donc encore simplifier le contraste de modulation

$$C_Y = 4 \frac{S_{Er}^2 D_{Er}^2 - (S_{Er} \cdot D_{Er})^2}{S_{Er}^4}. \quad (\text{D.4})$$

En développant les différents termes de ce contraste à l'aide de Eq. (D.2), nous trouvons

$$C_Y = \frac{4\delta^2}{\sigma^2} \frac{\left(3(\hat{\boldsymbol{\sigma}} \cdot \hat{\mathbf{r}}_Y)^2 + 1\right) \left(3(\hat{\boldsymbol{\delta}} \cdot \hat{\mathbf{r}}_Y)^2 + 1\right) - \left(3(\hat{\boldsymbol{\sigma}} \cdot \hat{\mathbf{r}}_Y)(\hat{\boldsymbol{\delta}} \cdot \hat{\mathbf{r}}_Y) + \hat{\boldsymbol{\delta}} \cdot \hat{\boldsymbol{\sigma}}\right)^2}{\left(3(\hat{\boldsymbol{\sigma}} \cdot \hat{\mathbf{r}}_Y)^2 + 1\right)^2}. \quad (\text{D.5})$$

Plaçons-nous maintenant dans le repère  $(O_1, O_2, O_3)$  où  $\hat{\boldsymbol{\sigma}}$  est porté par  $O_3$  et où  $\hat{\boldsymbol{\delta}}$  est dans le plan  $(O_1, O_3)$ . Dans ce repère,  $\hat{\mathbf{r}}_Y$  s'exprime comme

$$\hat{\mathbf{r}}_Y = \begin{pmatrix} \sin \theta_y \cos \phi_y \\ \sin \theta_y \sin \phi_y \\ \cos \theta_y \end{pmatrix}. \quad (\text{D.6})$$

Les coordonnées sphériques  $\phi_y$  et  $\theta_y$  sont définies dans Fig. D.1. Les différents produits scalaires de Eq. (D.5) valent alors

$$\begin{cases} \hat{\boldsymbol{\sigma}} \cdot \hat{\mathbf{r}}_Y = \cos \theta_y \\ \hat{\boldsymbol{\delta}} \cdot \hat{\mathbf{r}}_Y = \cos \vartheta_0 \cos \theta_y + \sin \vartheta_0 \sin \theta_y \cos \phi_y \\ \hat{\boldsymbol{\sigma}} \cdot \hat{\boldsymbol{\delta}} = \cos \vartheta_0 \end{cases} \quad (\text{D.7})$$

Commençons par effectuer la moyenne sur la coordonnée sphérique  $\phi_y$ . Seul le produit  $\hat{\boldsymbol{\delta}} \cdot \hat{\mathbf{r}}_Y$  dépend de cette coordonnée. Sa moyenne et celle de son carré sont

$$\begin{aligned} \langle \hat{\boldsymbol{\delta}} \cdot \hat{\mathbf{r}}_Y \rangle_{\phi_y} &= \cos \vartheta_0 \cos \theta_y \\ \langle (\hat{\boldsymbol{\delta}} \cdot \hat{\mathbf{r}}_Y)^2 \rangle_{\phi_y} &= \cos^2 \vartheta_0 \cos^2 \theta_y \frac{(1 - \cos^2 \vartheta_0)(1 - \cos^2 \theta_y)}{2}. \end{aligned} \quad (\text{D.8})$$

Nous pouvons alors trouver que la moyenne du contraste selon  $\phi_y$  vaut

$$\langle C_Y \rangle_{\phi_y} = \frac{2\delta^2}{\sigma^2} (1 - \cos^2 \vartheta_0) \frac{5 + 3 \cos^2 \theta_y}{(1 + 3 \cos^2 \theta_y)^2}. \quad (\text{D.9})$$

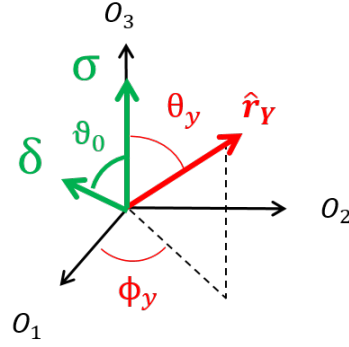


FIGURE D.1 – Définition du repère  $(O_1, O_2, O_3)$  utilisé lors de ce calcul. la co-latitude et la longitude du vecteur  $\mathbf{r}_Y$ , orientation relative de l'yttrium, sont notée  $\theta_y$  et  $\phi_y$  dans ce repère.

Il ne reste plus qu'à effectuer la moyenne sur  $\theta_y$  :

$$\begin{aligned}\bar{C}_Y &= \frac{2\delta^2}{\sigma^2} (1 - \cos^2 \vartheta_0) \int_{-1}^1 \frac{5 + 3x^2}{(1 + 3x^2)^2} dx \\ &= \frac{2\delta^2}{\sigma^2} (1 - \cos^2 \vartheta_0) \left(1 + \frac{2\pi}{\sqrt{3}}\right) \\ &= 0.072.\end{aligned}\tag{D.10}$$

Dans le régime de champ faible, le contraste de modulation optique moyen est petit mais non nul. Tous les ions yttrium de ce régime contribuent indépendamment de leurs distances radiales. La moyenne angulaire  $\bar{C}_Y = 0.072$  correspond au coefficient directeur de la partie linéaire de Fig. 7.3.

## D.2 Destruction de l'écho

Les couplages super-hyperfins modulent l'intensité d'écho de photon selon la formule

$$\mathcal{I}(2\tau) = \mathcal{I}_0 \prod_{i=1}^N \left[ 1 - \frac{C_{Y,i}}{2} (1 - \cos(\Delta_{Y,i}\tau)) (1 - \cos(\Delta'_{Y,i}\tau)) \right]^2 \times e^{-\frac{4\tau}{T_2}}.\tag{D.11}$$

Nous avons vu dans la partie 7.1.2 qu'il existe deux régimes de couplages bien distincts. Supposons que  $N_1$  ligands soient dans le régime de couplage faible et que les  $N - N_1$  restants soient dans celui de couplage fort. Eq. (D.11) peut donc s'écrire

$$\begin{aligned}\mathcal{I}(2\tau) &= \mathcal{I}_0 \times \overbrace{\prod_{i=1}^{N_1} \left[ 1 - \frac{C_{Y,i}}{2} (1 - \cos(\Delta_{Y,i}\tau)) (1 - \cos(\Delta'_{Y,i}\tau)) \right]^2}^{\mathcal{M}(\tau)} \\ &\quad \times \prod_{i=N_1+1}^N \left[ 1 - \frac{C_{Y,i}}{2} (1 - \cos(\Delta_{Y,i}\tau)) (1 - \cos(\Delta'_{Y,i}\tau)) \right]^2 e^{-\frac{4\tau}{T_2}}.\end{aligned}\tag{D.12}$$

Dans cette partie, étudions l'effet de la modulation  $\mathcal{M}$  induite par les couplages dans le régime de champ faible uniquement. Dans ce régime nous avons vu que le contraste de modulation est

faible pour tous les ions. De plus, comme nous travaillons à champ faible, nous pouvons faire l'hypothèse que les écarts en fréquence  $\Delta_{Y,i}$  et  $\Delta'_{Y,i}$  sont proches. Simplifions l'expression de la modulation

$$\begin{aligned}\mathcal{M}(\tau) &\approx \prod_{i=1}^{N_1} \left[ 1 - \frac{\mathcal{C}_{Y,i}}{2} (1 - \cos(\Delta_{Y,i}\tau))^2 \right]^2 \\ &\approx \exp \left[ \sum_{i=1}^{N_1} 2 \log \left[ 1 - \frac{\mathcal{C}_{Y,i}}{2} (1 - \cos(\Delta_{Y,i}\tau))^2 \right] \right] \\ &\approx \exp \left[ - \sum_{i=1}^{N_1} \mathcal{C}_{Y,i} (1 - \cos(\Delta_{Y,i}\tau))^2 \right]\end{aligned}\tag{D.13}$$

Calculons maintenant la somme sur les différents ligands de ce régime. Supposons que leur nombre soit suffisant pour substituer la somme discrète à une moyenne sur l'espace. Dans la partie précédente, nous avons vu que le contraste de modulation est indépendant de la distance  $r_Y$  et que sa moyenne angulaire vaut  $\bar{\mathcal{C}}_Y = 0.072$ . De la même manière, notons  $\bar{\Delta}_Y$  la moyenne angulaire de l'écart en fréquence entre les niveaux super-hyperfins. Il reste alors à prendre en compte la dépendance radiale de cet écart. En notant respectivement  $R_0 = 3.5 \text{ \AA}$  et  $R_1$  la distance minimale à l'erbium et celle bornant le régime de champ faible, avec  $\epsilon = \frac{R_0}{R_1}$ , nous pouvons écrire la somme comme

$$\begin{aligned}\mathcal{M}(\tau) &\approx \exp \left[ -4\pi n_Y \bar{\mathcal{C}}_Y \int_{R_0}^{R_1} r_Y^2 \left( 1 - \cos \left( \bar{\Delta}_Y \left( \frac{R_0}{r_Y} \right)^3 \tau \right) \right)^2 dr_Y \right] \\ &\approx \exp \left[ -\frac{4\pi}{3} n_Y R_0^3 \bar{\mathcal{C}}_Y \int_{\epsilon}^1 \left( \frac{1 - \cos(\bar{\Delta}_Y x \tau)}{x} \right)^2 dx \right] \\ &\approx \exp \left[ -\frac{4\pi}{3} n_Y R_0^3 \bar{\mathcal{C}}_Y \times F(\bar{\Delta}_Y \tau, \epsilon) \right]\end{aligned}\tag{D.14}$$

où la fonction  $F$  est définie comme

$$\begin{aligned}F(\bar{\Delta}_Y \tau, \epsilon) &= \left( \frac{1 - \cos(\bar{\Delta}_Y \epsilon \tau)}{\epsilon} \right) - (1 - \cos(\bar{\Delta}_Y \tau)) \\ &\quad + \bar{\Delta}_Y \tau \left( \int_{2\bar{\Delta}_Y \tau}^{2\bar{\Delta}_Y \tau \epsilon} \frac{\sin x}{x} dx - \int_{\bar{\Delta}_Y \tau}^{\bar{\Delta}_Y \tau \epsilon} \frac{2 \sin x}{x} dx \right)\end{aligned}\tag{D.15}$$

Le paramètre  $\epsilon$  qui apparaît dans cette formule est fixé par la norme du champ magnétique imposé. Il peut aussi s'écrire

$$\epsilon = \frac{R_0}{R_1} = \frac{4\pi n_Y R_0^3}{N_1}.\tag{D.16}$$

L'expression de  $\mathcal{M}$  permet bien d'expliquer la destruction de l'écho aux faibles champs magnétiques (voir Fig. 7.8). La valeur du paramètre  $\bar{\Delta}_Y$  peut alors être trouvée en comparant la période des modulations prédites par Eq. (D.14) à celles mesurées expérimentalement.

# Bibliographie

- [1] C. Cohen-Tannoudji. *Mécanique Quantique*. Hermann, 1977.
- [2] P.W. Shor. Polynomial-Time Algorithms for Prime Factorization and Discrete Logarithms on a Quantum Computer. *SIAM Journal on Computing*, 26(5) :1484–1509, October 1997.
- [3] C. H. Bennett and G. Brassard. Quantum Cryptography :Public Key Distribution And Coin Tossing. *International Conference on Computers, Systems and signal processing*, 1, December 1984.
- [4] A. I. Lvovsky, B. C. Sanders, and W. Tittel. Optical quantum memory. *Nature Photonics*, 3(12) :706–714, December 2009.
- [5] C. Simon et al. Quantum memories : A review based on the European integrated project "Qubit Applications (QAP)". *The European Physical Journal D*, 58(1) :1–22, May 2010.
- [6] K. Hammerer, A. S. Sørensen, and E. S. Polzik. Quantum interface between light and atomic ensembles. *Reviews of Modern Physics*, 82(2) :1041–1093, April 2010.
- [7] K. Heshami, D. G. England, P. C. Humphreys, P. J. Bustard, V. M. Acosta, J. Nunn, and B. J. Sussman. Quantum memories : emerging applications and recent advances. *Journal of Modern Optics*, 63 :1–24, 2016.
- [8] F. Bussières, N. Sangouard, M. Afzelius, H. de Riedmatten, C. Simon, and W. Tittel. Prospective applications of optical quantum memories. *Journal of Modern Optics*, 60(18) :1519–1537, October 2013.
- [9] M. Fleischhauer and M. D. Lukin. Dark-State Polaritons in Electromagnetically Induced Transparency. *Physical Review Letters*, 84(22) :5094–5097, May 2000.
- [10] A. E. Kozhokin, K. Molmer, and E. Polzik. Quantum Memory for Light. *Physical Review A*, 62 :033809, August 2000.
- [11] W. Tittel, M. Afzelius, T. Chanelière, R.L. Cone, S. Kröll, S.A. Moiseev, and M. Sellars. Photon-echo quantum memory in solid state systems. *Laser & Photonics Reviews*, 4(2) :244–267, May 2009.
- [12] J. Ruggiero, J-L. Le Gouët, C. Simon, and T. Chanelière. Why the two-pulse photon echo is not a good quantum memory protocol. *Physical Review A*, 79(5) :053851, May 2009.
- [13] B. Kraus, W. Tittel, N. Gisin, M. Nilsson, S. Kröll, and J. I. Cirac. Quantum memory for nonstationary light fields based on controlled reversible inhomogeneous broadening. *Physical Review A*, 73(2) :020302, February 2006.
- [14] A. L. Alexander, J. J. Longdell, M. J. Sellars, and N. B. Manson. Photon Echoes Produced by Switching Electric Fields. *Physical Review Letters*, 96(4) :043602, February 2006.
- [15] G. Hétet, M. Hosseini, B. M. Sparkes, D. Oblak, P. K. Lam, and B. C. Buchler. Photon echoes generated by reversing magnetic field gradients in a rubidium vapor. *Optics Letters*, 33(20) :2323, October 2008.



- [16] V. Damon, M. Bonarota, A. Louchet-Chauvet, T. Chanelière, and J-L. Le Gouët. Revival of silenced echo and quantum memory for light. *New Journal of Physics*, 13(9) :093031, September 2011.
- [17] H. de Riedmatten, M. Afzelius, M. U. Staudt, C. Simon, and N. Gisin. A solid-state light–matter interface at the single-photon level. *Nature*, 456(7223) :773–777, December 2008.
- [18] M. Afzelius, C. Simon, H. de Riedmatten, and N. Gisin. Multimode quantum memory based on atomic frequency combs. *Physical Review A*, 79(5) :052329, May 2009.
- [19] R. J. Thompson, G. Rempe, and H. J. Kimble. Observation of normal-mode splitting for an atom in an optical cavity. *Physical Review Letters*, 68(8) :1132–1135, February 1992.
- [20] A. Wallraff, D. I. Schuster, A. Blais, L. Frunzio, R.-S. Huang, J. Majer, S. Kumar, S. M. Girvin, and R. J. Schoelkopf. Strong coupling of a single photon to a superconducting qubit using circuit quantum electrodynamics. *Nature*, 431(7005) :162–167, September 2004.
- [21] 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(7069) :837–841, December 2005.
- [22] T. Chanelière, D. N. Matsukevich, S. D. Jenkins, S.-Y. Lan, T. A. B. Kennedy, and A. Kuzmich. Storage and retrieval of single photons transmitted between remote quantum memories. *Nature*, 438(7069) :833–836, December 2005.
- [23] Y. O. Dudin, L. Li, and A. Kuzmich. Light storage on the time scale of a minute. *Physical Review A*, 87(3) :031801, March 2013.
- [24] C.W. Thiel, T. Böttger, and R.L. Cone. Rare-earth-doped materials for applications in quantum information storage and signal processing. *Journal of Luminescence*, 131(3) :353–361, March 2011.
- [25] M. P. Hedges, J. J. Longdell, Y. Li, and M. J. Sellars. Efficient quantum memory for light. *Nature*, 465(7301) :1052–1056, June 2010.
- [26] E. Fraval, M. J. Sellars, and J. J. Longdell. Method of Extending Hyperfine Coherence Times in  $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ . *Physical Review Letters*, 92(7), February 2004.
- [27] M. Zhong, M. P. Hedges, R. L. Ahlefeldt, J. G. Bartholomew, S. E. Beavan, S. M. Wittig, J. J. Longdell, and M. J. Sellars. Optically addressable nuclear spins in a solid with a six-hour coherence time. *Nature*, 517(7533) :177–180, January 2015.
- [28] J. J. L. Morton, A. M. Tyryshkin, R. M. Brown, S. Shankar, B. W. Lovett, A. Ardavan, T. Schenkel, E. E. Haller, J. W. Ager, and S. A. Lyon. Solid-state quantum memory using the 31p nuclear spin. *Nature*, 455(7216) :1085–1088, October 2008.
- [29] P. C. Maurer, G. Kucsko, C. Latta, L. Jiang, N. Y. Yao, S. D. Bennett, F. Pastawski, D. Hunger, N. Chisholm, M. Markham, D. J. Twitchen, J. I. Cirac, and M. D. Lukin. Room-Temperature Quantum Bit Memory Exceeding One Second. *Science*, 336(6086) :1283–1286, June 2012.
- [30] S. Probst, H. Rotzinger, S. Wünsch, P. Jung, M. Jerger, M. Siegel, A. V. Ustinov, and P. A. Bushev. Anisotropic Rare-Earth Spin Ensemble Strongly Coupled to a Superconducting Resonator. *Physical Review Letters*, 110(15) :157001, April 2013.
- [31] T. Zhong, J. M. Kindem, J. G. Bartholomew, J. Rochman, I. Craiciu, V. Verma, S. W. Nam, F. Marsili, M. D. Shaw, A. D. Beyer, and A. Faraon. Optically Addressing Single Rare-Earth Ions in a Nanophotonic Cavity. *Physical Review Letters*, 121(18) :183603, October 2018.

- [32] A.M. Dibos, M. Raha, C.M. Phenicie, and J.D. Thompson. Atomic Source of Single Photons in the Telecom Band. *Physical Review Letters*, 120(24) :243601, June 2018.
- [33] N. Gisin and R. Thew. Quantum Communication. *Nature Photonics*, 1(3) :165–171, March 2007.
- [34] G. P. Agrawal. *Fiber-optic communication systems*. Wiley-Interscience, New York, 2002. OCLC : 58437991.
- [35] H-J. Briegel, W. Dür, J. I. Cirac, and P. Zoller. Quantum repeaters : the role of imperfect local operations in quantum communication. *Physical Review Letters*, 81(26) :5932, 1998.
- [36] L.-M. Duan, M. D. Lukin, J. I. Cirac, and P. Zoller. Long-distance quantum communication with atomic ensembles and linear optics. *Nature*, 414(6862) :413–418, November 2001.
- [37] B. Lauritzen, J. Minář, H. de Riedmatten, M. Afzelius, N. Sangouard, C. Simon, and N. Gisin. Telecommunication-Wavelength Solid-State Memory at the Single Photon Level. *Physical Review Letters*, 104(8) :080502, February 2010.
- [38] Y-W. Cho, G. T. Campbell, J. L. Everett, J. Bernu, D. B. Higginbottom, M. T. Cao, J. Geng, N. P. Robins, and I. Lam. Highly efficient optical quantum memory with long coherence time in cold atoms. *Optica*, 3(1) :100–107, 2016.
- [39] S. Probst, H. Rotzinger, A. V. Ustinov, and P. A. Bushev. Microwave multimode memory with an erbium spin ensemble. *Physical Review B*, 92(1) :014421, July 2015.
- [40] E. Baldit, K. Bencheikh, P. Monnier, S. Briaudeau, J. A. Levenson, V. Crozatier, I. Lorgéré, F. Bretenaker, J-L. Le Gouët, O. Guillot-Noël, and Ph. Goldner. Identification of  $\lambda$ -like systems in  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$  and observation of electromagnetically induced transparency. *Physical Review B*, 81(14) :144303, April 2010.
- [41] M. Rančić, M. P. Hedges, R. L. Ahlefeldt, and M. J. Sellars. Coherence time of over a second in a telecom-compatible quantum memory storage material. *Nature Physics*, 14(1) :50–54, September 2017.
- [42] E. Saglamyurek, J. Jin, V. B. Verma, M. D. Shaw, F. Marsili, S. W. Nam, D. Oblak, and W. Tittel. Quantum storage of entangled telecom-wavelength photons in an erbium-doped optical fibre. *Nature Photonics*, 9(2) :83–87, February 2015.
- [43] T. Böttger, C. W. Thiel, R. L. Cone, and Y. Sun. Effects of magnetic field orientation on optical decoherence in  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ . *Physical Review B*, 79(11) :115104, March 2009.
- [44] T. Böttger, C. W. Thiel, Y. Sun, and R. L. Cone. Optical decoherence and spectral diffusion at  $1.5\ \mu\text{m}$  in  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$  versus magnetic field, temperature, and  $\text{Er}^{3+}$  concentration. *Physical Review B*, 73(7) :045134, February 2006.
- [45] I. N. Kurkin and K. P. Chernov. EPR and spin-lattice relaxation of rare-earth activated centres in  $\text{Y}_2\text{SiO}_5$  single crystals. *Physica*, 101 :233–238, 1980.
- [46] R. Orbach. Spin-Lattice Relaxation in Rare-Earth Salts. *Proceedings of the Royal Society A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 264(1319) :458–484, December 1961.
- [47] B. Henderson and G. F. Imbusch. *Optical spectroscopy of Inorganic Solids*. Oxford science publications, 1989.
- [48] N. Bloembergen, S. Shapiro, P. S. Pershan, and J. O. Artman. Cross-relaxation in spin systems. *Physical Review*, 114(2) :445–459, April 1959.
- [49] R. Dupree and M. E. Smith. Structural influences on high-resolution yttrium-89 NMR spectra of solids. *Chemical physics letters*, 148(1) :41–44, 1988.

- [50] C. W. Thiel, W. R. Babbitt, and R. L. Cone. Optical decoherence studies of yttrium oxyorthosilicate  $\text{Y}_2\text{SiO}_5$  codoped with  $\text{Er}^{3+}$  and  $\text{Eu}^{3+}$  for optical signal processing and quantum information applications at 1.5 microns. *Physical Review B*, 85(17) :174302, May 2012.
- [51] E. Saglamyurek, T. Lutz, L. Veissier, M. P. Hedges, C. W. Thiel, R. L. Cone, and W. Tittel. Efficient and long-lived Zeeman-sublevel atomic population storage in an erbium-doped glass fiber. *Physical Review B*, 92(24) :241111, December 2015.
- [52] *The principles of Nuclear Magnetism*. Oxford university press, 1961.
- [53] R. J. Mears, L. Reekie, I. M. Jauncey, and D. N. Payne. Low-noise erbium-doped fibre amplifier operating at 1.54  $\mu\text{m}$ . *Electronics Letters*, 23(19) :1026–1028, 1987.
- [54] Kramers. Théorie générale de la rotation paramagnétique dans les cristaux. page 14, 1930.
- [55] B. Jacquier G. Liu. *Spectroscopic properties of rare earths in optical materials*. Springer series in materials science, 2005.
- [56] B.G. Wybourne. *Spectroscopic properties of rare earth*. John Wiley and Sons, 1965.
- [57] J-L. Le Gouët, F. Bretenaker, and I. Lorgeré. Atomic Processing of Optically Carried RF Signals. In *Advances In Atomic, Molecular, and Optical Physics*, volume 54, pages 549–613. Elsevier, 2007.
- [58] T. Böttger. *Laser frequency stabilization to spectral hole burning frequency references in erbium-doped crystals : material and device optimization*. PhD thesis, Montana state university Bozeman, 2002.
- [59] B. A. Maksimov, Y. A. Kharitonov, V. V. Ilyukhin, and N. V. Belov. Crystal structure of the Y-oxyasilicate  $\text{Y}_2(\text{SiO}_4)\text{O}$ . *Soviet Physics Doklady*, 13 :1188, 05 1969.
- [60] C. Wyon C. Li and R. Moncorge. Spectroscopic properties and fluorescence dynamics of  $\text{Er}^{3+}$  and  $\text{Yb}^{3+}$  in  $\text{Y}_2\text{SiO}_5$ . page 13, 1992.
- [61] J.L. Doualan, C. Labbe, P.L. Boulanger, J. Margerie, R. Moncorge, and H. Timonen. Energy levels of the laser active  $\text{Er}^{3+}$  ion in the two crystallographic sites of yttrium orthosilicate. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 7(26) :5111–5126, June 1995.
- [62] T. Böttger, Y. Sun, C. W. Thiel, and R. L. Cone. Spectroscopy and dynamics of  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ . *Physical Review B*, 74(7) :075107, August 2006.
- [63] R.M. MacFarlane and R.M. Shelby. Homogeneous line broadening of optical transitions of ions and molecules in glasses. *Journal of Luminescence*, 36(4-5) :179–207, January 1987.
- [64] A. M. Stoneham. Shapes of Inhomogeneously Broadened Resonance Lines in Solids. *Reviews of Modern Physics*, 41(1) :82–108, January 1969.
- [65] Y. Sun, T. Böttger, C. W. Thiel, and R. L. Cone. Magnetic g tensors for the  $I_{\frac{15}{2}}$  and  $I_{\frac{13}{2}}$  states of  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ . *Physical Review B*, 77(8) :085124, February 2008.
- [66] I. I. Rabi. On the process of space quantization. *Physical Review*, 49(4) :324–328, February 1936.
- [67] F. Bloch. Nuclear induction. *Physical Review*, 70, 1946.
- [68] J. H. Van Vleck. The dipolar broadening of magnetic resonance lines in crystals. *Physical Review*, 74(9) :1168–1183, November 1948.
- [69] N. Bloembergen, E. M. Purcell, and R. V. Pound. Relaxation effects in nuclear magnetic resonance absorption. *Physical Review*, 73(7) :679–712, April 1948.
- [70] W.B. Mims. *Electron paramagnetic resonance*. PlenumPublishing Corporation, 1972.
- [71] E. L. Hahn. Spin Echoes. *Physical Review*, 80(4) :580–594, November 1950.

- [72] R.J. Blume. Electron Spin Relaxation Times in Sodium-Ammonia Solutions. *Physical Review*, 109(6) :1867–1873, March 1958.
- [73] J. P. Gordon and K. D. Bowers. Microwave Spin Echoes from Donor Electrons in Silicon. *Physical Review Letters*, 1(10) :368–370, November 1958.
- [74] N. A. Kurnit, I. D. Abella, and S. R. Hartmann. Observation of a Photon Echo. *Physical Review Letters*, 13(19) :567–568, November 1964.
- [75] W. B. Mims, K. Nassau, and J. D. McGee. Spectral Diffusion in Electron Resonance Lines. *Physical Review*, 123(6) :2059–2069, September 1961.
- [76] L. Kevan, M. K. Bowman, P. A. Narayana, R. K. Boeckman, V. F. Yudanov, and Y. D. Tsvetkov. Electron spin echo envelope modulation of trapped radicals in disordered glassy systems. *The Journal of Chemical Physics*, 63(1) :409–416, July 1975.
- [77] O. Guillot-Noel, H. Vezin, Ph. Goldner, F. Beaudoux, J. Vincent, J. Lejay, and I. Lorger? Direct observation of rare-earth-host interactions in  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ . *Physical Review B*, 76(18) :180408, November 2007.
- [78] W. B. Mims. Envelope Modulation in Spin-Echo Experiments. *Physical Review B*, 5(7) :2409–2419, April 1972.
- [79] W. B. Mims. Amplitudes of Superhyperfine Frequencies Displayed in the Electron-Spin-Echo Envelope. *Physical Review B*, 6(9) :3543–3545, November 1972.
- [80] M. Mitsunaga. cw photon echo : Theory and observations. *Physical Review A*, 42(3) :1617–1629, August 1990.
- [81] L. Allen and J-H. Eberly. *Optical resonance and two-level atoms*. Wiley-interscience publication, 1975.
- [82] B. Lauritzen, S. R. Hastings-Simon, H. de Riedmatten, M. Afzelius, and N. Gisin. State preparation by optical pumping in erbium-doped solids using stimulated emission and spin mixing. *Physical Review A*, 78(4) :043402, October 2008.
- [83] A. M. Portis. Spectral diffusion in magnetic resonance. *Physical Review*, 104(3) :584–588, November 1956.
- [84] R. S. Meltzer, Y. P. Wang, D. Boye, W. M. Yen, and D. P. Landau. experiments and computer simulations. *Journal of Luminescence*, 53 :1–6, 1992.
- [85] F. De Sèze. *Vers l'enregistrement d'un signal quantique dans des ions de terre rare en matrice cristalline*. PhD thesis, Université Paris-Sud, 2006.
- [86] J-P. Faroux B. Cagnac. *Lasers*. EDP Science, 2002.
- [87] A. A. Kaplianskii and R. M. Macfarlane. *Spectroscopy of solids containing rare earth ions*. Number v. 21 in Modern problems in condensed matter sciences. North-Holland; Sole distributor for the USA and Canada, Elsevier Science Pub. Co, Amsterdam; New York : New York, NY, 1987.
- [88] A. Szabo. Observation of hole burning and cross relaxation effects in ruby. *Physical Review B*, 11(11) :4512–4517, June 1975.
- [89] R.M. Macfarlane. High-resolution laser spectroscopy of rare-earth doped insulators : a personal perspective. *Journal of Luminescence*, 100(1-4) :1–20, December 2002.
- [90] A. Louchet. *Manipulation optique d'une cohérence de spin nucléaire dans l'ion thulium en matrice cristalline*. PhD thesis, Université Paris-Sud, 2008.
- [91] P. Hu and S. R. Hartmann. Theory of spectral diffusion decay using an uncorrelated-sudden-jump model. *Physical Review B*, 9(1) :1–13, January 1974.

- [92] W. B. Mims. Phase memory in electron spin echoes, lattice relaxation effects in  $\text{CaWO}_4$  : Er, Ce, Mn. *Physical Review*, 168(2) :370–389, April 1968.
- [93] B. Car, L. Veissier, A. Louchet-Chauvet, J.-L. Le Gouët, and T. Chanelière. Optical study of the anisotropic erbium spin flip-flop dynamics. *Soumis à Physical Review B*.
- [94] E. Zambrini Cruzeiro, A. Tiranov, I. Usmani, C. Laplane, J. Lavoie, A. Ferrier, P. Goldner, N. Gisin, and M. Afzelius. Spectral hole lifetimes and spin population relaxation dynamics in neodymium-doped yttrium orthosilicate. *Physical Review B*, 95(20) :205119, May 2017.
- [95] E Zambrini Cruzeiro et al. Supplementary Material for “Spectral hole lifetimes and spin population relaxation dynamics in Neodymium-doped yttrium orthosilicate”.
- [96] P. Bushev et al. Ultralow-power spectroscopy of a rare-earth spin ensemble using a superconducting resonator. *Physical Review B*, 84(6) :060501, August 2011.
- [97] S. Welinski, C.W. Thiel, J. Dajczgeward, A. Ferrier, R.L. Cone, R.M. Macfarlane, T. Chanelière, A. Louchet-Chauvet, and P. Goldner. Effects of disorder on optical and electron spin linewidths in  $\text{Er}^{3+}, \text{Sc}^{3+} : \text{Y}_2\text{SiO}_5$ . *Optical Materials*, 63 :69–75, January 2017.
- [98] S. R. Hastings-Simon, M. Afzelius, J. Minář, M. U. Staudt, B. Lauritzen, H. de Riedmatten, N. Gisin, A. Amari, A. Walther, S. Kröll, E. Cavalli, and M. Bettinelli. Spectral hole-burning spectroscopy in  $\text{Nd}^{3+} : \text{YVO}_4$ . *Physical Review B*, 77(12) :125111, March 2008.
- [99] S. R. Hastings-Simon, B. Lauritzen, M. U. Staudt, J. L. M. van Mechelen, C. Simon, H. de Riedmatten, M. Afzelius, and N. Gisin. Zeeman-level lifetimes in  $\text{Er}^{3+} : \text{Y}_2\text{SiO}_5$ . *Physical Review B*, 78(8) :085410, August 2008.
- [100] B. Lauritzen, J. Minář, H. de Riedmatten, M. Afzelius, and N. Gisin. Approaches for a quantum memory at telecommunication wavelengths. *Physical Review A*, 83(1) :012318, January 2011.
- [101] O. Guillot-Noël, Ph. Goldner, Y. Le Du, E. Baldit, P. Monnier, and K. Bencheikh. Hyperfine interaction of  $\text{Er}^{3+}$  ions in  $\text{Y}_2\text{SiO}_5$  : An electron paramagnetic resonance spectroscopy study. *Physical Review B*, 74(21) :214409, December 2006.
- [102] D. L. McAuslan, J. G. Bartholomew, M. J. Sellars, and J. J. Longdell. Reducing decoherence in optical and spin transitions in rare-earth-metal-ion-doped materials. *Physical Review A*, 85(3) :032339, March 2012.
- [103] R. C. Johnson et al. Evolution of spin relaxation processes in  $\text{LiY}_{1-x}\text{Ho}_x\text{F}_4$  studied via ac-susceptibility and muon spin relaxation. *Physical Review B*, 86(1) :014427, July 2012.
- [104] S. Bertaina, S. Gambarelli, A. Tkachuk, I. N. Kurkin, B. Malkin, A. Stepanov, and B. Barbara. Rare-earth solid-state qubits. *Nature Nanotechnology*, 2(1) :39–42, January 2007.
- [105] B. G. Enrique. Optical Spectrum and Magnetic Properties of  $\text{Er}^{3+}$  in  $\text{CaWO}_4$ . *The Journal of Chemical Physics*, 55(5) :2538–2549, September 1971.
- [106] S. R. Hastings-Simon, M. U. Staudt, M. Afzelius, P. Baldi, D. Jaccard, W. Tittel, and N. Controlled Stark shifts in  $\text{Er}^{3+}$ -doped crystalline and amorphous waveguides for quantum state storage. *Optics Communications*, 266(2) :716–719, October 2006.
- [107] C. W. Thiel, Y. Sun, R. M. Macfarlane, T. Böttger, and R. L. Cone. Rare-earth-doped  $\text{LiNbO}_3$  and  $\text{KTiOPO}_4$  (KTP) for waveguide quantum memories. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 45(12) :124013, June 2012.
- [108] M. F. Askarani et al. Storage and Reemission of Heralded Telecommunication-Wavelength Photons Using a Crystal Waveguide. *Physical Review Applied*, 11(5) :054056, May 2019.

- [109] D. M. B. P. Milori, I. J. Moraes, A. C. Hernandez, R. R. de Souza, M. Siu Li, M. C. Terri, and G. E. Barberis. Optical and ESR study of  $\text{Er}^{3+}$  in  $\text{LiNbO}_3$ . *Physical Review B*, 51(5) :3206–3209, February 1995.
- [110] G. Wolfowicz, H. Maier-Flaig, R. Marino, A. Ferrier, H. Vezin, J. J. L. Morton, and P. Goldner. Coherent storage of microwave excitations in rare-earth nuclear spins. *Physical review letters*, 114(17) :170503, 2015.
- [111] I. Usmani, C. Clausen, F. Bussi eres, N. Sangouard, M. Afzelius, and N. Gisin. Heralded quantum entanglement between two crystals. *Nature Photonics*, 6(4) :234–237, April 2012.
- [112] C. Clausen, I. Usmani, F. Bussi eres, N. Sangouard, M. Afzelius, H. de Riedmatten, and N. Gisin. Quantum storage of photonic entanglement in a crystal. *Nature*, 469(7331) :508–511, January 2011.
- [113] S. Welinski, A. Ferrier, M. Afzelius, and P. Goldner. High-resolution optical spectroscopy and magnetic properties of  $\text{Yb}^{3+}$  in  $\text{Y}_2\text{SiO}_5$ . *Physical Review B*, 94(15) :155116, 2016.
- [114] H-J. Lim, S. Welinski, A. Ferrier, P. Goldner, and J. J. L. Morton. Coherent spin dynamics of ytterbium ions in yttrium orthosilicate. *Physical Review B*, 97(6) :064409, February 2018.
- [115] R. P. Budoyo et al. Phonon-bottlenecked spin relaxation of  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$  at sub-kelvin temperatures. *Applied Physics Express*, 11(4) :043002, April 2018.
- [116] P. L. Stanwix, L. M. Pham, J. R. Maze, M. D. Lukin, and R. L. Walsworth. Coherence of nitrogen-vacancy electronic spin ensembles in diamond. *Physical Review B*, 82 :201201, 2010.
- [117] L. Childress, M. V. Gurudev Dutt, J. M. Taylor, A. S. Zibrov, F. Jelezko, J. Wrachtrup, P. R. Hemmer, and M. D. Lukin. Coherent Dynamics of Coupled Electron and Nuclear Spin Qubits in Diamond. *Science*, 314(5797) :281–285, October 2006.
- [118] B. Car, L. Veissier, A. Louchet-Chauvet, J.-L. Le Gou et, and T. Chaneli ere. Selective Optical Addressing of Nuclear Spins through Superhyperfine Interaction in Rare-Earth Doped Solids. *Physical Review Letters*, 120(19) :197401, May 2018.
- [119] B.A. Maksimov, V.V. Ilyukhin, Y.A. Kharitonov, and N.V. Belov. Crystal structure of yttrium oxyorthosilicate  $\text{Y}_2\text{O}_3\text{SiO}_2$  and  $\text{Y}_2\text{SiO}_5$ . *Kristallografiya*, 15, 01 1970.
- [120] M. Zhong, R. L. Ahlefeldt, and M. J. Sellars. Quantum information processing using frozen core  $\text{Y}^{3+}$  spins in  $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ . *New Journal of Physics*, 21(3) :033019, March 2019.
- [121] C. O’Brien, N. Lauk, S. Blum, G. Morigi, and M. Fleischhauer. Interfacing Superconducting Qubits and Telecom Photons via a Rare-Earth-Doped Crystal. *Physical Review Letters*, 113(6) :063603, August 2014.

**Titre** : Étude de la dynamique des spins autour d'un ion erbium pour le développement de mémoires quantiques

**Mots clés** : Information quantique, Cristaux dopés aux ions terre-rare, Laser, Écho de photon

**Résumé** : Aux basses températures, les matrices dopées aux ions terre-rare sont des systèmes prometteurs pour la réalisation de mémoires quantiques. Parmi elles, le système  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$  a l'avantage de posséder une transition aux longueurs d'onde Télécom, adaptée aux réseaux de communication actuels. Cependant, aucun stockage quantique n'a pu être réalisé de manière efficace durant un temps suffisamment long dans ce matériau. L'objectif de cette thèse est de mieux comprendre les interactions limitant la cohérence du système aux faibles champs magnétiques.

Dans ce cadre là, les interactions dominantes sont les basculements réciproques entre deux spins électroniques opposés des ions erbium et l'interaction super-hyperfine entre ces spins et les spins nucléaires des ligands yttrium. J'ai calculé la force et les caractéristiques de ces deux couplages dipolaires en incluant la grande anisotropie de la matrice  $\text{Y}_2\text{SiO}_5$ .

J'ai alors pu vérifier l'effet de cette anisotropie sur les basculements réciproques des spins des ions erbium à l'aide de deux techniques optiques, le creusement de trou spectral et l'excitation transitoire. Le taux de ces basculements est maximisé lorsque le champ magnétique est orienté perpendiculairement à l'axe principal du tenseur caractérisant le spin effectif. Il augmente globalement comme le carré de la concentration en ions dopants et diminue avec le champ magnétique.

Enfin, j'ai pu mesurer les caractéristiques des interactions super-hyperfines par le biais des modulations d'une décroissance d'écho de photon qu'elles provoquent. Il existe une configuration particulière où un couplage sélectif intervient entre les ions erbium et un unique yttrium de leurs environnements. Au contraire, le couplage à un nombre important d'ions ligands est responsable de la chute du temps de cohérence pour des champs magnétiques inférieurs à la dizaine de mT.

**Title** : Study of spin dynamics around erbium ions for quantum memories

**Keywords** : Quantum information, Rare-earth doped crystals, Laser, Photon echo

**Abstract** : At low temperatures, rare-earth doped matrices are promising supports for the development of quantum memories. Among them,  $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$  is well adapted to the current communication networks because of its transition at Telecom wavelength. However, quantum storage has a very limited efficiency and a short duration in this material. In this thesis, I study the interactions that hinder the coherence at low magnetic fields.

In this regime, the dominant processes are flip-flops between opposite electronic spins of erbium ions and the super-hyperfine interaction with nuclear spins of yttrium ligands. I have included the strong anisotropy of the  $\text{Y}_2\text{SiO}_5$  matrix in the calculation of these two dipolar interactions.

In order to check the anisotropy of the flip-flops between erbium spins, I have used two different optical techniques : spectral hole-burning and transient excitation. I have showed that their rate is maximum when the magnetic field is perpendicular to the principal axis of the effective spin tensor. Moreover, the flip-flop probability globally increases as the square of the doping concentration and as the inverse of the field.

Then I have also checked the calculations of super-hyperfine interactions by measuring photon echo modulations. I have found a particular situation where an erbium ion is strongly coupled to a single yttrium. On the contrary, the coupling to several ligands at very low magnetic fields drastically reduces the coherence time.

